

腰原伸也

東京工業大学大学院理工学研究科  
教授

光技術が先導する臨界的非平衡物質科学

## §1. 研究実施体制

### (1) 東工大 腰原グループ

- ① 研究分担グループ長：腰原 伸也（東京工業大学 理工学研究科 教授）（研究代表者）
- ② 研究項目：時間分解光電子顕微鏡並びにその光源開発と物質開拓
  - ・光誘起ドメイン動的観測のための時間分解光電子顕微鏡(PEEM)とそのための fs 秒レーザー光源開発
  - ・新しい電子-格子強結合物質の開発と新物性機能の開拓

### (2) 東北大 石原グループ

- ① 研究分担グループ長：石原 純夫（東北大学・理学研究科・教授）（主たる共同研究者）
- ② 研究項目：非平衡共同現象における動的構造解析の理論構築
  - ・共鳴 X 線散乱などを用いた電子-スピン-構造結合系のドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータ解析と新しい観測技法の提案・評価

### (3) 中央大学 米満グループ

- ① 研究分担グループ長：米満 賢治（中央大学・理工学部・教授）（主たる共同研究者）
- ② 研究項目：動的相転移過程の解析と理論構築
  - ・光誘起相の超高速ダイナミクスの解析、特に量子的な電子・構造揺らぎ観測に関するプログラムの開発と評価

(4) LBNL Schoenlein グループ

- ① 研究分担グループ長 : R.Schoenlein (ローレンス・バークレー国立研究所) (主たる共同研究者)
- ② 研究項目 : fsX 線光源を用いた非平衡協働現象の観測
  - ・ レーザースライシング技術を用いて放射光から発生させた fs 秒 X 線を用いた電子-格子強結合系の光応答の観測

## §2. 研究実施の概要

本研究では、5年5ヶ月の期間内に以下の4点を重点的に推進する。このために各々の項目の全体スケジュールに沿って本年度は以下の計画を実施した。計画は順調に進行中である。

- A) **新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用**: 時間分解型光電子顕微鏡に適したコンパクトなフェムト秒広波長域広繰り返し・広周波数可変光源を利用した時間分解光電子顕微鏡の本格的な立ち上げを、福本 (PD) や学生 RA らとともに恩田の協力のもと、集中的に実施し、いよいよ実際の III-V 族半導体中の実キャリアダイナミクス観測を確認することに成功し論文として報告した[A-1]。とりわけ GaAs 上に電極を設置し、電圧差をかけることで生じる電場勾配中での光注入キャリアの動きを動画としてとらえることに成功し、このような動画は世界で初めてのものとなったため、半導体関連分野への影響は大きなものとなった。このような測定自体が、従来の装置では帯電のためほとんど不可能であり、新光源の登場によってはじめて可能となったことを付記する。
- B) **新物質・構造物性開拓**: 時間分解光電子顕微鏡や動的 X 線観測技法を組み合わせ、物質開発指針の実証研究を行うために、そのデモンストレーション候補となる物質の探索を引き続き実施した [B-1,2,3]。深谷、恩田、沖本、石川らは梯子型銅酸化物  $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  ( $x=0,10$ ) における光誘起現象の探索を行い  $x=0$  の試料において光誘起でキャリアにいる電荷密度波 (CDW) 融解現象を発見した。これは超高速の光誘起相転移として注目される現象であることに加え、強相関梯子系という1次元と2次元のクロスオーバーが光誘起相転移に及ぼす影響の初めての観測例として、実験家、理論家の興味を集めている。さらに、項目 D との関連で光エネルギー変換過程への光誘起相転移のコンセプトの拡張をめざした研究も実施し、論文に報告した[B-4]。
- C) **理論**: 米満 G は、二量体が層状に集積した金属錯体であり、石川らが中心になって腰原 G で実験が進められてきた  $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  の電荷分離相における光誘起相転移の機構解明と、その制御可能性の検討を行った[C-1,2,3,4]。昨年度までの解析で得られたモデル・パラメータに基づいて、電荷秩序の融解過程を解析した結果、当該物質では二量体の中と間で電子と格子変位の自由度が絡み合って相転移が進行することがわかった。またこれらの知見を基にして、パルス強度をさらに上げて可能になる、新たなエネルギー移動経路の開拓および有効相互作用の変調を目指して、解析を進めている。石原 G ではこれまでに引き続き、スピンや電気分極を有する強相関系の光応答、光照射効果について理論解析を行った[C5-C12]。まず昨年について梯子型強相関電子模型において、金属状態にポンプ光を照射することで系の低エネルギー領域の伝導性が減少することを理論解析により見出した。本年度は、その機構の背景に電子対のコヒーレントな運動の促進と抑制という現象があることを見出した。更に二重パルス励起に関する解析を行い、腰原 G の梯子型銅酸化物の実験結果を定性的に説明した。また反強磁性モット絶縁体における動的キャリア注入に関する基礎的な理論枠組みを構築し、時間の経過に伴う光吸収スペクトルの変化を具体的に計算した。また電荷秩序絶縁体における光照射効果や、電子型誘電体における光照射効果についての理論解析を実施した。

D) **フェムト秒動的 X 線測定技法**:今年度は、有機光機能分子結晶における ps 動的構造解析が進展した[D-1]。TTF-CA における、光誘起中性-イオン性相転移において、過度中性化相という、通常の相図には登場しない「隠れた物質相」が出現し、その構造をps時間分解 X 線で同定することに初めて成功し報告した[D-1]。これによって、古くから研究されてきた問題においてでさえ実はこのような新物質相の登場を見過ごしていたことが明示され、今後の非平衡物質科学の進展に、新光源を駆使した動的構造解析の果たす役割の重要性を改めて示す結果となった。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### 論文詳細情報(国際)

A-1: K. Fukumoto, Y. Yamada, K. Onda, and S. Koshihara, "Direct imaging of electron recombination and transport on a semiconductor surface by femtosecond time-resolved photoemission electron microscopy", *Applied Physics Letters* 104 (2014) 053117 (DOI: 10.1063/1.4864279)

B-1: Y. OKIMOTO, T. EGAWA, R. FUKAYA, Y. MATSUBARA, Y. YAMADA, N. YAMAYA, T. ISHIKAWA, K. ONDA, S. KOSHIHARA, H. TANIGUCHI, M. ITOH, A. ISAYAMA, and T. SASAGAWA, "Ultrafast Real Space Dynamics of Photoexcited State in a Layered Perovskite-Type Spin Crossover Oxide  $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_4$ ", *J. Phys. Soc. of Jpn.* 82 (2013) 074721 (DOI: 10.7566/JPSJ.82.074721)

B-2: N. Fukazawa, T. Tanaka, T. Ishikawa, Y. Okimoto, S. Koshihara, T. Yamamoto, M. Tamura, R. Kato, and K. Onda, "Time-Resolved Infrared Vibrational Spectroscopy of the Photoinduced Phase Transition of  $\text{Pd}(\text{dmit})_2$  Salts Having Different Orders of Phase Transition", *J. Phys. Chem. C* 2013, 117, 13187 (DOI: 10.1021/jp403193a)

B-3: R. FUKAYA, Y. OKIMOTO, M. KUNITOMO, T. ISHIKAWA, K. ONDA, S. KOSHIHARA, A. ISAYAMA and T. SASAGAWA, "Unconventional Photonic Change of Charge-Density-Wave Phase in Two-Leg Ladder Cuprate  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.*, 82 (2013) 083707 (DOI: 10.7566/JPSJ.82.083707)

B-4: T. Mukuta, N. Fukazawa, K. Murata, A. Inagaki, M. Akita, S. Tanaka, S. Koshihara, and K. Onda, "Infrared Vibrational Spectroscopy of  $[\text{Ru}(\text{bpy})_2(\text{bpm})]^{2+}$  and  $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$  in the Excited Triplet State", *Inorg. Chem.* 53, 2481-2490 (2014), Highlighted article (DOI: 10.1021/ic402474t)

C-1: K. Nishioka and K. Yonemitsu, "Normal-Mode Analysis for Intra- and Inter-molecular Electron-Phonon Coupled Systems with Charge-Ordered and Dimer-Mott Ground States," *J. Phys. Soc. Jpn.* 82, 024701 (11 pages) (2013). (DOI: 10.7566/JPSJ.82.024701)

C-2: Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Current-Voltage Characteristics and Breakdown Mechanism in One-Dimensional Band and Mott Insulators Attached to Electrodes," *J. Kor. Phys. Soc.* 62, 2164-2167 (2013). (DOI: 10.3938/jkps.62.2164)

C-3: K. Nishioka and K. Yonemitsu, "Intra- and Interdimer Electron-Phonon Concerted Mechanism of Photoinduced Charge-Order Melting in Metal Complex  $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ ," J. Phys. Soc. Jpn. 82, 094716 (10 pages) (2013). (DOI 10.7566/JPSJ.82.094716) `` Paper of Editors' Choice"

C-4: Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Charge Order and Possible Bias-Induced Metastable State in Organic Conductor  $\square$ -(*meso*-DMBEDT-TTF) $_2$ PF $_6$ : Effects of Structural Distortion," J. Phys.: Condens. Matter 25, 465603 (6 pages) (2013). (DOI:10.1088/0953-8984/25/46/465603)

C-5: E. Iyoda, and S. Ishihara, "Transient Carrier Dynamics in a Mott Insulator with Antiferromagnetic Order ", Phys. Rev. B (accepted).

C-6: J. Nasu and S. Ishihara "Vibronic excitation dynamics in orbitally degenerate correlated electron system ", Phys. Rev. B 88, 205110 (2013) (DOI: 10.1103/PhysRevB.88.205110)

C-7: K. Itoh, H. Itoh, S. Saito, I. Hosako, Y. Nakamura, H. Kishida, N. Yoneyama, T. Sasaki, S. Ishihara, and S. Iwai, "Narrowing of phonon spectrum induced by ultrafast charge fluctuations in an organic dimer Mott insulator ", Phys. Rev. B 88, 125101-1-6 (2013), (DOI: 10.1103/PhysRevB.88.125101)

C-8: K. Tomiyasu, Y. Kubota, S. Shimomura, M. Onodera, S. Koyama, T. Nojima, S. Ishihara, H. Nakao, and Y. Murakami, "Spin-state responses to light impurity substitution in low-spin perovskite  $\text{LaCoO}_3$  ", Phys. Rev. B 87, 224409-1-8 (2013) (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.224409)

C-9: J. Nasu, and S. Ishihara, "Dynamical Jahn-Teller Effect in Spin-Orbital Coupled System ", Phys. Rev. B 88, 094408-1-6 (2013) (DOI:10.1103/PhysRevB.88.094408)

C-10: S. Ishihara, J. Ohara, and Y. Kanamori, "Photoinduced phenomena in correlated electron systems with multi-degrees of freedom", Euro. Phys. J. (Special Topics) 222, 1125-1135 (2013), (DOI: 10.1051/epjconf/20134103013)

C-11: T. Watanabe, S. Ishihara, "Superconductivity in ionic-Hubbard model on honeycomb lattice", Physica C 484, 56-58 (2013) (DOI: 10.1016/j.physc.2012.02.021)

C-12: H. Itoh, K. Itoh, K. Anjyo, H. Nakaya, H. Akahama, D. Ohishi, S. Saito, T. Kambe, S. Ishihara, N. Ikeda, and S. Iwai, "Ultrafast melting of charge ordering in  $\text{LuFe}_2\text{O}_4$  probed by terahertz spectroscopy", *J. Luminesc.* 133, 149-151 (2013) (DOI:10.1016/j.jlumin.2011.12.051)

D-1: M.Hoshino, S.Nozawa, T.Sato, A.Tomita, S.Adachi and S.Koshihara, "Time-resolved X-ray crystal structure analysis for elucidating the hidden 'over-neutralized' phase of TTF-CA", *RSC Adv.*, 2013, 3, 16313 (DOI: 10.1039/C3RA42489H)