

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26800163

研究課題名(和文)多自由度強相関電子系における光誘起超高速ダイナミクスの生成と制御

研究課題名(英文)Generation and control of photoinduced ultrafast dynamics in strongly correlated electron systems with multiple degrees of freedom

研究代表者

前島 展也 (Maeshima, Nobuya)

筑波大学・計算科学研究センター・講師

研究者番号：90390658

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：物質の中には、光誘起相転移をはじめとして光照射により誘起される現象を起こすものが数多く存在する。本研究では、このような光誘起現象の初期過程において生成される量子状態の性質を理論的に調べた。特に強相関電子系の光励起状態や、半導体の超高速コヒーレントフォノン生成とそれに伴う過渡的ファノ共鳴現象、半導体超格子におけるレーザー誘起長寿命共鳴状態などの性質を数値的手法により解析した。

研究成果の概要(英文)：There are many materials which shows photoinduced phenomena including photoinduced phase transitions, induced by photo irradiation. In this study, we theoretically investigate physical properties of quantum states emerging in the initial process of the photoexcitation. In particular, we analyze photoexcited states of various strongly correlated electron systems, ultrafast coherent-phonon generation and related transient Fano resonance in bulk semiconductors, laser-induced resonance states with long lifetime in semiconductor superlattices by using numerical techniques.

研究分野：数物系科学

キーワード：光物性 強相関電子系 光誘起相転移 コヒーレントフォノン フロケ状態

### 1. 研究開始当初の背景

近年、光誘起相転移をはじめとする光誘起現象に関する研究が活発に行われている。例えば光誘起相転移は、超高速光スイッチングデバイスの動作原理として期待されるほか、量子多体系における非平衡現象の典型的な題材であるため、その発現メカニズムの解明は応用・基礎の両面から極めて重要な研究課題である。

このような光誘起現象においては、まず光照射直後には光学活性な初期状態が生成されそこから更に大域的な状態変化へと至ると考えられているが、その初期状態がどのようなものであるかについては十分な理解は進んでいない、また光照射直後には反射率スペクトルなどが時間とともに振動する超高速コヒーレント振動現象が現れる場合がある。このようなコヒーレント振動にはフォノンなどの低エネルギー励起が関与していると考えられているが、これもどのような初期状態から振動状態に至るのかなど、その詳細については十分明らかになっていないのが現状である。

### 2. 研究の目的

本申請者は、このような光誘起現象における初期状態およびその後続く超高速コヒーレント振動の理論的解明を研究目的とする。主に (1)遷移金属酸化物の光励起直後の状態を調べるため、2軌道縮退ハバード模型における光励起状態の解析(2)1次元有機導体における光励起状態および光誘起ダイナミクスの解析(3)半導体におけるコヒーレント振動現象の解析、を行う。更に(4)量子状態をTHz波や赤外線レーザーなどの外場で制御する手法の理論的検討を行う。これは最終的には光誘起ダイナミクスの量子制御につながるものと期待される。

### 3. 研究の方法

(1),(2)については有限クラスター上のハバード模型に対する厳密対角化法を用いて基底状態および光励起状態における各種物理量や光学伝導度スペクトルなどを計算した。(3)の半導体については伝導帯と価電子帯の2バンドに加えて光学フォノンを考慮した理論模型を採用し、それに対してボゾン化法を適用して光励起状態の解析を行った。(4)の量子状態の解析についてはまずは一電子状態の制御を目的として時間周期性電場中の系に対するフーリエ・フロケ展開法を用いた。

### 4. 研究成果

(1) 2軌道縮退ハバード模型における光励起状態の解析: 近年、遷移金属酸化物における光誘起現象に関する実験的研究が数多く行われており、そのような例の一つとしてバ

ナジウム酸化物  $RVO_3$ (R は Y もしくは希土類)における光誘起相転移が知られている。 $LaVO_3$  に対する実験的研究により光励起キャリアによると思われる低エネルギー領域の反射率スペクトル増大などの過渡的变化が観測されたが、同物質の特徴であるスピン・軌道秩序の光誘起変化については今まで明確に議論されていなかった。そこで図1に示す  $2 \times 2 \times 2$  クラスタ上の2軌道ハバード模型に対する厳密対角化計算を行い、基底状態においては広いパラメータ領域で C-AF スピン相関・G-AF 軌道相関が支配的となるが、光励起状態では広いパラメータ領域で A-AF スピン相関・ $C_{xy}$ -AF 軌道相関が支配的となること、基底状態が z 方向に特に強い軌道相関を持ち擬一次元的であるのに対し、光励起状態は xy 平面内を動く光キャリアのために2次元的な相関を示すことがわかった。

特に  $t_{xy}$  については、図1のクラスター内のサイト0に光励起キャリアである holon を置いた場合の、もう一つの光励起キャリアである doublon の分布を図2に示す。光の偏光方向は z 方向(図1の縦方向)とした。この場合 doublon はサイト0から見て z 方向下向きであるサイト4に局在するのでは無く xy 平面内に広がっていることが分かる。このような光励起キャリアのダイナミクスが基底状態とは異なるスピン・軌道相関を形成する原因になっていると考えられる。

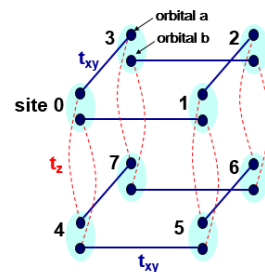


図1:  $2 \times 2 \times 2$  クラスタ。

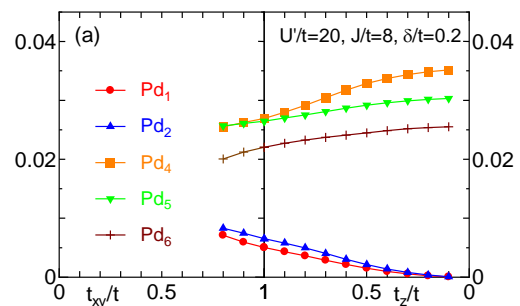


図2: holon を図1のサイト0に置いた場合の doublon 分布。

(2) 1次元有機導体における光励起状態および光誘起ダイナミクスの解析: 光誘起相転移を起こすことから注目されてきた擬1次元

電荷移動錯体 TTF-CA の電子状態は、1次元イオン性拡張ハバード模型という理論模型でうまく説明されることが以前より知られている。近年の理論的研究によりこの模型の強相関極限では通常の光励起状態である電荷移動(CT)励起よりも低エネルギー領域においてスピン励起(スピノン)が光学活性となり得ることが指摘された。我々は強相関極限だけではなく、中性イオン性(NI)転移点近傍を含む広範なパラメータ領域における光励起状態の性質を厳密対角化法により数値的に調べ、理論予測の通りCT励起の低エネルギー側にスペクトル強度は小さいが確かに光学活性な励起状態が存在すること、強相関極限ではそれらはスピン励起とみなせるが、NI転移点に近づくとき中性イオン性ドメイン壁(NIDW)状態からの寄与が増加し始めること、時間依存シュレディンガー方程式をランチョス法で解くことにより、この低エネルギー領域をレーザーで励起することによりCT励起を介さず直接スピン励起を誘起して2量化が解ける逆スピンパイエルズ転移が生じることを示した。特に に関する結果として図3に低エネルギー領域における積分強度の比較を示す。1次元イオン性ハバード模型の積分強度  $I$  と強相関極限の有効模型であるハイゼンベルグ模型の積分強度  $I_s$  は、強相関極限とみなせる交替ポテンシャル  $\Delta$  が小さい領域ではよく一致している。しかし  $\Delta$  が大きくなりNI転移点に近づくにつれ  $I$  の方が急激に増大し始めることが分かる。更にこの両者のずれが前述の NIDW 状態からの寄与であることが明らかとなった。

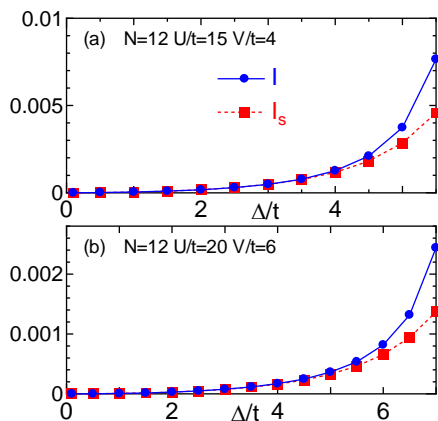


図3：低エネルギー領域の積分強度。  $I$  は1次元イオン性ハバード模型の結果であり  $I_s$  は強相関極限における有効模型の結果。

(3) 半導体におけるコヒーレント振動現象の解析: バルク半導体 Si に超高速パルスレーザーを照射した直後に出現する過渡的 Fano 共鳴の物理的起源について、ボゾン化法に基づく解析的・数値的方法により調べた。Si などの非極性半導体にレーザーを照射した場合過渡的なファノ共鳴現象が発現するが

GaAs などの極性半導体では発現せず両者の差異が電子-格子相互作用の違いから生じていること、パルスレーザー照射により発生する光キャリアによるプラズモン状態と音響フォノンが共鳴することによる不規則な振動現象が生じること、ポンプレーザーの中心周波数とバンドギャップとの差 (detuning) を制御パラメータとして調べた結果、レーザー照射直後の光学応答スペクトルに見られる Fano 共鳴特有の非対称スペクトル構造が detuning の値に大きく依存し、その原因が LO フォノンと電子正孔対励起を記述する準粒子である擬ボゾンとの有効相互作用の detuning 依存性にあることなどを明らかにした。

(4) 量子状態を THz 波や赤外線レーザーなどの外場で制御する手法の理論的検討: 本研究課題の出発点として、半導体超格子に DC 電場および CW レーザーを照射した場合に発現する dynamical Wannier-Stark ladder (DWSL) における状態密度(DOS)のレーザー強度依存性を R-matrix 伝播法により解析した。DC 電場による Bloch 周波数  $\Omega$  と CW レーザーの周波数  $\omega$  との比  $\eta = \Omega/\omega$  が分数となる場合に、新奇な共鳴状態の発生を意味するピーク構造が状態密度に現れることを示した(図4)。

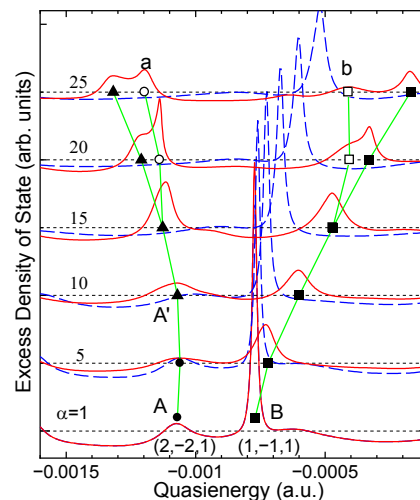


図4：DWSL( $\eta=\Omega/\omega=3/2$ )の状態密度(DOS)に現るピーク構造(a,b)。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4件)

1. Fumihiko Imoto, Hikaru Takenaka, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino, "Spin and Orbital Correlations of a Photoexcited State of a Two-Orbital Hubbard Model", J. Phys. Soc. Jpn. 84, 124705\_1-6 (2015) 査読有 DOI:

10.7566/JPSJ.84.124705

2. Yuya Nemoto, Fumitaka Ohno, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino, "Manifestation of anomalous Floquet states with longevity in dynamic fractional Stark ladder with high AC electric fields", Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures 83, 339-344 (2016) 査読有 DOI: 10.1016/j.physe.2016.04.021

3. Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Polaronic quasiparticle picture for generation dynamics of coherent phonons in semiconductors: Transient and nonlinear Fano resonance", Phys. Rev. B 95, 014301\_1-16 (2017) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.95.014301

4. Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Quantum Generation Dynamics of Coherent Phonons: Analysis of Transient Fano resonance", to be published in J. Phys. Conf. Ser. (2017)

〔学会発表〕(計 8 件)

1. Yohei Watanabe, Yuya Nemoto, Ken-ichi Hino, Nobuya Maeshima, "Polaronic Quasiparticle Picture for Coherent Phonon Dynamics in Semiconductors", ICPS2014 (August 10-15, 2014, Austin, Texas)

2. 前島展也, 日野健一, "1次元拡張イオン性ハバード模型におけるレーザー誘起ダイナミクス", 日本物理学会 2014年秋大会 (中部大学, 愛知県春日井市, 2014年9月7日~10日)

3. 日野健一, 渡辺陽平, 長谷宗明, 前島展也, "コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクス I: 過渡的準粒子描像に基づく理論構築", 日本物理学会 2015年秋大会 (関西大, 大阪府吹田市, 2015年9月16日-19日)

4. 渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也, "コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクス II: 過渡的な非線形 Fano 共鳴効果の解析", 2015年秋大会 (関西大, 大阪府吹田市, 2015年9月16日-19日)

5. 横井浩太, 前島展也, 日野健一, "1次元拡張イオン性ハバード模型の低エネルギー領域における光励起状態", 日本物理学会 第71回年次大会 (東北学院大学, 宮城県仙台市泉区, 2016年3月19日~22日)

6. Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Mueaki Hase and Nobuya Maeshima, "Quantum generation dynamics of coherent phonons: Analysis of

transient Fano esonance", ICPS2016 (July 31-August 5, 2016, Beijing, China).

7. 渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也, "コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクスにおけるパルスレーザー依存性", 日本物理学会 2016年秋大会 (金沢大学, 石川県金沢市, 2016年9月13日~16日)

8. 横井浩太, 前島展也, 日野健一, "1次元拡張イオン性ハバード模型の低エネルギー領域における光励起状態 I I", 日本物理学会 2016年秋大会 (金沢大学, 石川県金沢市, 2016年9月13日~16日)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

前島 展也 (MAESHIMA NOBUYA)

筑波大学・計算科学研究センター・講師

研究者番号: 90390658