

強相関ナノ電子構造の光誘起協同現象による超高速光スイッチング

岩井伸一郎

東北大学 大学院理学研究科

1. 研究のねらい

微弱な光の照射によって物質相が、(熱的にではなく電子的に)変化する現象、“光誘起相転移”の機構を解明し、高速光スイッチやコヒーレント制御への応用の可能性を探る。この現象の本質は、光励起状態が、物質相の秩序を不安定化し、別の秩序へと向かわせることである。まず第一に、典型例として知られる電荷移動錯体(tetrathiafulvalene chloranil: TTF-CA)の中性-イオン性転移において、その仕組みを理解する。第二に、上記の機構の理解に立脚し、フェムト秒パルス対励起によるコヒーレントフォノンの増幅など、通常の半導体の励起状態には見られない新機能を見出す。第三に、3d 遷移金属化合物や分子性導体など、より複雑ではあるが、新奇な物性や機能の発現が期待できる強相関電子系物質において光誘起絶縁体-金属転移のダイナミクスを探索する。特に、これらの系では、電子相関によって物質相が支配されることから、フェムト秒レーザーを用いることにより、大きな構造転移を伴わない、高速な物質相の光スイッチングが期待できる。物質の種類、温度や励起強度、圧力などさまざまな実験条件を広範に変化させ、絶縁体金属転移ダイナミクスの支配要因を明らかにする。

2. 研究成果と考察

光誘起絶縁体金属の支配要因を、系統的に明らかにするために、強相関有機導体への展開をはかった。この系は、電子相関(U,V)や、トランスファー(t)などのパラメータが異なる多彩な物質群を擁する。また、i) 絶縁体金属転移に関するパラメータのエネルギースケールが、無機物(遷移金属化合物)にくらべ、約一桁小さいため、時間分解が容易になることや、ii) 1-2 GPaの比較的低压の印加によって、電子状態が大きく変化することなど、系統的な研究を行う上で、3d 遷移金属化合物にはない利点がある。

分子性導体においては、 π 電子がその物性を支配し、3d電子系のように特に強いクーロン斥力が存在するわけではないが、分子間トランスファーが小さいため、結果的に強相関電子系として扱うことが出来る。かつて、有機高温超伝導を目指した研究によって、広範な物質探索が行われたことでも知られる。特に、1/4フィリングと呼ばれるD(ドナー)とA(アクセプター)分子が2:1で錯体を作る系においては、電荷秩序(電荷整列)と呼ばれる強相関絶縁相の形成を軸にして、極めて多様な伝導、磁気物性が現れる。

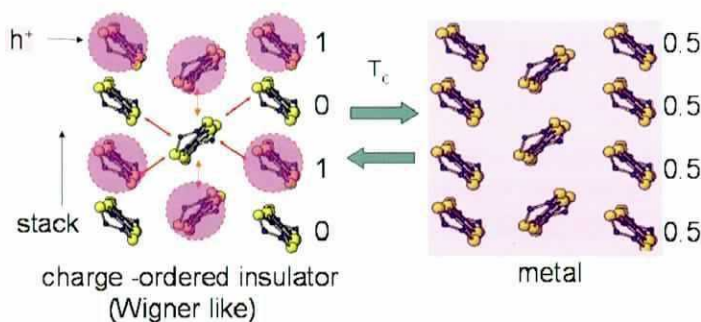


図 1: 二次元有機導体 (BEDT-TTF)₂X (Xは、アクセプター分子)における BEDT-TTF 分子配列の模式図。左(電荷秩序状態: 低温相)の赤丸は、電荷(正孔)の局在を表す。右(金属状態: 高温相)では、電荷は、均一に広がる。

図 3 は、二次元系の(BEDT-TTF)₂X(X は、アクセプター分子)における、D(BEDT-TTF)分子の配列を示す。1/4 フィリングと言われるように、最外殻電子軌道からなるバンドは、未充填である。すなわち、電子相関を考慮しないバンド理論によれば、系が金属であることを意味する。ところが、実際には、長距離クーロン斥力が、分子間のトランスファーを上回ることによって、電子は、分子の積層軸(矢印)方向にそって、101010 というパターンに電荷整列して絶縁化することがある(赤丸は、電荷(正孔)の分布を表す)。

我々は、波長 1400nm (0.89 eV)のフェムト秒パルスによって、電荷秩序相の励起を行い、中赤外スペクトルの変化を観測することによって、励起直後に電荷秩序が融解し、金属状態が光生成することを確認した。中赤外スペクトルの変化は、電荷秩序状態が、光励起によって融解し、金属状態へ変化して

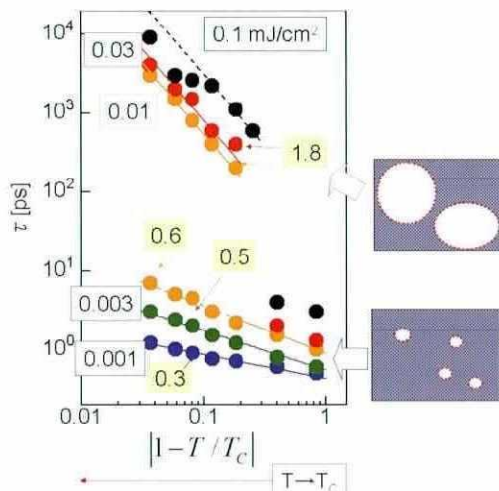


図 2: 各励起強度における光誘起金属状態の寿命の温度依存性

の性質を持つことを明確に示す証拠といえる。さらに、最も注目すべき結果は、励起強度が、0.003 mJ/cm² から 0.01 mJ/cm² へ増加する際、臨界指数は、0.6 から二次元 Ising モデルによる計算値 2.17 に比較的近い 1.8 へ不連続に変化することである。励起強度の増加にともなう、不連続な臨界指数の変化は、単に、凝集ドメインのサイズが大きくなるだけではなく、安定化の起源が変化することを示唆する。例えば、弱励起においては、微視的なドメインが、分子内振動モードによって安定化し、強励起下では、大きなドメインが、長波長の格子振動によって安定化することも考えられる。また、静水圧の印加によって、この金属ドメインは、飛躍的に安定化(寿命が 300 倍に増大)することを発見した。

謝辞 本研究は、岡本博教授、十倉好紀教授(産総研強相関電子技術研究センター、東京大学)、山本薫博士、薬師久弥教授(分子科学研究所)ほか多くの方々との共同研究によって行われました。感謝いたします。

4. 主要な論文

- 1: S. Iwai, M. Ono, A. Maeda, H. Matsuzaki, H. Kishida, H. Okamoto and Y. Tokura: Ultrafast optical switching to a metallic state by photoinduced Mott transition in a halogen-bridged nickel-chain compound, *Phys. Rev. Lett.* 91,057401(2003).
- 2: H. Okamoto, S. Iwai, H. Matsuzaki: Photoinduced phase transition in one-dimensional correlated electron systems, *Photoinduced phasetransition* ed. K. Nasu., chapter 6, (World Scientific, Singapore, 2003)
- 3: H. Okamoto, Y. Ishige, S. Tanaka, H. Kishida, S. Iwai and Y. Tokura: Photoinduced phase transition in tetrathiafulvalene-p-chloranil (TTF-CA) observed in femtosecond reflection spectroscopy, *Phys. Rev. B* 70, 165202(2004).
- 4: S. Iwai, Y. Okimoto, M. Ono, H. matsuzaki, A. Maeda, H. Kishida, H. Okamoto, Y. Tokura: Ultrafast insulator-to-metal switching by photoinduced Mott transition, *Springer series in chemical physics* 71, Ultrafast Phenomena XIV, 340(2005).
- 5: S. Iwai and H. Okamoto; Ultrafast phase control in one-dimensional correlated electron systems, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 75,011007 (2006).
- 6: S. Iwai, Y. Ishige, S. Tanaka, Y. Okimoto, Y. Tokura, H. Okamoto; Coherent control of charge and lattice dynamics in a photoinduced neutral-to-ionic transition of a charge-transfer compound. *Phys. Rev. Lett.* in press, Feb. 2006..

特許出願 4件