

κ -(BEDT-TTF)₂Xの金属相における動的局在による 光誘起ダイマーモット絶縁体化

¹名工大工, ²JST CREST
○大村周^{1,2}, 大矢航大¹, 高橋聡^{1,2}

Photoinduced metal-to-dimer-Mott-insulator transition in κ -(BEDT-TTF)₂X by dynamical localization

○Shu Ohmura^{1,2}, Kodai Ohya¹, Akira Takahashi^{1,2}

¹ Department of Physical Science and Engineering, Nagoya Institute of Technology., Japan
² JST CREST

【Abstract】 Precursory phenomena for photoinduced metal-to-insulator transition due to dynamical localization has been experimentally observed in α -(BEDT-TTF)₂I₃ (BEDT-TTF: bis[ethylenedithio]-tetrathiafulvalene) [1]. To reveal the detailed mechanism of the dynamical localization, we theoretically investigated the photoinduced dynamics of α - and κ -(BEDT-TTF)₂X (X: counteranion) in the metallic phases. In this presentation, we show the results for κ -type, in which BEDT-TTF molecules form dimers. We employed the quarter-filled extended Hubbard Hamiltonian to solve the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) numerically. By monitoring the weight of metallic and initial ground state, probability that a dimer is singly occupied and spin and charge correlations, we confirmed that the dimer Mott insulator phase is generated during the irradiation of an external light. We found that this is due to the dynamical localization caused by the modulation of the transfer integral. Furthermore, applying a THz pulse with the light pulse can induce the ultrafast polarization reversal.

【序】 光誘起相転移の多くは、絶縁体から金属への相転移のように光励起によって秩序状態を乱すことにより引き起こされる。しかし近年、 α -(BEDT-TTF)₂I₃ (BEDT-TTF: bis[ethylenedithio]-tetrathiafulvalene) の金属状態に近赤外領域の超短パルスを照射すると、動的局在により電荷秩序が形成される光誘起相転移の前駆現象が実験的に示され注目を集めている [1]。ここで、動的局在とは光によってサイト間の遷移積分が実効的に減少することにより電子が局在する現象である [2]。動的局在による秩序形成の詳細な機構解明は、物質の電子状態の高速制御にもつながる重要な課題となっている。

そこで我々は α -(BEDT-TTF)₂I₃、および κ -(BEDT-TTF)₂X (Xは対イオン) を対象に、金属状態の光誘起ダイナミクスを時間依存 Schrödinger 方程式 (TDSE) を数値的に解いて求めた。本発表では κ 型に関する結果を示す。 κ -(BEDT-TTF)₂X は図 1 に示すような二次元有機金属で、BEDT-TTF 分子がダイマーを形成する。1 ダイマーを近似的に 1 サイトとみなせば half-filled であり、圧力などの条件によってダイマーモット絶縁体となることが知られている。しかし、ダイマー間のみならずダイマー内の電荷移動も重要であることが指摘されており [3]、本研究では 1 分子 1 サイトの quarter-filled として取り扱った。

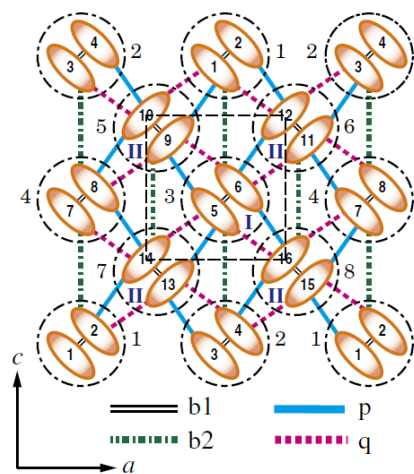


Fig. 1 Lattice structure of κ -(BEDT-TTF)₂X looking along the molecular axis [3]. A BEDT-TTF is depicted by an ellipse with its site number.

【理論】全ハミルトニアンは電子、格子と電子-格子結合の和で、 $H = H_e + H_p + H_{e-p}$ と表される。 H_e には次式の拡張ハバードモデルを用いた。

$$H_e = \sum_{\langle n,m \rangle, \sigma} \bar{\beta}_{n,m} (c_{m,\sigma}^\dagger c_{n,\sigma} + c_{n,\sigma}^\dagger c_{m,\sigma}) + U \sum_n n_{n,\uparrow} n_{n,\downarrow} + \sum_{\langle n,m \rangle} V_{n,m} n_n n_m \quad (1)$$

ここで $\langle n,m \rangle$ は隣接サイトペア、 $\bar{\beta}_{n,m}$ は平衡な格子間距離におけるサイト n, m 間の遷移積分、 $c_{n,\sigma}^\dagger$ と $c_{n,\sigma}$ はそれぞれサイト n におけるスピン σ の電子の生成・消滅演算子、 U と $V_{n,m}$ はそれぞれ同一サイト内とサイト n, m 間のクーロン相互作用エネルギー、 $n_{n,\sigma} = c_{n,\sigma}^\dagger c_{n,\sigma}$ 、 $n_n = n_{n,\uparrow} + n_{n,\downarrow}$ である。また、格子は古典的に取り扱った。電子-光子結合はパイルス位相として $\bar{\beta}_{n,m}$ に取り込まれている。光パルスは無次元のベクトルポテンシャルで $\mathbf{A}(t) = \mathbf{e} A \exp[-(t/D)^2] \cos(\omega t)$ と表される。ここで \mathbf{e} は偏光方向の単位ベクトル、 A は振幅、 D はパルス幅、 ω は中心振動数である。

【結果・考察】初期基底状態として相境界付近の金属状態となるパラメーターを用いた。サイト数は16とし、図1に示したように番号付けした。ここでは $A=0.8$ 、 $D=60 \text{ eV}^{-1}$ 、 $\omega=2.5 \text{ eV}$ 、偏光方向が a 軸方向とした場合の結果を示す。ただし $1 \text{ eV}^{-1} = 0.66 \text{ fs}$ である。図2に基底状態の重み $S(t)$ 、 $U=0, V_{n,m}=0$ における金属基底状態の重み $W_m(t)$ 、ダイマーが一重占有されている確率 $W_s(t)$ を示した。光パルスが照射されると $S(t)$ と $W_m(t)$ が減少、 $W_s(t)$ は増加し、 $-40 < t < 40$ で $S(t) \approx 0$ 、 $W_m \approx 0$ 、 $W_s \approx 1$ となる。スピン相関関数を計算すると、この時刻で反強磁性磁気秩序が成長していることから、確かに光照射によってダイマーモット絶縁体となっていることが確かめられた。一方、電荷相関関数を調べるとダイマー内電荷が偏りやすい電荷構造を持ち、ダイマーモット絶縁体の基底状態とは異なる電荷構造を有していることがわかった。これらの変化は ω に依存せずほぼ断熱的に起こっており、時間平均ハミルトニアンのもとで実効的に変化する $\bar{\beta}_{n,m}$ に起因する動的局在がダイナミクスを支配していることがわかった。

次に光パルスと同時に THz パルスを照射することにより電荷構造の高速制御を試みた。図3に振幅1.0、 a 軸方向に偏光した半サイクルの THz パルスを照射した場合のサイト5と6の電荷の時間変化を示した。THz パルスがダイマー間電荷移動を大きく促進している。この電荷移動は絶縁体相の基底状態では見られなかった。この結果は、光パルスと THz パルスを組み合わせて高速に分極反転できることを示唆している。

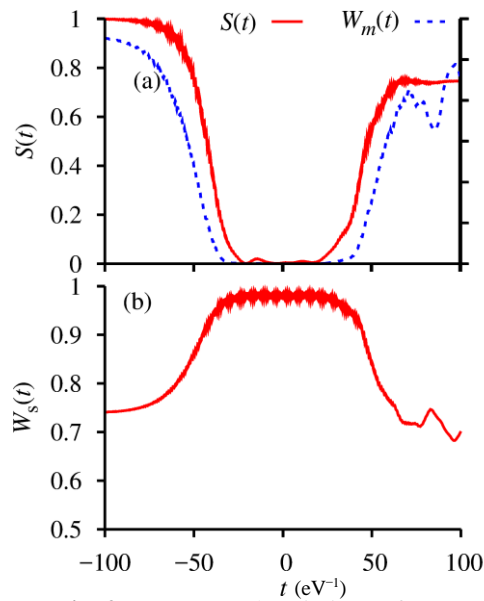


Fig. 2 (a) Temporal variations of (a) $S(t)$, $W_m(t)$ and (b) $W_s(t)$.

【参考文献】

- [1] T. Ishikawa, et al., Nature Commun. **5**, 5528 (2014). [2] D. H. Dunlap and V. M. Kenkre, Phys. Rev. B **34**, 3625 (1986); K. Nishioka and K. Yonemitsu, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 024706 (2014). [3] H. Gomi et al., J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 094714 (2014).

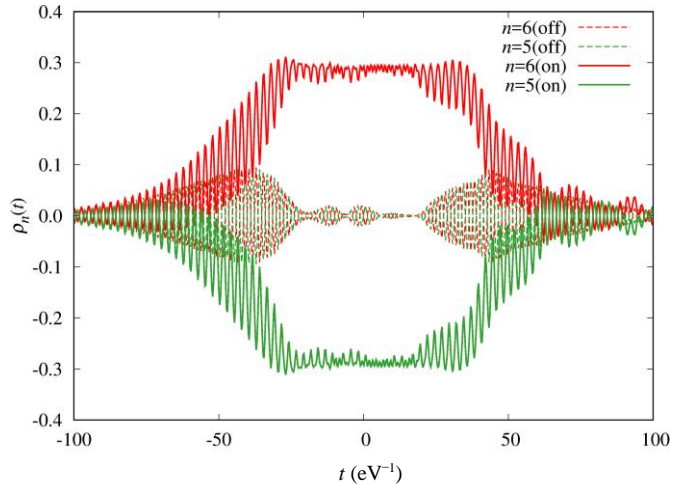


Fig. 3 Temporal variations of charges on site 5 (red) and 6 (green). The broken lines show the results of the simulation without a THz pulse.