

時間分解電子回折で見た遷移金属化合物結晶薄膜の構造ダイナミクス

Structural Dynamics of Transition Metal Compound Observed by Time-resolved

Electron Diffraction

筑波大数理¹, 東工大理², 広工大工³, 岡大院自然⁴, 名工大⁵, 東大新領域⁶ ○羽田 真毅¹, 石川 忠彦², 大村 訓史³, 慶尾 直哉⁴, 田久保 耕², 鈴木 達也⁵, 浅香 透⁵, 林 靖彦⁴, 阿部 伸行⁶, 有馬 孝尚⁶, 腰原 伸也², 沖本 洋一²

Univ. Tsukuba¹, Tokyo Tech.², Hiroshima Inst. Tech.³, Okayama Univ.⁴ Nagoya Inst. Tech.⁵, Univ. Tokyo⁶, ○Masaki Hada¹, Tadahiko Ishikawa², Satoshi Ohmura³, Naoya Keio⁴, Kou Takubo², Tatsuya Suzuki⁵, Toru Asaka⁵, Yasuhiko Hayashi⁴, Nobuyuki Abe⁶, Taka-hisa Arima⁶, Shin-ya Koshihara², Yoichi Okimoto²

E-mail: hada.masaki.fm@u.tsukuba.ac.jp

遷移金属酸化物の物性には、d 軌道電子とそれと混成する酸素 p 軌道電子が大きく寄与しており、バンドモデルとは異なる強相関電子系としての特徴を示す。遷移金属酸化物は d 軌道電子の電荷状態とスピン状態、d 軌道の縮退に基づく軌道自由度、さらに遷移金属と周囲の酸素原子の配置構造に基づく格子の自由度が絡み合っており、多彩な磁性、誘電性、伝導性が生み出される。電子・スピン・軌道・格子の自由度に基づく秩序状態が相互に微妙な均衡にあるとき、わずかな外部刺激によって物性に劇的な変化の出現が期待される。実際に光誘起の絶縁体-金属相転移、光誘起強磁性、さらには光誘起超電導などの探求の対象となってきた。

遷移金属酸化物において、光照射によって生じる物性変化の初期過程は、一般にフェムト秒からピコ秒という非常に速い時間スケールで生じるため、物質の秩序を高速で制御する新規光デバイスへの応用も期待されている。本研究では、酸素原子配置の秩序構造相転移[1]で知られている二重ペロブスカイト型遷移金属酸化物 ($\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.38}$) の室温における光照射下の格子と電子状態変化の関連を明らかにすべく、フェムト秒パルス光励起による格子・電子の超高速構造ダイナミクス観測を行った。電子状態と格子構造の両面での観測のため、超高速時間分解電子線回折法と過渡反射率法の組み合わせ計測を用いた。さらに、光励起構造変化の理論的なメカニズム解析も試みた。これらの結果、O-Co 間の光誘起電荷移動がきっかけとなって、電荷と格子歪が連携した高密度ポーラロン状態の発現と、酸素原子の秩序が 10–100 ピコ秒程度で崩れ、その後復活する構造ダイナミクスが確認された。Co の e_g 軌道への電荷注入により Co が 6 配位（八面体型）から 5 配位（ピラミッド型）へと変化しやすくなると推定され、これにより酸素原子の大規模な移動が発生するというモデルで観測結果の説明が可能かどうか現在理論計算との比較も含めて検討中である。このように二重ペロブスカイト構造型 $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.38}$ においては、従来の光誘起電荷秩序融解絶縁体-金属相転移とは大きく異なり、高密度ポーラロン状態を利用した光でのイオンの動きを超高速制御するという新機能の実現が可能である。

[1] N. Ishizawa, et al., *Chemistry of Materials* **26**, 6503–6517 (2014).