

選択的フォノン励起による強相関電子物質の相転移の解明

Mechanism of phase transitions in strongly correlated electron system revealed through selective phonon excitation

阪大基礎工¹、阪大産研²、インド理科学院³、兵庫県立大工⁴、阪大基礎工 CSRN⁵

○永井 正也¹,

服部 梓², R. Rakshit^{2,3}, 大坂 藍^{2,4}, 山内 邦彦⁵, 小口 多美夫⁵, 田中 秀和²

Eng. Sci., Osaka Univ.¹, SANKEN, Osaka Univ.², Indian Institute of Science³,

Eng., Univ. of Hyogo⁴, CSRN, Eng. Sci., Osaka Univ.⁵

○M. Nagai¹, A. N. Hattori², R. Rakshit^{2,3}, A. I. Osaka^{2,4}, K. Yamauchi⁵, T. Oguchi⁵, H. Tanaka²

E-mail: mnagai@mp.es.osaka-u.ac.jp

高強度のテラヘルツ光で特定のフォノンを大振幅で駆動し物性の変化を観測することは、どのような原子配置が物性発現に重要かを解明する手法として有効である。我々はこれまでテラヘルツ自由電子レーザー(FEL)を用いた強弾性体(部分安定化ジルコニア)のフォノン励起から、テラヘルツ領域のフォノンが相転移において重要であることを見出してきた[1]。今回は以下の強相関電子系材料に対して同様の手法を適用したので報告する。

マグネタイト Fe_3O_4 は、低温で混合原子価状態を持つが約120 Kのフェルベーク転移温度以上で電荷秩序状態が破れて絶縁体から金属へと相転移する。結晶構造は逆立方晶スピネル $[(\text{Fe}^{3+})_A(\text{Fe}^{2+}, \text{Fe}^{3+})_B\text{O}_4]$ であり、四面体配位のAサイトには Fe^{3+} イオンのみが占有され、八面体配位のBサイトには Fe^{3+} と Fe^{2+} の価数イオンが等しく占有される。一方で120 K以下では、結晶対称性が立方晶から特徴的な単斜晶に失われ、DC導電率が大幅に低下する。 Fe_3O_4 の転移の際の電荷の局在状態、言い換えるとフェルベーク転移の最小単位はBサイトの $[\text{Fe}^{3+}-\text{Fe}^{2+}-\text{Fe}^{3+}]$ からなる準粒子トライメロンで表され[2]、この短距離の価数揺らぎの秩序状態の破壊がフェルベーク相転移とみなせるが、その微視的挙動は明らかでない。そこで我々はフォノンに共鳴した高強度のTHz パルス照射し、フォノンの非調和性を介して特定の原子変位を実効的に変えた際の過渡光学応答を調べることで、微視的挙動を明らかにした。

実験では良質の Fe_3O_4 薄膜試料に対し、大阪大学産業科学研究所のFELを用いて2-10 THzでのフォノンの選択励起を行い、電気伝導度および可視領域の過渡吸収の時間発展を測定した。その結果、4 THz以下のフォノン励起においてのみ、高温相と同じ特徴の光学伝導度のスペクトルの変化がみられた。第一原理計算により、4 THz以下のフォノンはトライメロンを構成するBサイトのFeイオン原子が強く関与しており、この原子変位を与えると電荷不均化が抑制されて金属化することが示唆された。これは、特定のフォノン励起が相転移の発生を促すという今回の実験結果ともよく一致している。

[1] Nagai, *et al.* Commun. Phys., **6**, 88 (2023).

[2] Senn, *et al.*, Nature **481**, 173 (2012)