

大型シミュレーション研究・実施報告書

研究題目：低次元強相関電子系における放射光スペクトロスコピー

研究代表者 KEK物構研 岩野薫

1. 研究組織

研究代表者：岩野薫

分担者：無し

2. 実施報告

【これまでの経緯】前回までのプロジェクトを通じて、2次元格子系における電子多体問題、特に光学励起状態を正確に記述出来る手法の開発に取り組んできた。何故2次元系か？であるが、高温超伝導で有名な銅酸化物系もその物理は結晶中のある2次元面に本質的には帰着出来ると考えられている。また、それ以外の系では、例えば、有機分子が結晶化して生成される分子性結晶においても第ゼロ近似的には分子面の積層を無視出来、その結果として分子当たり1つの分子軌道を考慮した場合、分子を1格子点としてみなしてやはり2次元格子モデルになる。これらの系においてはサイト間の電子の運動の度合いが比較的小さく、一方で、同じサイト上に2個電子が来た場合のクーロンエネルギーが比較的大きい。従って、後者のような電子相関の効果が重要な意味を持ち、それが「強相関系」と呼ばれる所以である。

このような電子相関の効果は前者、後者ともに本質的な影響をその物性に与えている。例えば、前者においてはその光電子分光スペクトルに「擬ギャップ」「フェルミアーク」などの特徴が観察されており、電子相関効果が原因と推測されている。また、銅酸化物以外の金属酸化物、例えば、バナジウム酸化物においては、積層枚数を結晶成長させながら変えると金属・絶縁体転移が起きることがごく最近発見され、3次元-2次元の次元クロスオーバーと電子相関の深い関わりを示唆している。また、分子性結晶においても電荷秩序、スピン液体などの興味深い現象が見つかっており、これらもすべて主として電子相関に起因すると考えられる。また、筆者が特に興味を持っている「光誘起相転移」、すなわち、光励起によってマクロスコピックに相変化を起こさせる現象も、酸化物、分子性結晶の両方において見つまっている。

しかしながら現在の理論の問題点として、電子相関の強い2次元系を正確に扱う手法が必ずしも確立していない。特にスペクトルを扱う方法に乏しく、前述の「擬ギャップ」のように電子相関の特徴的な効果がスペクトルスコピーを通じて見出されていることを思い起こすと、これは今後の理論研究の大きな壁となる。さらには、光誘起相転移の場合、言うまでもなく光励起状態の問題であり、その理論的な解明のためにも励起状態を正確に扱える手法を必要としている。

こういった背景の下に本プロジェクトでは手法の開発を進めてきた。前プロジェクト期間中から2次元電荷秩序系を次に掲げるスピンレスハミルトニアン、および、光学伝導度の表式を用いて考察してきた。

$$H = -t_0 \sum_l (C_l^\dagger C_l + h.c.) + V \sum_{\langle l, l' \rangle} n_l n_{l'}$$

$$\sigma(\omega) = -\frac{1}{\pi\omega} \text{Im} \left\{ \langle 0 | \hat{J} \frac{1}{H - E_0 - \omega + i\gamma} \hat{J} | 0 \rangle \right\}$$

なお、下図にこのようなモデルにおいて基底状態で期待される電荷(粒子)配置、および、光励起状態として予想される多電子励起状態(ドメイン励起状態)の概念図を示す。

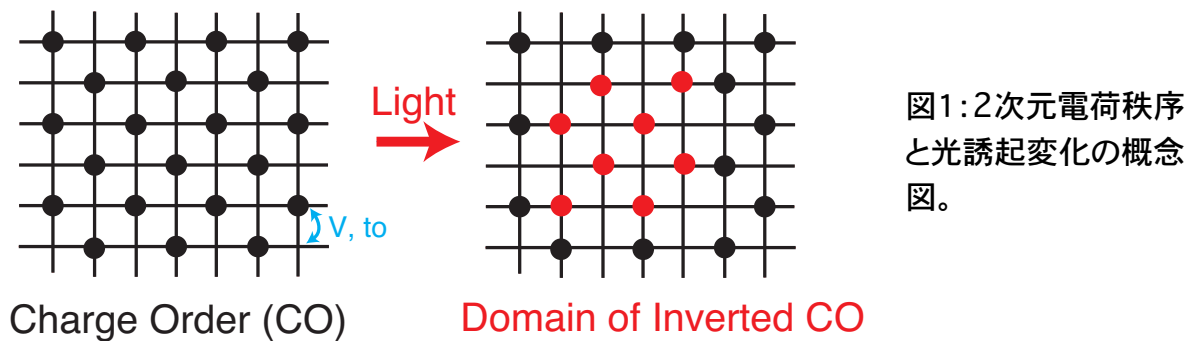


図1:2次元電荷秩序と光誘起変化の概念図。

このような問題を考える実験的背景は、主として分子性結晶における光誘起実験がある。すなわち、分子性結晶はシート状の原子構造をしており、各シートが比較的独立しているので2次元系と見なすことが出来る。さらに、その比較的低エネルギー領域を考えると、各分子あたり1つの分子軌道のみを考えれば十分で、そのような分子軌道を格子点に1つずつ置いて電子の状態を考える。もちろん電子はスピンを持っているが、各分子軌道に2個電子が入ったクーロン反発のエネルギーは他のエネルギースケールより大きいので無限大と近似することにより同じサイトの2重占拠は禁止され、同種スピンの数が2倍になったと見なすことが近似的に出来るようになる。実験に話を戻すと、東北大学の岩井等によってこのような系に光照射をするとある分子性結晶で1個の吸収された光子あたり100から250個の分子の価数が変わる、すなわち電子配置が変わることが分かった。(PRL 98, 097402 (2007))。これは1光子で数百の多電子励起が起きていると考えるのが自然であり、それを数値的に実証するのが本研究の目的となっている。

本研究期間以前の研究期間で、比較的小さな系、例えば、6×4、8×4の格子サイズの系で以下に示す「厳密対角化+連分数展開+共役勾配法」の手法を用いて調べてきた。その結果、このような多体励起状態の存在が強く示唆された。ただし、両サイズともに短い方の辺が4であるため、低エネルギー領域にバルクな無限系には存在しないはずの励起が混じ

ってしまう可能性がある。それ故に両辺ともに4より大きい6×6の格子サイズの解析が必要となった。また、同じく以下に示す密度行列繰り込み群法（DDMRG法）においては既に6×6の格子サイズを扱ってきたが、考慮する状態数に制限があり結果の信頼性に疑問が残った。

【本期間の結果】

まず、本方法における2次元系の計算方法を説明する。第1の手法としてDDMRG法であるが、2次元系においては図2に示されるようにXiang等によってかなり巧妙な方法が考案

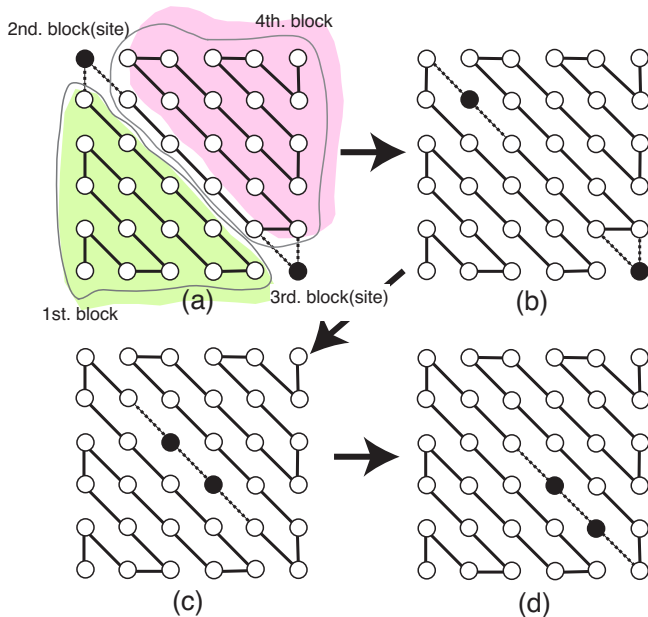


図2: DDMRG法のiterationの一部。
6×6の場合。

された。(PRB, 64, 104414, 2001.) 2次元系ではあるが、1次元系同様に複数サイトからなるブロック2つ（1st block と 4th block）と1サイトのブロック2個（2nd block と 3rd block）で全系を構成する。図中で(a)→(b)→(c)→(d)のようにiterationが進行するが、必ず既に済んだステップで更新されたブロックの情報を使えるので計算として破綻がない。また、これは6×6の場合だが、たとえば、7×7に進む場合は、6×6の情報を全部使って計算を進められる。その意味で無駄がないと言える。さらにその他の利点として正方格子を直接扱うので対称性が良く、最終結果のチェックがしやすいことも挙げられる。

（ただし、計算の途中ではブロックの対称性が低いので全体の空間対称性は使えない。）2次元である故にブロック間の相互作用が1次元系より多く、特に本計算で用いる周期的境界条件（PBC）の場合は上辺と下辺、および右辺と左辺が結びつくため、単純に相互作用の数が増え、必然的に非ゼロの行列要素も増える。PBCの場合は特にそれが負担となってきた。そこで、出来るだけ相互作用をまとめてしまい、行列演算の際の簡略化を図ることを試みた。これを行うと確かに速くなるが一方でメモリー消費という問題もある。

第2の手法では、いわゆるランチョス法により厳密に基底状態を求め、さらにその状態を基に連分数展開の手法により光学スペクトルを求める。そして、さらにいわゆる共役勾配法により励起エネルギーごとの状態のnatureを求める。ちなみに、いわゆるランチョス法でも励起状態は求まるが、その場合求まるのは比較的低い励起状態に限られるので、今

回のような大域的に励起状態を探索する場合は向かない。また、連分数展開の手法は展開数(連分数の段数)が有限に限られるが、もちろん収束するまで行うので実質的に厳密なスペクトルが得られる。ただし、そのままでは得られるのがスペクトルだけなので、各ピークごとのnatureは分からない。そこで、共役勾配法により若干の幅は付けるが各エネルギーごとの状態を決定していくことになる。

次に結果を紹介する。まず、図3に $V=3$ 、 $t_0=1$ の場合を2つの方法の結果を合わせて示す。この場合は比較的ギャップ (~ 8) が大きくある意味求めやすい状況となっているので最初のテストとして行った。図から容易に読み取れるように両者の一致はスペクトルに関してはほぼ完璧で、各エネルギーごとの電子励起数 (N_{ex}) についても大体の一致を示している。なお、この N_{ex} は前述の光学伝導度の表式中の基底状態に電流演算子およびレゾルベントを乗じた波動関数の虚部を規格化したものを通して求めた。この場合の N_{ex} は $\omega > 13$ 以上で1より大きくなっているがその領域のスペクトル強度はかなり小さく実質的に多体励起が期待出来ない。次に、 $V=2$ の場合はさらにギャップが小さくなり、 $\omega \sim 5$ 程度までにメインピークが下がる。この場合の多体励起は、正確には水色線 (CG=共役勾配法で求めた曲線) で表されると考えて良く、依然小さいが $\omega \sim 9$ 付近にその徴候が見て取れる。一方、 $\omega < 10.5$ でもそのような状態は存在するが $V=3$ の場合と同様、スペクトル強度的には小さい。一方、DDMRG法の場合(赤線) はスペクトルはエラーバーの範囲内でほぼ一致するが、 N_{ex} において厳密な場合 (CG) と差を示してしまう。これは各ブロックに取り入れた状態数 m (現在650)が増やしたものの依然十分でないことを意味していると考えられる。

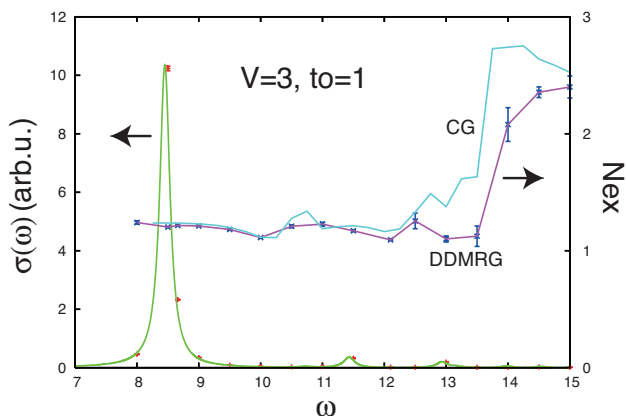


図3: 6×6 の格子サイズの計算結果。
 $V=3$ & $t_0=1$ の場合。 $\sigma(\omega)$ スペクトルのうち、実線は連分数展開により、赤い計算点はDDMRG法により求めた。右の縦軸は求めた基底状態からの電子励起数。

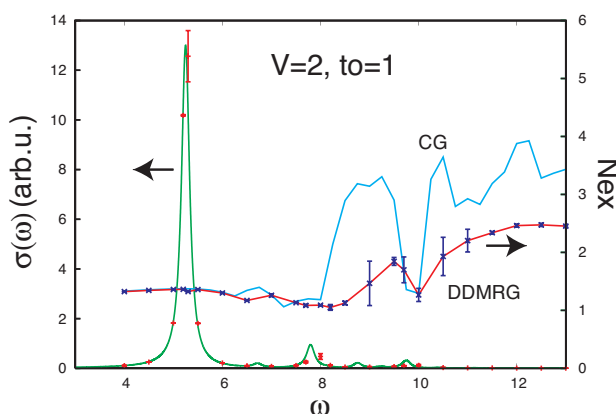


図4: 6×6 の格子サイズの計算結果。
 $V=2$ & $t_0=1$ の場合。

【今後の展望】

物理的には今回の結果はドメイン励起の検証という意味では一定の成果を得たが、しかしながらその強度は小さく、実験で主張されているような大きなドメイン励起には相当していない。そこで次の課題としては、次近接相互作用を対角線上に導入することにより、1種のフラストレーション的な状況を作り、ドメイン励起のウェイトを大きくすることを考えている。これは理論的な便法だけでは決して無く、実際の物質においても同じような相互作用考えられるからである。

次に手法的な課題として、上述のようにDDMRG法では相互作用をまとめるやり方で計算は大幅に短縮出来たが、一方でこの方法はまとめた部分を一時的に待避するためのメモリーを要してしまうという問題点も依然残る。既に述べたように今後さらに状態数 m を増やす必要があると考えている。そこで、この手法の現状を整理すると

- ①メモリーをそれほど使わなくても（数ギガバイト）計算出来るが、時間がかかる。
- ②メモリーを使えば速くなるが、メモリー容量によって計算出来るサイズが決まってしまう。

今回行った②の手法は大きなメモリーを有するシステムAでももうほぼ限界なので、今後は①の手法をシステムBを中心に展開していくことを考えている。