

研究題目：強相関電子系の相境界近傍におけるドメイン励起

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

【1次元 quarter-filled electron system】

まず代表的な強電子相関系（以下、強相関系）の1つとして1次元 quarter-filled electron system（以下、1/4系）を扱った。この系は、1次元的にサイトが並び、その各サイトに1個の電子軌道（スピンも含めると2個）があるとし、かつ、サイトあたり1/2個の電子が存在するシステムである。相互作用としては以下のような拡張ハバードモデルで記述されるとする。

$$H = -t_0 \sum_i (C_{i+1\sigma}^\dagger C_{i\sigma} + h. c.) + V \sum_i n_i n_{i+1} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$

ここで t_0 は最近接サイト間の電子のホッピング、 V は同じく最近接間のクーロン斥力、 U は同じサイト内のクーロン斥力である。数学的には単に「サイト」が良いが、物性としては実際の系に対応しているいろいろな意味を持つ。例えば分子性結晶では分子軌道であり、また、酸化物などでは金属原子の最外殻のd軌道などである。

1/4系では、電子が2サイトに1個なので、強い V が働くと、電子は互いに反発し合い1次元方向に…0101…と並ぶ。ここで、0と1は電子のサイトの占拠数である。しかしながら、有限の遍歴性(t_0)が存在すると量子ゆらぎが生じるのでこのような長距離秩序が実現するかは自明ではない。 U が無限大の極限では電子の2重占拠の確率をゼロに出来るので、その場合は占拠数の0および1を擬スピンのup/downと見なして異方的ハイゼンベルグモデル（XXZモデル）に変換できる。その場合、交換相互作用が $J_x=J_y=2t_0$, $J_z=V$ と書け、かなり昔の研究によって1次元ハイゼンベルグモデルの臨界点は $J_x=J_z$ であるので、そこからの類推で U が大きい場合の臨界点は $V=2t_0$ 付近であると予想でき、実際、 $V \sim 2.8t_0$ でこの系はorder-disorder転移を示す。このことは以前の研究によって確かめられており、筆者もまずそれを密度行列繰り込み群法(DMRG法)によって確認した。

この相転移は金属・絶縁体転移でもあり、電荷秩序のある側で絶縁体化して有限なギャップが開く。筆者が興味を持ち、また近年の光物性の大きなトピックになっているのはその

ようなギャップを超えて光励起した場合どのような変化が生じるかである。理論的にはこれは非平衡状態の問題でもあるし、また、光学励起状態の全体構造を明らかにするという性格を持つ問題であるが、実際に時間分解測定でダイナミクスを追跡できる事から純理論では終わらない奥の深い問題となっている。

筆者はこのような本質的にはダイナミックの問題に対してここ数年スペクトロスコピーの立場から取り組んでいる。その理由はリアルなダイナミクスの数値解析は未だ発展途上にあり、現状ではきわめて小さいシステムしか計算できず、その場合どこまで有限サイズ性を排除してダイナミックの特徴を結論づけられるか自明ではないからである。一方、スペクトロスコピーの場合は大きなサイズに対してもかなり精度良く出来るようになってきた。スペクトロスコピーなので、ある意味始状態と大きな光励起の行列要素を持つ系を優先的に検知する。従って、光励起後のかなり時間初期の状態にのみ議論が限定され、長い時間後の緩和の様子は議論出来ない。特に格子緩和が絡んで場合がそうである。(格子緩和が生じると原子位置そのものが変化するので通常行列要素はかなり小さくなる。)そこで本研究ではむしろ純電子的な超高速動力学という観点から研究を行っており、それはむしろ高速スイッチングなどの最近の応用上の関心にも合致している。

さて、上記のモデルに対してスペクトル計算用の動的密度行列繰り込み群法(DDMRG法)を用いて得た結果が図1である。ここでは $U=10t_0$, $V=8t_0$ の場合を示しており、特に重要なのは臨界点($V\sim 2.8t_0$)から遠く離れているにもかかわらず電子励起数(Nex)が1を大きく超えることである。これはすなわち、ここで励起されているのは確かにドメインだが、しかしこれは電荷秩序中の金属ドメインではなく、前者の異種相(0101に対して1010)であると解釈される。実際、励起状態における波動関数の様子を電子密度の期待値を通して検討してみるとその様な解釈で妥当である。これら両状態は相境界に関係なくいつも縮退しており、このドメインは二つの状態を結ぶソリトン・反ソリトン対と見なすことも出来る。なお、金属ドメインは全く出来ていないかというそれはまだはっきりしない。前提となる事実としてこの相転移は連続転移であることが既に分かっている。故に1次ではないのでドメインは出来にくいのはある意味理解しやすいが、相転移近傍の揺らぎは大きい状況下の金属ドメイン形成の可能性はまだ完全には否定出来ない。なお、サイ

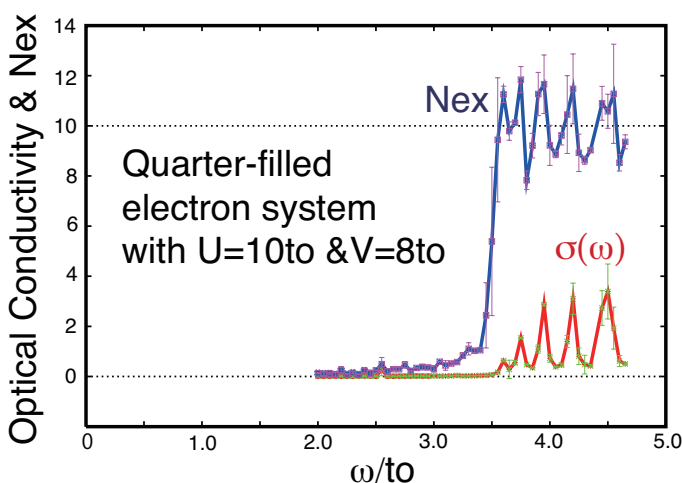


図1:1/4系のスペクトル。60サイトの系の計算。 $\sigma(\omega)$ が光学的伝導度で、Nexは各エネルギーにおける粗視化された電子励起数。

ト間のホッピング(t_0)を1次元方向に…大、小、大、小…とすると金属相は絶縁体化し、いわゆるダイマーモット状態になる。その場合は相転移点の両側で絶縁体であるので転移次数が1次になる可能性がありその場合の相転移転近傍の光励起状態が興味深い。

【2次元 quarter-filled electron system】

1次元系に対し、2次元系はむしろ現実の物質として例が豊富である。また、ドメイン励起の次元性依存性もきわめて興味深い。そこで、19年度は2次元系の研究に着手した。モデルは上述のハミルトニアン of 自然な等方的拡張であり、同じパラメーター名称を以下用いることにする。

まず、計算方法と実際のその振る舞いについて述べる。2次元DMRG法についてはスピノ系に対してXiang等によってかなり巧妙な方法が考案された。(PRB, 64, 104414, 2001.) 筆者はこの方法を電子系に適用してプログラム開発を行い基本的なところは19年度で終える事が出来た。具体的な方法だが、図2にあるように基本的には2次元系を1次元化する。この図では6x6の系を示しているが、4つの部品 (block) から全体 (super block) が構成されるのは1次元の場合と同じである。なお、各ブロックはまず一つ小さい系 (この場合は5x5) で作られて用意され、それを基にこの系で更新され最適化される。

このようなやり方で、7x7までを計算し、基底状態エネルギーと以下に定義されるスペクトル強度 $\sigma(\omega)$ を求めた。

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

ここで $|0\rangle$ および E_0 は基底状態およびそのエネルギー、 J は電流演算子である。

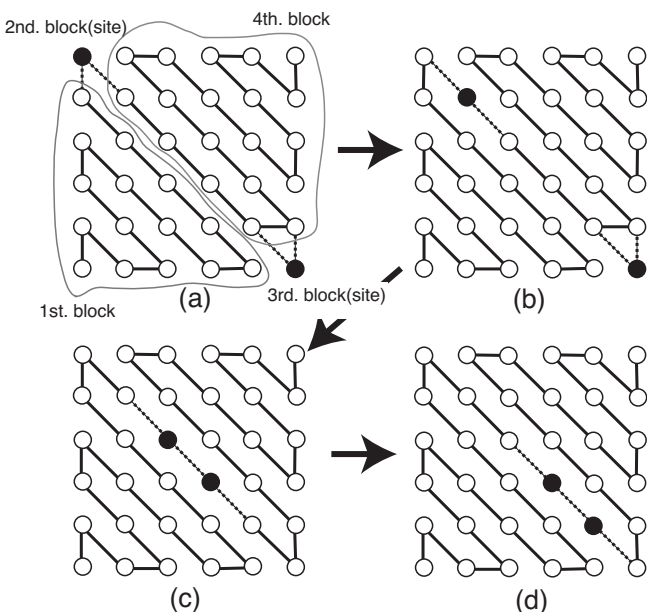


図2:DDMRG法のiterationの一部。6x6の場合。

実際にこのようなやり方でテスト計算をしてみると収束の度合いは ω の値やサイズ値にかなり依ることが分かった。計算がまだまだ重く、それほどいろいろな場合を行っていないが、 ω が小さいほど収束が速く、また、 $n \times n$ サイズとして n が奇数の場合にスムーズな収束になることが分かった。後者は、open boundary conditionの偶数サイトにおいては2種類の異なる電荷秩序状態が基底状態として縮退し、その混成のために収束が遅れるのに対し、奇数サイトでは縮退が解け一方の状態のみが実現するからと解釈される。

現在までにいくつかの場合を扱った。まだまだ物理的な全体像までは描けていないが、例えば、 $U=10t_0$ and $V=4t_0$ の組み合わせでは確かに 7×7 までの系においてチェッカーボード型の電荷秩序が基底状態に発生する。そして、扱ったどの ω ($3t_0$, $7t_0$, $8t_0$, and $9t_0$: 周期系 4×4 の厳密対角化から光学ギャップは $7t_0 \sim 8t_0$ と推定)に対しても 5×5 の系で

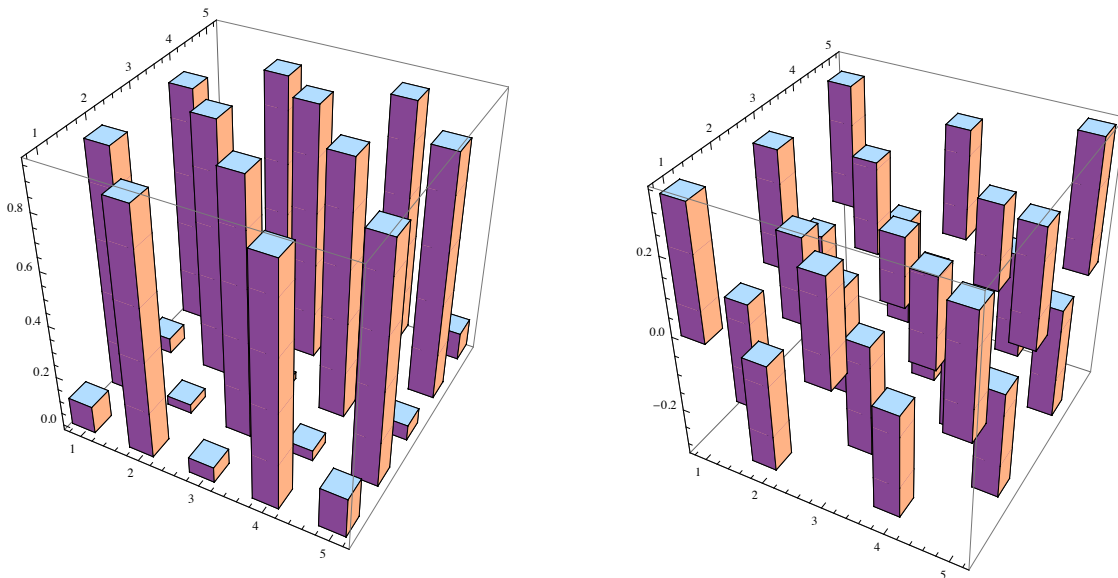


図3: (左) 5×5 の2次元系の基底状態の電荷分布。(右) $\omega=7t_0$ の励起状態中の電荷分布の基底状態からの変化分。

3以上の電子励起数を観察した。通常のアナロジーでは平均場近似およびそこから出発した摂動論 (RPA 近似など) では光励起の電子励起数は1程度なのでこの3以上の数値は当然多対効果に基づく。さらに詳しく考察するために、図3 (左) に基底状態の電荷分布、(右) に $\omega=7t_0$ の励起状態中の電荷分布の基底状態からの変化分を示す。左図はチェッカーボード型の電荷秩序の2状態ある内の1種類であり、既に述べたようにopen boundary conditionであるのでこちらが選択的に最低エネルギーになっている。これに対し、右図の励起状態はもう一方のチェッカーボード型電荷秩序のパターンが形成されたことを意味し、この特徴は前述の1次元系のアナロジーで理解しやすい。今後はこのような状態の普遍性をさらにいろいろな場合を探索して明らかにしていく予定である。

3. 口頭発表、論文のリスト

【口頭発表】

○日本物理学会 第63回年次大会 2008年3月23日、領域5 23aYG1
岩野薫 「中性イオン性相転移系における放射光による直接的ドメイン形成」

○ Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems, Gordon Conference, Feb. 3-8, 2008, Il Chiocco, Italy, K. Iwano, "Ultrafast photoinduced phase transitions without lattice motion"

【論文】

○K. Iwano and Y. Shimoi, Phys. Rev. B 77 075120 (2008).

"Large Electric-Potential Bias in an EDO-TTF Tetramer as a Major Mechanism of Charge Ordering Observed in Its PF₆ Salt"