

# 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かった。

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においては、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、第1、2図に示すような光学伝導度スペクトルを得た。

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

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

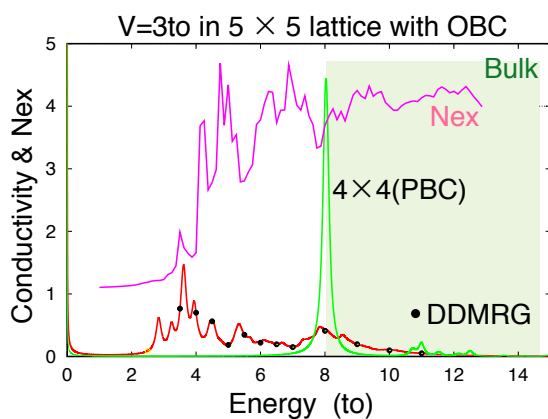


図1: 5×5の系の計算結果。黒点=DDMRGにより求められた光学伝導度、赤線=厳密対角化による光学伝導度、紫線=DDMRGによるNex(励起電子数)。緑線は、周期的境界条件の4×4の結果。

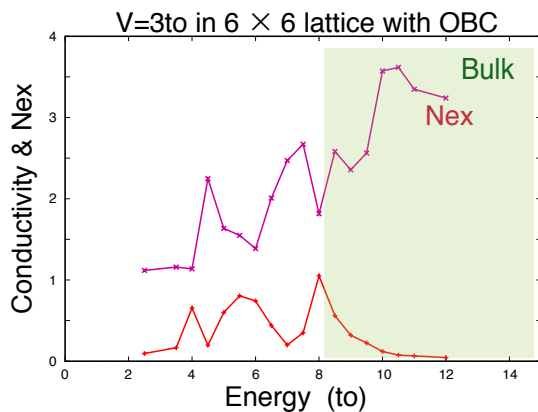


図2: 6×6の系の計算結果。赤線=光学伝導度、紫線=Nex。結果はすべてDDMRG法によるもの。

ここでは、開放境界条件 (OBC) が用いられており、図3左に示すようなチェッカーボード状の電荷秩序 (CO) 状態が基底状態で実現している。特に大きい方のサイズの6×6格子の結果を見ると電子励起数(Nex)が大きい励起状態が励起エネルギー10to以上に見られ、この系におけるドメイン的状态の存在を示唆していた。また、低い励起エネルギーの4~7toにも大きなNexの状態が見られた。後者は明らかにバルクの光学ギャップ内にあるのでOBC由来のクラスター端に局在した励起と考えられる。(OBC由来ではあるが、端にこのような非自明な励起が存在しうることをこの結果は明確に示している。)

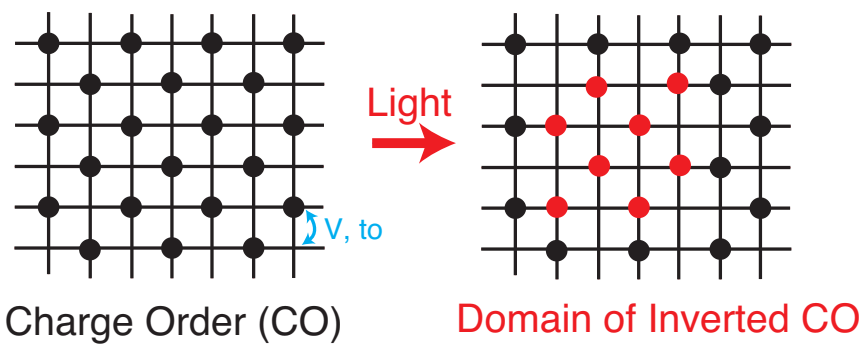


図3:2次元電荷秩序と光誘起変化の概念図。

【本期間の結果】

上記の結果は繰り返しになるがOBCの場合であり、当然のことながら正方格子のクラスターがむき出しになっている。従って端や頂点の効果が疑われ、バルクな系の結果として受け止めるには疑問が残る。そこで、本期間においては周期的境界条件（PBC）を適用し、辺や頂点の効果を無くすことを試みた。

本方法におけるPBCの計算の実際を説明する前にまず2次元系の計算方法を説明する。2次元系においては図4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された。(PRB, 64, 104414, 2001.)

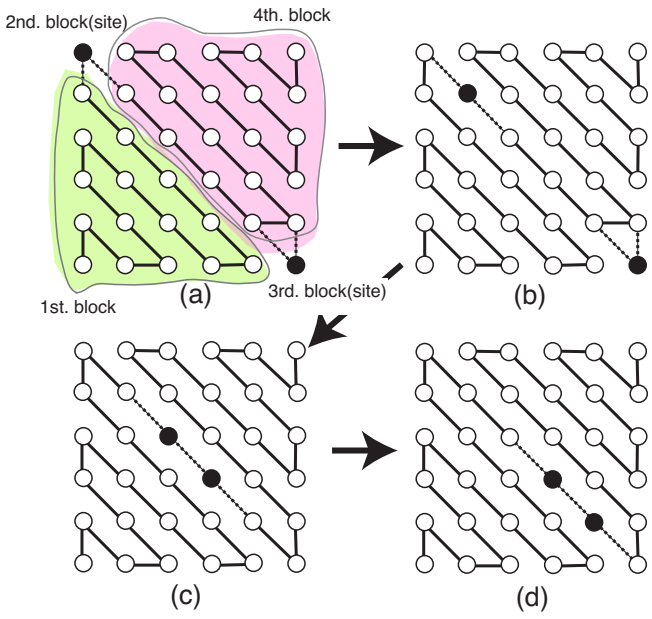


図4:DDMRG法のiterationの一部。6×6の場合。

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。）

次にPBC特有のことを述べる。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。もちろんOBCの場合も2次元系に比べれば行列要素の数が多く同種の問題は存在していたが、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。

このようなやり方で、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 $\sigma(\omega)$ を図5のように $6 \times 6$ のサイズの系に対し $V=2t_0, 3t_0$ を用いて求めた。

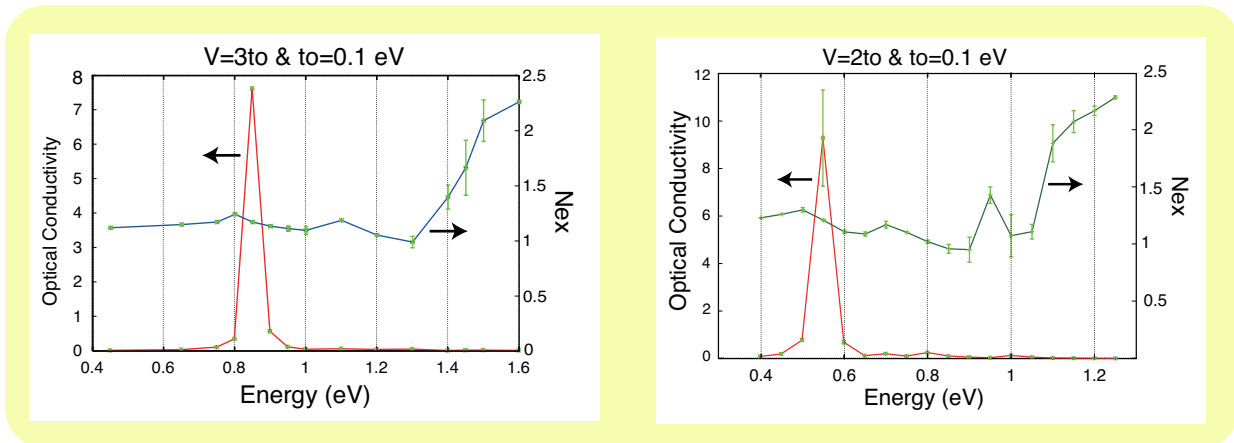


図5:PBCを課した $6 \times 6$ の系における光学伝導スペクトル。パラメータは $V=2t_0$  および  $3t_0$ 。実際の物質を念頭に置いて、 $V=0.1 \text{ eV}$  とした。

まず、計算そのものは想定通り成功しているように思われる。特に、鋭いメインピーク（エネルギー位置： $\sim 0.85 \text{ eV}$  for  $V=3t_0$ ,  $\sim 0.55 \text{ eV}$  for  $V=2t_0$ ）が両パラメータに明瞭に観察され、これはチェッカーボード上の電荷秩序状態中で電荷が1個隣に移動した励起に相当すると考えられる。このような状態は電子正孔対が強く束縛したいわゆる励起子とも見なすことが出来、それがこのような鋭いピークとなって現れる理由と解釈される。実際、1次元系においてはそのような効果をもっとも顕著で理論的にも実験的にも既に確立している。一方で2次元系においてはこのような励起子由来のピークの先鋭化というのは常識ではなく、むしろ次元性が上がって電子の遍歴性が増すためにスペクトルはブロードになると信じられてきた。今回の結果はその常識に反するわけだが、その鍵は用いたスピンレスモデルにあるかもしれない。実際、本方法ではまだ計算していないが小さいサイズにおける厳密対角化の方法でスピンフルモデルも既に計算しており、その場合は対応するメインピークはかなりブロードになる。従って、2次元系におけるスペクトルのブロードかはスピン自由度に起因する、つまり、光学励起に伴う同時スピン励起のような描像が正しい可能性がある。なお、この鋭いメインピークは図1において同時に示されている $4 \times 4$ サイズのPBCの結果（厳密対角化）とも整合している。

次に多電子励起の効果に着目する。まず、OBCにおいてメインピークより低エネルギー側にあった多電子励起的な励起は完全に消えた。これはPBCを用いてクラスター境界を無くしたので当然のことであり、この事も本結果の正当性を裏付けているように思われる。

一方、OBCにおいてメインピークより高エネルギー側にあった部分はスペクトル強度的にも、また、電子励起数的にもより顕著でなくなった。従って、OBCにおけるこの部分の結果には端の効果が多分に含まれていたことになる。しかしながら、強度は弱いながらも例えば、 $V=3t_0$  の場合は、1.45 eV (14.5  $t_0$ ) 以上に2電子励起的な成分が認められ、こういった多体効果がやはり存在することはこの種の系の理解に欠かせないと同時に、本手法の精度の高さを示しているように考えられる。

### 【今後の展望】

上述のように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残る。以上手法の問題点を整理をすると、

- 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。

将来的にはK E Kスパコンの更新が間近であり、各ノードのメモリー容量も増えるため②の方法が現実的な場合が増えると期待される。また、①の方法の場合はノード間並列化で解決することも考えられる。今までの経験から実用的な並列度は4程度までと考えていたが、最近の他グループの研究を参考にすると並列度を大幅に増やせる可能性もある。いずれにしてもどちらの方法もそれぞれ発展させる余地があるので両睨みでケースバイケースで取り組む予定である。