

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

筆者はここ数年いわゆる「光誘起相転移」の問題にスペクトロスコピーの立場から取り組んでいる。この問題は本質的にはダイナミクスの問題であるが、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クス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だ場合がそうである。（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。

【2次元系におけるドメイン形成】

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年度から2次元系の研究に着手した。モデルはスピン自由度を排したいいわゆるspinless modelであり、サイト内のクーロン斥力無限大の極限に大まかには対応している。

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法についてはスピン系に対して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1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6×6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、各ブロックはまずは一つ小さい系 (この場合は5×5) 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。なお、以下の計算は計算量を減らすためにすべてopen boundary condition (OBC)を用いている。

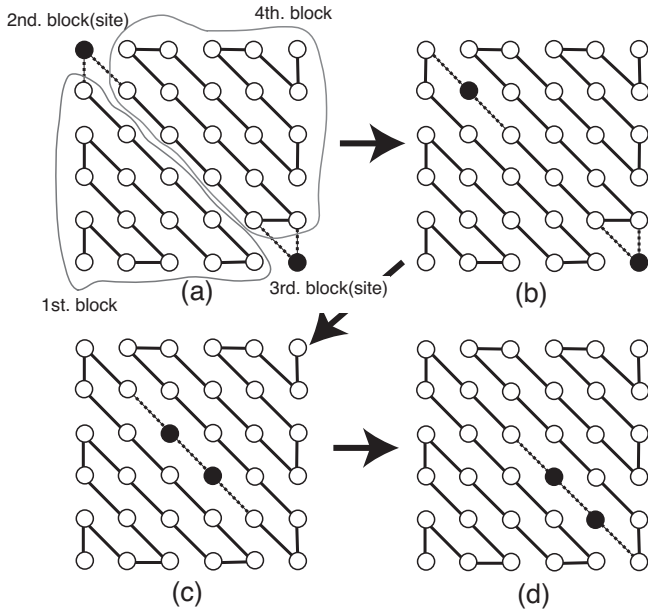


図1:DDMRG法のiterationの一部。
6×6の場合。

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。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、OBC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。そこで n が偶数の場合、正方格子の4隅に比較的小さいサイトポテンシャルを配し、一方の状態のみが選ばれるように調節をした。

このようなやり方で、2次元spinless half-filled electron systemを考察した。なお、今回は簡単のためにスピンレスモデルを用いている。スピンレスなので、各サイトあたり1個の電子のみを収容し、従って、half-filledの場合、半分のサイトが電子によって占められている。以下にハミルトニアンを示す。

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

ここでは隣り合ったサイト間のクーロン斥力 (V) とトランスファー積分 (t_0) のみを考慮しており、そのような場合、図2左に示されるような電荷秩序が臨界点 (V_c/t_0) 以上で実現していると考えられる。そこで我々は、図2左の状態に光を照射し、どのような変化が起きるかをやはりスペクトロスコピーの手法により考察した。

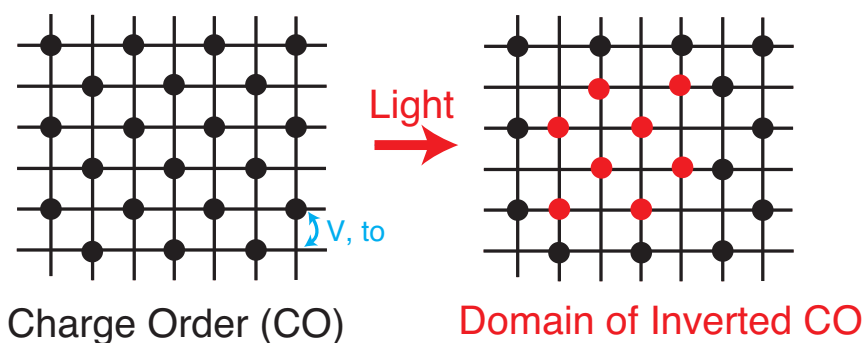


図2:2次元電荷秩序と光誘起変化の概念図。

まず、19年度に得られたスペクトル(5×5および6×6の系)をそれぞれ図3と4に示す。

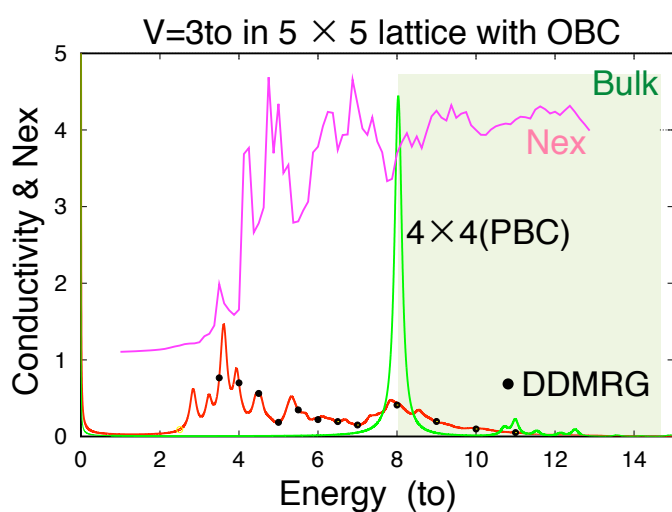


図3:5×5の系の計算結果。黒点=DDMRGにより求められた光学伝導度、赤線=厳密対角化による光学伝導度、紫線=DDMRGによるNex(励起電子数)。緑線は、周期的境界条件の4×4の結果。

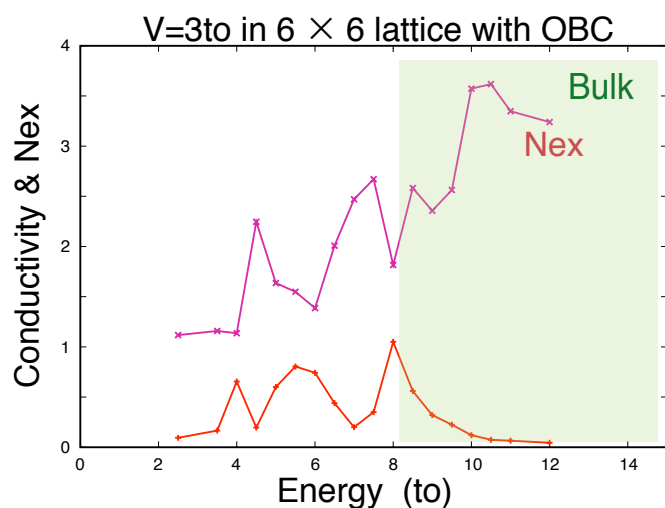


図4:6×6の系の計算結果。赤線=光学伝導度、紫線=Nex。結果はすべてDDMRG法によるもの。

まず、図3において下部の連続線が厳密対角化によって求められたもの、一方、黒丸がDDMRG法により求められたものであり、数値計算的に実際上問題ないほど正確に求められていることが分かる。(なお、厳密対角化によって求められる正方格子はこのサイズま

である。)次に物理的な側面に注意を向けると、 $E=8$ 以上がbulkな寄与に対応し、それ以下は境界 (=coners+edges) の寄与となることが、 4×4 の系 (周期的境界条件 (PBC) 付き) の結果との比較から分かる。さらに、励起電子数 (Nex) が境界もさることながら、bulkな部分で1から大きく増加している。この励起電子数は、1個の光子で励起できる電子数を意味しており、これ外から大きく増加しているのが多体効果、つまり、ドメイン励起である。

次にサイズ依存性を議論するために 6×6 の系を図4において詳しく見る。 5×5 の系と比較して、bulkの $E\sim 8$ の最低光学励起のNexが小さくなっていることが分かる。このことから、最低光学励起はドメイン励起ではなく、励起子的ではないかと推測できる。すなわち、1次元系では相境界に近づくにつれて励起状態全体がドメイン的になるのに対し、2次元系では

「最低光学励起は励起子的、それより上はドメイン的」

という励起状態構造を持つように思われる。 5×5 の系では最低光学励起でもNexが1より大きな値を有していたが、それはより低い境界の寄与が重なっていたから、と解釈する。

さて、ここからが20年度前半の結果であるが、以上のようなDDMRG計算ではスペクトルでは当然のことながら個々の励起状態波動関数が分からない。そのためにNex値など、物理量の期待値も同時に求めるようにはしているが、2次元系のより詳細な性質を理解するためにはサイズは小さくなるが厳密対角化の手法も出来るだけ行っておくことが重要と考えた。幸いなことにこのスピンレスモデルでは比較的大きなサイズ、すなわち、

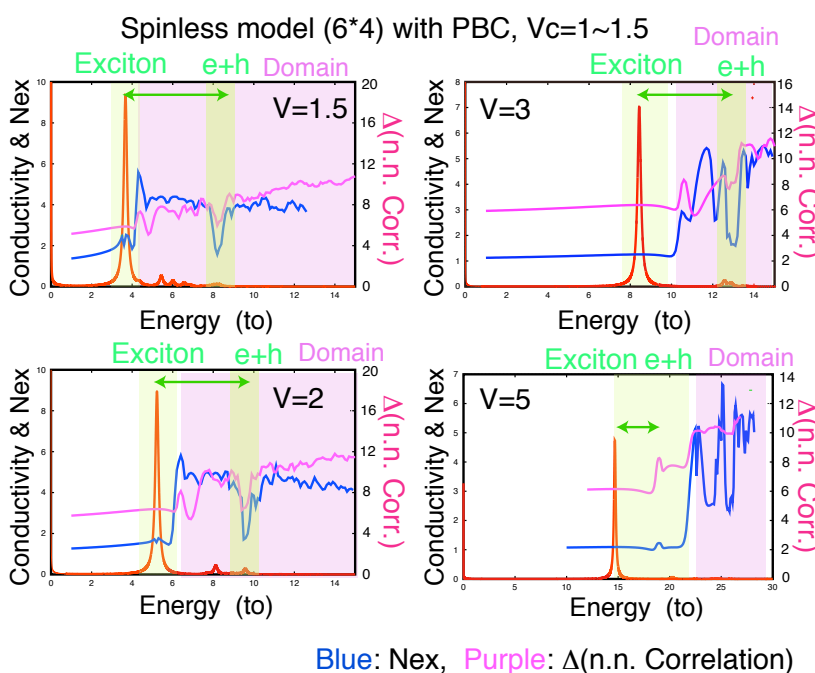


図5: 6×4 格子の結果。厳密対角化による。赤線: 光学伝導度スペクトル、青線: Nex, ピンク線: 最近接相関の増加分。

6×4の格子が厳密に計算できる。その結果をV依存性 (toを単位として) も含めて図5に示す。ここではスペクトル、Nex値に加えて、最近接相関値 ($\Delta(n.n.Corr)$) の基底状態からの増加分もエネルギーの関数としてプロットしている。ちなみに最後の量はドメインの周長に関係していると思われ、Nex値がドメインの面積に対応していることを考え合わせると、2次元格子内におけるドメインの様々な形状を同定できることになる。また、そうやって得た同定と直接波動関数を解析して得た情報が一致することも実際確かめた。

より具体的に説明すると、まず、 $V = 5$ では、1励起子状態(Exciton)が最低励起状態として存在し、その少し上に自由(非束縛)電子正孔対(e+h)、さらにその上にドメイン状態(Domain)が存在している。このドメイン状態は金属相ドメインと言うよりは、図2に示すような反転した電荷秩序相(電荷の有り無しが入れ替わった相)と解釈できる。Vを小さくしていくと、1励起子状態はほぼその性質を保ち続けるが、それより上の励起状態は性質が大きく変わり、特に $V = 1.5$ ではそのほとんどがドメイン状態となっていることが分かる。このドメイン状態がより支配的になる理由は、Vの減少により2つの電荷秩序相を隔てるポテンシャル障壁が小さくなったためと考えられる。さらに、同じドメイン状態でもNex値や最近接相関値に違いがあり、それはドメイン形状の違いであると解釈できる。

【1次元ドメイン形成における量子散逸】

次に1次元系に戻り、ドメイン生成過程、すなわち、ドメイン壁運動における量子散逸について述べる。まずこのようなことを考える動機であるが、最も単純に1次元系の場合、ほぼ相境界上にある場合を想定すると、ドメインの内部エネルギーは基底状態のそれとほとんど変わらないため、一旦出来たドメインはそのままと無限に大きくなりえる。それは別な言い方をすると、両側の2つのドメイン壁が互いに反対方向に運動を続ける事に相当する。しかしながら、実際の物質における観測例を見ると、かならずある時間でこのような成長が止まる、すなわち、飽和しており、それは物質にも依るが数10フェムト秒のオーダーである。このような飽和の原因はいろいろ考えられ、例えば、①実は相境界から実質離れており、エネルギー的に限界に達した、②隣り合うドメインの間の空隙が無くなり、1種のspace fillingが起きた、などであるが、最も理論的に興味深いアイデアとしてはドメイン壁が摩擦を受けて止まった、という解釈が挙げられる。そこで本期間はこういった問題の定式化および予備的な計算を試みることにした。

まず、前提として重要なことは連続励起かパルス励起か、ということである。前者のことをレーザー物理ではcontinuous wave (CW) と通例言うようであり、ここでもその用語を用いる。また、後者は言葉通りパルス光により励起をするもので、最近ではパルス幅を数フェムト秒から場合によってはアト秒まで短くすることが出来、余談になるがこういった技術的進歩が超高速分光測定の実現を支えてきた。CW光の場合は励起が続くために生成ドメインの空間サイズの分布は最大値からゼロまでとなる。一方、パルス光の場合はある時間で励起が途切れるためにドメインの空間サイズはある範囲に分布し、その中心値が

時間とともに増加する。空間サイズを一種の力学的変数と見なした場合、これはその変数の1種の波束と考えることが出来る。本期間はより考えやすい後者の場合をまず扱った。

パルス励起の場合の波束の運動は必然的に存在する量子拡散、すなわち、波束幅の増加を別にするとほぼ一定速度の等速運動である。この一定速度はドメインの空間サイズという力学変数の分散に付随した群速度に他ならない。可視光および近赤外光による励起の場合は全運動量がほぼゼロであるので、ドメインの重心運動量もほぼゼロであり、いわば空間のすべての点を基点として各点ごとにドメインが広がっていくというイメージである。ほかの自由度がない場合、このようなコヒーレントなドメインの広がりには既に述べたように無限に続いてしまうが、もちろん実際の系にはさまざまなデコヒーレンスがある。その最も現実的なものとしてフォノンがあり、今回はそれとの相互作用を取り込んで「ドメイン-フォノンモデル」を構築し、摂動論的な取り扱いを行った。

図6にその結果を示す。まず、"0th Order"と記してある青線がフォノンとの相互作用の無い場合である。縦軸はリニアースケールなので、この条件設定で波束としてwell-definedであることが分かる。これとは対照的に、相互作用を1次もしくは2次まで取り入れた場合の波束がそれぞれ緑線および赤線で示されており、その場合は波束の形状は相当インコヒーレントなものとなっており、相互作用の重要性を示唆している。さらには、このようなインコヒーレンスにより当然のことながら波束の進行、つまり、ドメイン成長は遅れることになる。相互作用を取り入れる次数を上げるとその減速の度合いも大きくなることから、このような観点がドメイン形成の動力学に重要であることが理解できた。

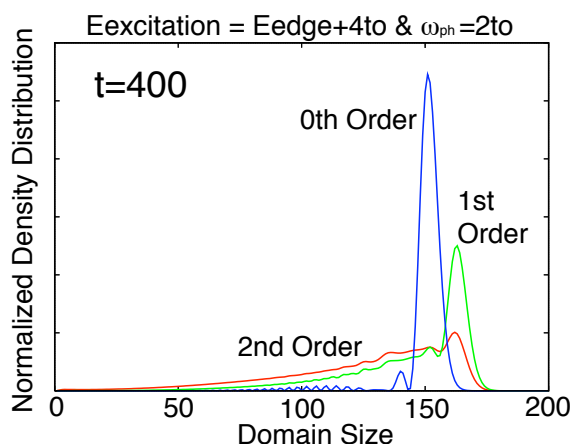


図6:ドメイン壁波束に対するフォノン散逸の効果。ここで t は光励起後の経過時間で、 $1/(\hbar\omega)$ の単位であり、 $t=400$ はおよそ260 fsに相当。また、パルス幅(Δt)は30である。波束は右方向に運動中。