

研究責任者名 Name	岩野薫	所属機関 Affiliation	高エネルギー加速器研究機構
受理番号 Proposal No.	12/13-11	研究課題名 Program title	強相関電子系における光誘起相転移の数値的研究

研究を終了しましたので、下記の通り報告します。

成果の概要

Abstract

(和文) 低次元電子系に光照射を行った後に予想される巨視的状態変化、すなわち、光誘起相転移のメカニズム解明のために、2次元正方格子スピinlessフェルミオンモデルの光学伝導度スペクトルを考察した。用いた手法は、 6×6 までの格子サイズで厳密に実行出来る基底状態決定のための「ランチョス対角化」とスペクトル計算のための「連分数展開」、そして、現時点では多少の制限が残る励起状態における平均値を決定する「共役勾配法」の手法である。今回は特に最近接サイト間クーロン斥力に加え、次近接相互作用も考慮し、1種のフラストレーションを導入した。特に光学状態中の多電子励起成分について詳しい解析を行ったところ、まず、基底状態においてチェッカーボード型電荷秩序が残存している領域を確かめ、次にそのスペクトル中の多電子同時励起成分がフラストレーション無しの場合と比べて増強されていることを見出した。

(英文) For the purpose of investigating macroscopic phase changes expected after the photoexcitation of low-dimensional systems, we have analyzed the optical spectra of a square-lattice system of spinless fermions. The method is the combination of three methods, which are Lancos diagonalization for the ground state, a continued fraction for the spectrum, and the conjugate gradient method for the averaged values for the excited states. In this program, we have particularly focused on the role of "frustration" that originates from the new introduction of the intersite interaction working between the next-nearest sites. As a result, first, we have confirmed a specific parameter region in which the checker-board type charge ordering survives, and, second, made it clear that the components of many-fermion simultaneous excitations are truly enhanced by the frustration.

研究成果を公開しているホームページアドレス

研究成果の 公表	口頭研究発表 件数	査読付きの 学術論文数	プロシーディング 論文数	その他 (投稿中を含む)
	2			

成果の公表リスト（それぞれの枠に番号をつけて記入願います。）

口頭研究発表 Presentations at scientific meetings concerning the program	
1. 2013年9月25日、日本物理学会秋季大会、岩野薫、「2次元電荷秩序系におけるドメイン励起の可能性」	
2. 2013年12月2日、東北大学金属材料研究所「電子誘電体の新展開 -光と分極がおりなす新物質相-」研究会、岩野薫、「分子性結晶における超高速電子転移」	
査読付きの学術論文(雑誌名等には 巻、頁、発表年を記載) (*) 不足する場合には追加願います。 Refereed Journal Articles (name of journal, volume, page, year)	
1	著者名 Author
	タイトル title
	雑誌名 name of journal
	URL
2	著者名
	タイトル
	雑誌名等
	URL
3	著者名
	タイトル
	雑誌名等
	URL
プロシーディング論文(雑誌名等には 巻、頁、発表年を記載) (*) 不足する場合には追加願います。 International Conference Proceedings (name of journal, volume, page, year)	
1.	著者名 Author
	タイトル title
	雑誌名等 name of journal
	URL
2.	著者名
	タイトル
	雑誌名等
	URL
3.	著者名
	タイトル
	雑誌名等
	URL
その他 (学位論文、紀要、投稿中の論文を含む) (URL を記載) Others (thesis for a degree, bulletin, papers to be published, etc.)	
1. URL:	
2. URL:	
特記 (本研究に関係した、新聞記事・著作、受賞など) (過去に遡っても構いません。) Special Notes (newspaper article, literary works, awards, etc.)	
1.	
2.	

大型シミュレーション研究・実施報告書

研究題目：強相関電子系における光誘起相転移の数値的研究

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。

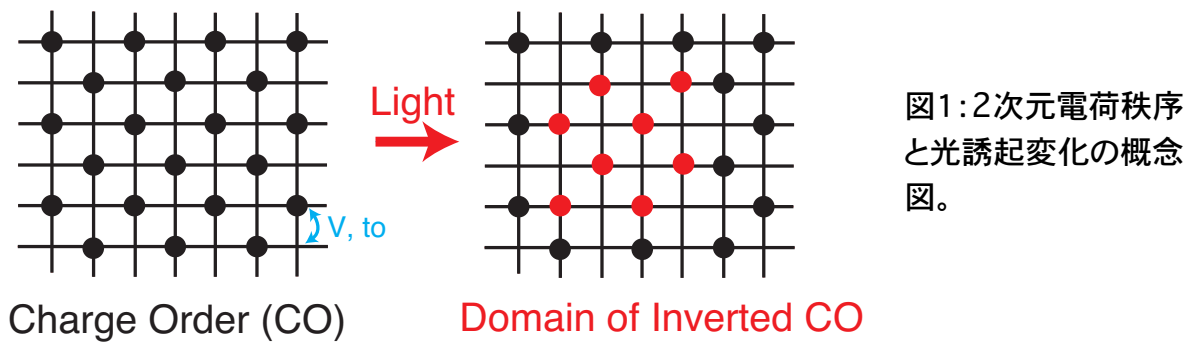
しかしながら現在の理論の問題点として、電子相関の強い2次元系を正確に扱う手法が必ずしも確立していない。特にスペクトルを扱う方法に乏しく、前述の「擬ギャップ」のように電子相関の特徴的な効果がスペクトルスコピーを通じて見出されていることを思い起こすと、これは今後の理論研究の大きな壁となる。さらには、光誘起相転移の場合、言うまでもなく光励起状態の問題であり、その理論的な解明のためにも励起状態を正確に扱える手法を必要としている。

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。

$$H = -t_0 \sum_l (C_{l+1}^\dagger C_l + h.c.) + \sum_{\langle l, l' \rangle} V(l-l') n_l n_{l'}$$

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

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。



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。前期間においては、実際に6×6の系において計算を行ったが相互作用V(|-|')を最近接までに限った場合(前頁ハミルトニアンを参照のこと)は多電子励起の成分は有意に求められるものの、その程度が小さいことが分かっていた。

【本期間の結果】

本計画では、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(CG)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、原理的にはランチョス法でも励起状態は求まるが、その場合安定に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。

今回は特にフラストレーションの効果に注目した。フラストレーションの効果としては、ごく簡単に次の図のように説明出来る。

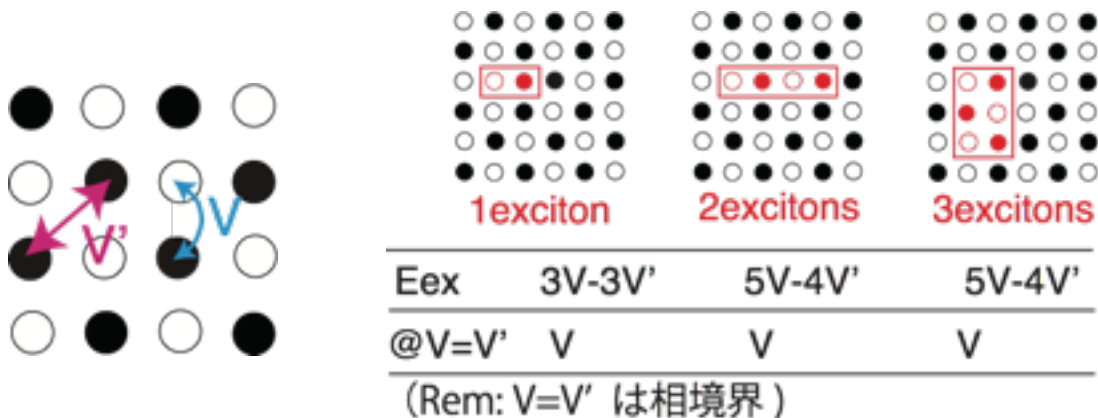


図2: 今回扱う斥力相互作用。

図3: 各励起と局在極限でのそのエネルギーの評価。

ここで左図は今回扱う斥力相互作用を示しており、これまでの最近接相互作用Vに加えて次近接(対角線方向：右上がりのみ)V'を導入している。右図に考えられる励起状態の幾つかをその局在極限でのエネルギーと一緒に示しているが、V'の導入によりこれらの励起状態間のエネルギー差が縮まっていくことが理解されると思う。(特にV=V'の場合は、これらが完全に縮退する。)

以上は既に述べたように局在極限、すなわち、 $t_0=0$ の場合であり、ある意味古典極限である。t₀の導入により量子効果が入るのでそれをきちんと取り入れるために前述のような手法で計算をする。

なお、現段階の制約として、CG法ではメモリーの問題により全ヒルベルト空間ではなくある種の制限を扱う状態に加えている。すなわち、図2左に示されるように完全にチェッカーボード型ならばボンド数=0、電荷(黒丸)が隣り合うごとにボンド数が増えていくと定

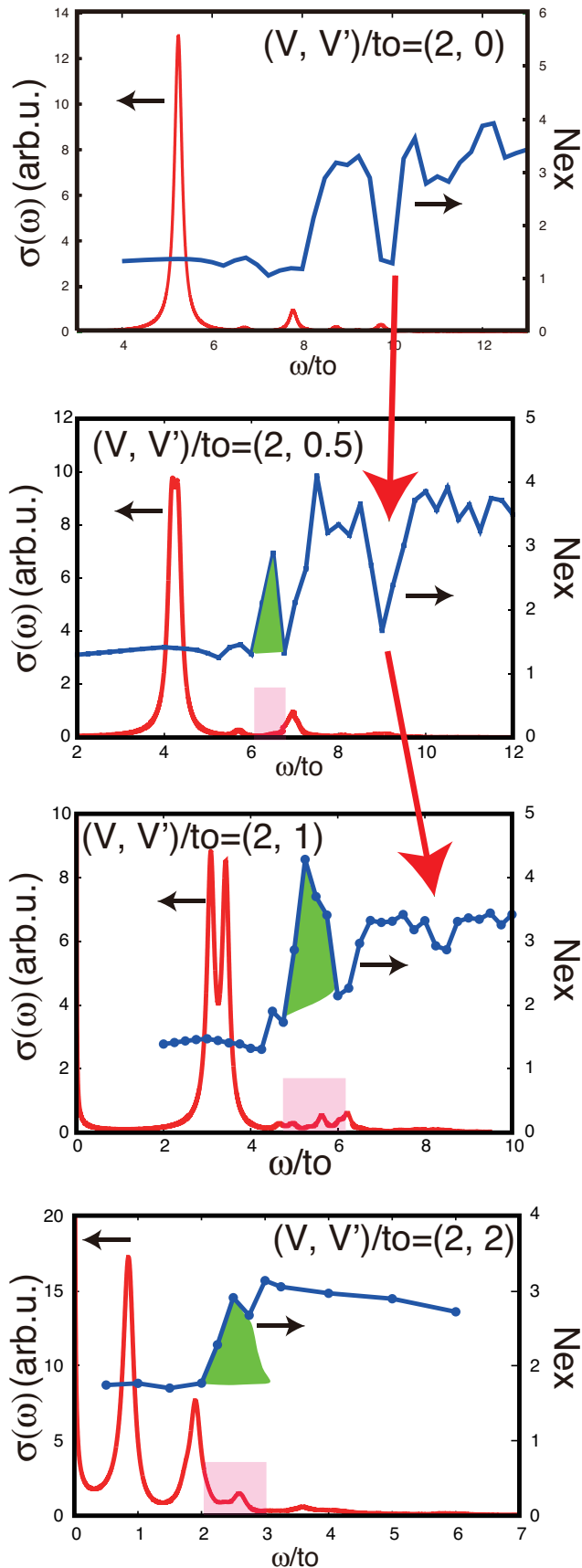


図4: 6×6 の格子サイズの計算結果。
 $V=2$ と $t_0=1$ の場合、 V' を各図にあるように可変にした。最大ボンド数を14と制限を加えている。緑色の部分に対応する多電子励起成分。赤矢印の部分は自由電子正孔対のエネルギー位置の変化を示す。

義して、最大ボンド数に上限を設ける。以下に示す結果ではそれを14としている。なお、基底状態ランチョス法や連分数展開の場合は制限無く厳密に出来るが、以下の結果では全部を最大ボンド数14で統一している。最大ボンド数（フルに行う場合は30になる）に制限を設けていることの是非であるが、最大ボンド数20の場合との比較を行った。最大ボンド数20のスペクトルはフルに計算したスペクトルと見た目では差が全く無いのでこれを代替りのレファレンスとする。重要な物理量、電子励起数 N_{ex} については最大ボンド数14と20では後者の方がやや大きい。従って、以下で評価される N_{ex} はやや過小評価になっていると考えられる。

図4に主要な結果を示す。最も注目すべきは、緑色で示した部分であり、これはフラストレーション導入の結果新たに出現した多電子励起成分に対応する。この部分が多電子励起であることは右軸の N_{ex} が3~4という1より大きな値であることから判別出来る。もちろん、全体的に多電子励起成分は青曲線で示されるようにあることはあるのだが、特に $(V, V')=(2, 0)$ の場合のようにその部分の光学伝導度(赤曲線)が小さく、実質的に光励起出来ないためあまり意味がない。一方、今回新たに見出した成分はピンク色の長方形で示されるように実質的に有意な強度を持っており、このような部分への光励起の結果としての多電子励起、つまり、サイズは小さいが1種のドメイン生成が予想される。

なお、ここで示したすべての場合において基底状態で図2左に示されるようなチェッカーボード型の電荷秩序はまだ残っていることは相関関数より確認済みである。しかし、フラストレーション導入で基底状態における量子揺らぎが大きくなっており、上記で「電子励起数」というのはその効果を差し引いたものである。

【今後の展望】

今回の結果で定性的にはフラストレーションの重要性は示すことが出来たと考えるが、しかしながらその効果をもっと明瞭に顕在化するパラメーターを見出すことが必要と考える。また、今回は電子励起数にのみ着目したが、得られたcorrection vectorを用いて相関関数などの解析も行い、励起状態の性質についてより詳しい理解も得たい。

次に手法的な課題として、より大きな系を計算するためにはDDMRG法が考えられるが、これま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っている。過去に報告し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。