

研究責任者名 Name	岩野薫 Iwano Kaoru	所属機関 Affiliation	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
受理番号 Proposal No.	大型 13/14-11	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)

低次元分子性結晶において観測されている光誘起相転移、特に 1 光子の吸収による多数の分子にわたる相変換を説明するために、2 次元スピンレスフェルミオンモデルの光学伝導スペクトルの解析を行ってきた。既に本期間の始まる前に最近接クーロン斥力の値を変えることによって 1 光子による電子ドメインの直接励起を同定できていたが、本期間ではそのようなドメインの性質を詳しく解析した。その結果、光励起を行った基底状態中のチェッカーボード型電荷秩序が光によって融解し、かつ元の電荷秩序状態とは異なる別の電荷秩序状態が新たに生成されていること、電子の金属性を示す、いわゆる Drude Weight が大きく増加していることなどを見出した。なお、このような大きな光誘起効果は励起エネルギーに敏感に依存し、最低励起状態は 1 電子励起的な状態であり続ける傾向があり、これは 2 次元系の特徴と言える。

(英文)

To understand the mechanism of the photoinduced phase transition observed in a low-dimensional molecular compound, we analyzed the optical conductivity spectra based on a spinless-fermion model. The outstanding feature of this transition is the simultaneous phase conversion of many molecules that is induced by only one absorbed photon. From the exploration in the previous term, we successfully identified a kind of domain excitation, and detailed analyses in this term clarified its nature as follows. First, in the created domain, the original charge ordering of the checkerboard type was drastically suppressed, and, instead, we identify that another type of charge ordering appears newly. This indicates that this phenomenon is not a mere melting but a creation of a new order that is missing in the original ground state. Furthermore, we also investigated the so-called Drude weight, a marker of the metallicity, and showed its increase within the domain. Lastly, we conclude that the lowest excited states remain non-domain states, which is characteristic of the two dimensional system, in contrast to the one-dimensional cases.

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)
	3	0	0	1

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 12 月、東北大学金属材料研究所研究会、「分子性結晶における超高速光誘起電子転移について」 2. 2014 年 3 月、日本物理学会@東海大学、「2 次元電荷秩序系の光励起状態の多体的特徴」 3. 2014 年 6 月、The fifth International conference for "photoinduced phase transitions and cooperative phenomena" @Slovenia	
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) (著者、タイトル、論文種別、URL を記載) Others (thesis for a degree, bulletin, papers to be published, etc.)	
1. 2.	
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】

近年、物性物理学においては「実時間」というキーワードが盛んに用いられるようになってきた。これはただ単に静的な状態を議論するだけではなく、励起緩和などの非平衡現象を実時間を追って捉えていこうという考え方である。もちろん、強相関電子系のように一体問題を越えた多体問題の場合、それは本来極めて難しい問題であるが、理論と実験の密接な協力の下に少しずついろいろなることが明らかになりつつある。

本研究で問題とする光誘起相転移は、そのような励起緩和現象の中でも、半巨視的な新しい状態が光によって生成するという極めてはっきりとした現象であり、最近多くの注目を集めている。では、光誘起相転移とは何か？をより明確に考える場合、実は多くの側面があり、幾つかのポイントが考えられる。本研究で筆者は、光によって電子自由度だけが変化する電子転移的な光誘起相転移を理論的に記述することを目標としている。

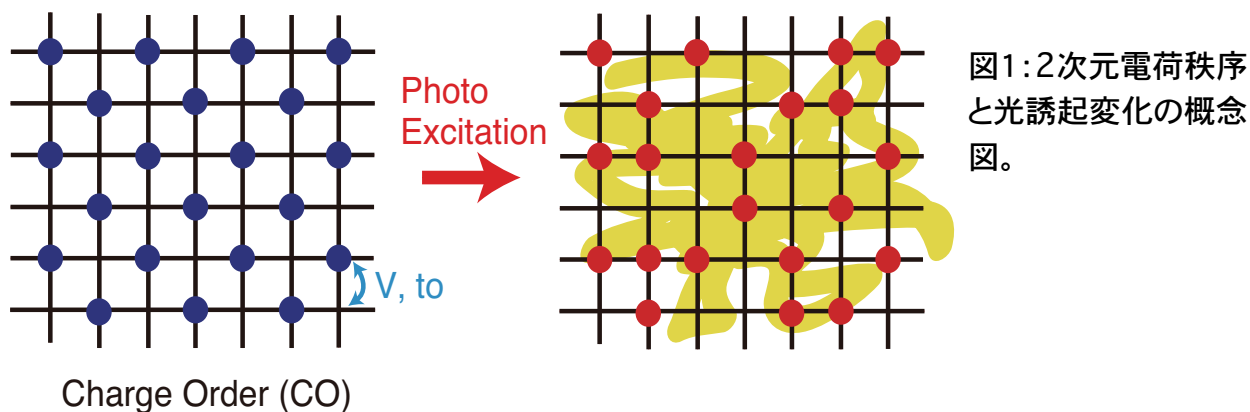
このような問題を考える実験的背景には、主として分子性結晶における光誘起実験がある。すなわち、分子性結晶はシート状の原子構造をしており、各シートが比較的独立しているので二次元系と見なすことが出来る。さらに、その比較的低エネルギー領域を考えると、各分子あたり1つの分子軌道のみを考えれば十分で、そのような分子軌道を格子点に1つずつ置いて電子の状態を考える。もちろん電子はスピンを持っているが、各分子軌道に2個電子が入ったクーロン反発のエネルギーは他のエネルギースケールより大きいので無限大と近似することにより同じサイトの2重占拠は禁止され、同種スピンの数が2倍になったと見なすことが近似的に出来るようになる。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。

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子(スピンレスフェルミオン)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。



前研究期間よりさらに前の期間で、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。前期間以前においては、実際に6×6の系において計算を行ったが相互作用 $V(l-l')$ を最近接までに限った場合(本ページの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。ところが、前期間でいわゆるフラストレーションを導入した結果、多電子励起の成分がかなり大きくなるのが初めて分かった。(以降の第3図の緑色部分がそれに対応。) フラストレーションとは、お互いに拮抗し合う相互作用がある場合に定義づけられるが、この場合は、次図に示すような2つの相互作用である。

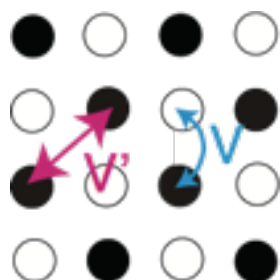


図2: フラストレーションの説明

## 【本期間の結果】

本期間は前期間でも見出されたドメイン励起の性質を詳しく調べた。まず、前期間とも共通するが手法を紹介すると、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。

なお、制約として、下記に示すKEKスパコンで実施された計算では、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1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、最大ボンド数に制限の無い場合との比較を他サイトのスパコンを用いて行ったところ、電子励起数を過小評価してしまうがそれを受け入れるならほぼ問題がないことが分かった。なお、厳密な計算は非常に計算時間がかかるため、計算資源の問題で多くの励起エネルギーに対して実行できない。そこで、最大ボンド数14で近似的にはあるが全体像をつかむべくKEKスパコンを利用して研究を行った。

図3に前回も示した光学伝導度スペクトルと各エネルギーごとの電子励起数を再掲する。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

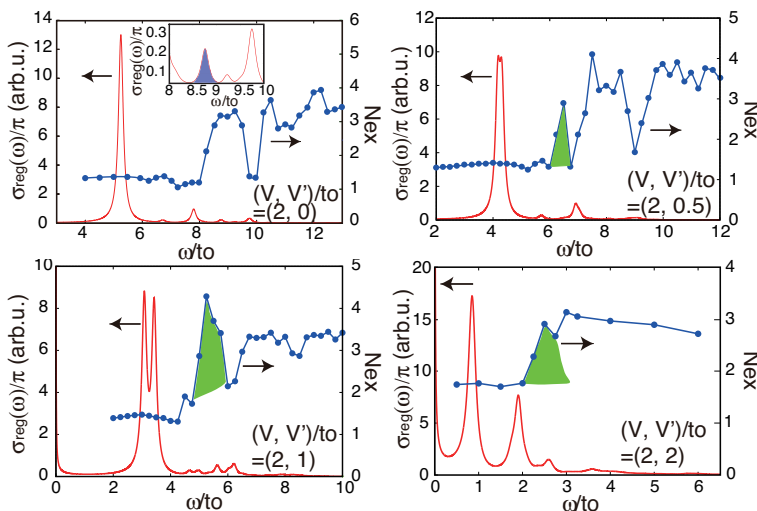


図3: 光学スペクトルと電子励起数

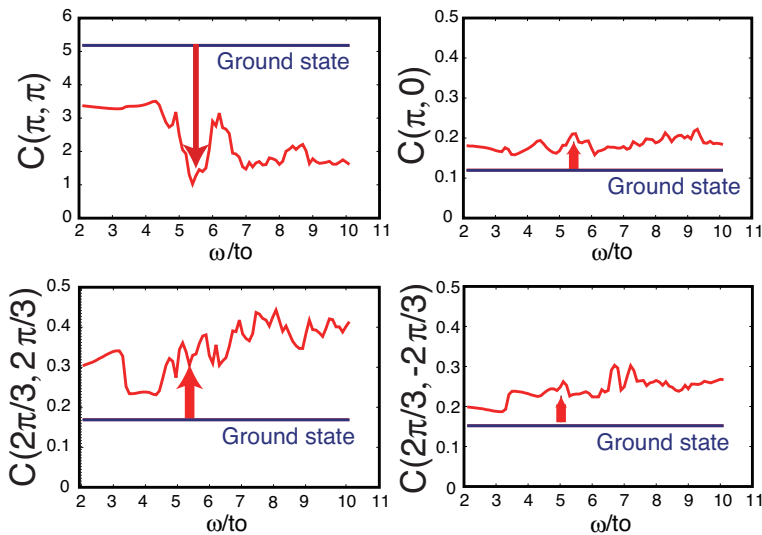


図4: 相関関数

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、新たに見出した励起帯は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。

このようなドメインの性質をより詳しく理解するために、図4に $(V, V')=(2, 1)$ の場合を例にとって縦軸に示された各相関関数の励起エネルギー依存性を調べた。まず、基底状態は図1左に示されるようなチェッカーボード型電荷秩序であるが、これは2次元波数空間で $(\pi, \pi)$ の値を持ち、それを図4左上のパネルの水平線(黒色)で示している。(他のパネルにおいてはそれぞれの波数の基底状態における値。) 一方、赤線で示された曲線は、各励起エネルギーごとに求められた励起状態(正確にはcorrection vector)に対して評価された相関関数であり、図4左上のパネルにおいての水平線からのズレは元々あった電荷秩序の抑制を意味している。特に $\omega/to \sim 5$ あたりの前述のドメイン励起に対応する部分は大きく抑制されており、これはドメイン励起の「電荷秩序融解」という特徴を意味している。一方、その他の波数に対してはいずれも相関関数が増加しているが、基本的には元々あった秩序が融解したことに伴う二次的な増加である。しかしながら、波数 $(2\pi/3, 2\pi/3)$ に対しては、有意に増加しているように見え、特にそれは $(2\pi/3, -2\pi/3)$ との対比からそう言える。実は、過去の研究において $V'$ の導入によって $(2\pi/3, 2\pi/3)$ の電荷秩序が基底状態相図上において出現することが分かっており、今回の結果はそういう意味で光励起による新しい電荷秩序の形成と解釈される。

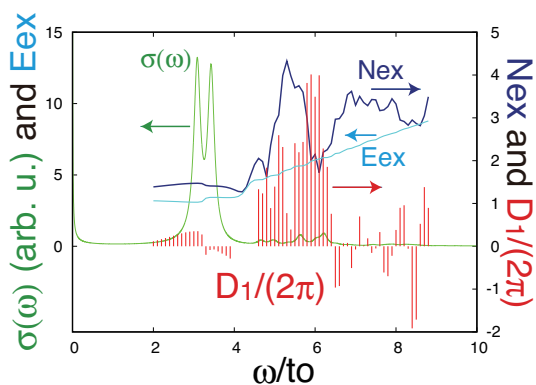


図5: Drude weight(赤線)

最後に図5を使ってドメイン励起と金属性の関連について議論する。以上のように基底状態からの光励起を光学伝導度に基づいて議論するのに対し、光励起状態に対して同様のことを議論するのはいわゆる光誘起吸収を考えることに相当し、実際に観測できる故に現実的な意味がある。一方理論的には、励起状態に対して線形応答理論を使って電気伝導を定義できるかという問題であり、これが数学的には固有励起状態に対してはいわゆるGell-Mann-Low によって保証されている。問題は以下に固有励起状態を求めるか、だが、本研究においてはcorrection vectorから近似的にはあるが固有状態を抽出することに成功し、それを使って電気伝導度の $\omega=0$ 成分、すなわち、いわゆるDrude weight を評価したのが図5の赤線である。図から分かる通り、Drude weight はこれまで議論してきたドメイン励起に対応する部分で大きく正になっており、これはドメインが生成された領域が金属性も帯びていることを示唆している。

### 【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を見出すことが必要と考える。

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。