

令和 5 年 5 月 22 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18K03541

研究課題名(和文)デュアル・フェルミオン法による多軌道系のモット転移と高エネルギー分光理論

研究課題名(英文) Dual fermion approach to Mott transition and high-energy spectroscopy of multi-orbital systems

研究代表者

田中 新 (Tanaka, Arata)

広島大学・先進理工系科学研究科(先)・准教授

研究者番号：70253052

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：二次元電子系における金属絶縁体転移および銅酸化物超伝導体の電子状態を議論するため正方格子ハバードモデルについて、新たに開発したLanczos厳密対角化法を用いたデュアルフェルミオン法を用いて調べた。特に銅酸化物超伝導体における異常金属状態、擬ギャップ状態、超伝導状態、相分離状態の形成と、それらの反強磁性揺らぎとの関連について総合的な研究を行った。また、デュアルフェルミオン法の計算を多軌道系へ適応するためのソフトウェアの開発も行った。さらに、実験の研究者と協力し、LaCoO₃やCaCu₃Ru₄O₁₂などの遷移金属酸化物の電子状態についても議論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新たに開発したLanczos厳密対角化法を用いたデュアルフェルミオン法を用いることで、強相関電子系で一般的に用いられている量子モンテカルロでは困難な低温での電子状態の精密な計算できるようになり、強相関電子系の理論の進展が期待できる。また、将来的には、これらの物質の電子状態の理解が進むことで、新しい機能性材料の開発が可能になると期待できる。

研究成果の概要(英文)：To discuss metal-insulator transition in two-dimensional electronic systems and electronic state of cuprate superconductors, the Hubbard model on the square lattice is investigated using the dual fermion approximation, where a newly developed Lanczos exact diagonalization method as a solver of the effective impurity Anderson model is employed. The strange metallic state, pseudo-gap state, superconducting state and phase separation in cuprate superconductors are investigated in relation with the antiferromagnetic fluctuation. Extensions of software to calculate multi-orbital systems are also conducted. In addition, the electronic states of some of transition-metal oxides such as LaCoO₃ and CaCu₃Ru₄O₁₂ are studied in collaboration with experimental researchers.

研究分野：物性理論

キーワード：デュアルフェルミオン法 強相関電子系 ハバードモデル 金属絶縁体転移

1. 研究開始当初の背景

遷移金属元素や希土類元素を含む化合物で、遷移金属原子の d 軌道、希土類原子の f 軌道を占有する電子は、クーロン相互作用が大きく、これらの物質では電子同志が避け合うことによる多体効果(電子相関の効果)が重要である。さらに、d、f 軌道の大きな軌道縮重度により、これらの電子は、様々な軌道、スピン、電荷の状態を取ることができ、原子ごとに特定の状態を取った電子が固体の中で整列することにより、磁気秩序、軌道秩序、電荷秩序などの秩序状態を形成するものや、銅酸化物超伝導体のように通常の超伝導体の理論である、BCS 理論で説明できない超伝導状態が出現するものもある。これらの多彩な物性は、しばしば、クーロン反発によって、電子同志が避け合い、動けなくなる「局在化」によって起こる金属から絶縁体への転移、すなわちモット転移の近くで起こっている。よって、モット転移の近傍の電子の状態を、特に未だ良く分かっていない軌道縮退のある場合も含めて、正しく記述できる理論ができれば、これらの興味深い強相関電子系の性質について統一的な視野が開けるのではないかと期待できる。

電子相関の効果を量子力学的に取り入れるために、電子の多体波動関数を直接扱うのであれば、基底関数の数は体系のサイズに対して、指数関数的に増大し、とうてい計算は不可能である。そのため、様々な近似手法が考案されてきた。その中でも動的平均場近似は、近年盛んに用いられている。この近似手法では、結晶中の全ての電子間の相関効果を考えるのではなく、結晶中の 1 つの原子に着目し、その中で電子間の相関効果は正確に扱い、それ以外の部分はこれと電子をやりとりできる有効媒質(相互作用のない伝導帯のようなもの)に置き換えたものとする。しかし、この方法では一つの原子内の電子の時間相関(量子揺らぎ)の効果は正しく取り入れられていないが、異なる原子内にある電子間の相関効果(空間相関)は正しく取り入れられていない。

一方、最近提案されたデュアル・フェルミオン法では、仮想的なフェルミ粒子に対応する場(補助場)を導入し、それに対する摂動計算を行うことで、動的平均場近似で得られた解を空間相関の効果を取り入れられるように改良する。この方法は現実的な計算時間で電子間の長距離相関を扱える利点がある。しかし、ほとんどのデュアル・フェルミオン法の先行研究では量子モンテカルロ法を用いており、この方法はフェルミ粒子の「負符号問題」のために低温で統計誤差が増大し、精度良く計算を行うのが困難である。

2. 研究の目的

本研究の目的の一つは、デュアル・フェルミオン法をクーロン相互作用と複数の軌道を考慮した、結晶格子上の電子のモデルであるハバードモデルに適用し、スピン、軌道、電荷の揺らぎ、結晶格子の構造が金属-絶縁体転移に対して、どのような効果をおよぼすのかを明らかにすることにある。さらに得られた結果を踏まえ、デュアル・フェルミオン法を改良し、空間相関効果をより正確に取り入れる方法を考案することにある。

前述のように先行研究でよく用いられている量子モンテカルロ法では負符号問題のため軌道縮退がある場合は精度よく計算をするのが難しい。筆者はこの問題を回避するため、デュアル・フェルミオン法に効率よく用いることのできるランチョス厳密対角化法を新たに考案しており、本研究では、この方法を用いて計算を行う。

もう一つの目的は、これら強相関電子系の電子状態を観測するための手段として、角度分解光電子分光、光学伝導度、共鳴 X 線弾性、および非弾性散乱の理論を展開することである。これらの実験結果は軌道状態に関する直接的な情報を含んでおり、低エネルギー励起状態を調べたり、磁気秩序、軌道秩序などの秩序状態を観測したりする手段として有効である。しかし、多体効果が重要であるため、その解析は容易ではなく、十分な情報を実験データより引き出すためには、基底状態の計算だけでなく、光学励起による遷移過程を取り入れたスペクトルの理論計算が必要である。

3. 研究の方法

ランチョス厳密対角化法を用いたデュアル・フェルミオン法の計算方法および、これを軌道縮退のある場合も含め、一般的に計算できるようにするためのプログラム開発を行った。また、系に電子-ホール対称性がない場合、通常のデュアル・フェルミオン法では、自己エネルギーが不正確である。この問題を補正する方法を考案し、これを用いて計算できるようにプログラムの改良を行った。さらに、実験との比較も可能にするため、スペクトル関数、動的帯磁率、抵抗率等の計算をするためのプログラムも作成した。

これらのプログラムを用い、上述のハバードモデルに対して、クーロン相互作用の大きさ、結晶格子の種類、電子密度などの、さまざまなパラメータを変化させて、系統的にモット転移近傍の電子状態について調べた。

また、具体的な強相関物質について、実験グループと協力して、光電子分光などの高エネルギー

一分光実験の解析および理論の検証をおこなった。

4. 研究成果

- (1) 二次元電子系におけるモット転移について調べるため、最近接ホッピングまで取り入れた、正方格子ハバードモデルでの金属絶縁体転移について、ランチョス厳密対角化法を用いたデュアル・フェルミオン法を用いた研究を行った。このモデルには、格子を電子が渡り歩く、(あるいはホップする)確率振幅 t と、同じ原子に電子が二ついるときのクーロン反発エネルギー U 、サイトあたりの電子数という三つのパラメーターがあり、サイトあたりの電子数がちょうど1のときに金属絶縁体転移が起こると考えられている。無限次元のハバードモデルでは、動的平均場近似が正確となり、 t あるいはバンド幅に比べて、十分大きいクーロン相互作用 U では低温でモット転移が起こる。しかし、二次元では、長距離の反磁性揺らぎによって、有限温度でフェルミ準位近傍の状態密度が減少する、擬ギャップ状態ができ、 t に比べて小さい U でも絶対零度で絶縁体ギャップが開く。この小さい U での反強磁性秩序に起因する絶縁体ギャップ形成(スレーター機構)と U が大きいときのモット転移によるものは、連続的に変化し、この系では金属絶縁体転移は、任意の小さい $U(>0)$ で起こると考えられる。さらに、異方的な三角格子ハバードモデルの金属絶縁体転移についても調べた。
- (2) 強相関係の典型物質である、銅酸化物超伝導体について、次近接ホッピングまで考慮した正方格子ハバードモデルについて、ランチョス厳密対角化法を用いたデュアル・フェルミオン法を用いて調べた。この系のいくつかの典型的なパラメータについて、異常金属状態、擬ギャップ状態、超伝導状態、相分離状態の形成について調べ、それらの反強磁性揺らぎとの関連について総合的な研究を行った。特に、新たに開発したランチョス厳密対角化法を用いることで、一般的に用いられている量子モンテカルロ法と比べ、低温での計算を正確に行うことができた。その結果、擬ギャップ相でのフェルミ準位近傍のスペクトル関数の振る舞いを詳細に調べることが可能になり、角度分解光電子分光で観測されている、フェルミアーク、フェルミ準位近傍の光電子スペクトルに現れる擬ギャップ構造の温度および、ホールドープ依存性について議論を行った。また、電気抵抗率が通常金属と異なり、温度に比例する異常金属相における準粒子のプランク極限散乱について詳細な議論を行うことができた。
- (3) 遷移金属酸化物 LaCoO_3 は、3d 軌道の電子のスピンと軌道の状態の変化に起因する、低温での絶縁体状態から、高温での金属状態への転移について、古くから興味を持たれている。しかしながら、その転移機構の詳細について、いまだに議論が絶えない。この研究では、実験の研究者と協力して、Co の電子状態の変化に敏感な、Co 2p 内殻光電子分光、価電子帯光電子分光、酸素 K 端 X 線吸収分光実験を組み合わせで行った。さらに、Co イオンの 3d 軌道とその周りの酸素の 2p 軌道を取り入れたクラスターモデルを用いて、この系の多電子状態の解析を行うことにより、この物質の 3d 軌道のスピンと軌道状態および、温度によるフェルミ準位近くの電子状態の変化の精密な情報を得ることができた。その結果、この系の金属絶縁体転移を理解するためには、Co イオンの 3d 電子状態の変化だけでなく、その占有状態の変化によって引き起こされる Co-O 結合長の局所的な変化によって起こる結晶格子に歪みの効果も重要であることが明らかになった。
- (4) 遷移金属酸化物 $\text{CaCu}_3\text{RuO}_{12}$ の電子状態について調べるため、実験の研究者と協力して、Cu 2p 内殻光電子分光と価電子帯光電子分光を行い、さらに理論の研究者とも協力して、第一原理電子構造計算と動的平均場近似を組み合わせで行う計算手法および Cu イオンの 3d 軌道とその周りの酸素の 2p 軌道を取り入れたクラスターモデルを用いた解析を行った。この系は、高温では Cu イオンの 3d 軌道の電子のスピン自由度があり、帯磁率がキュリー・ワイス則に従うが、低温では、この 3d 電子のスピンと伝導帯の電子のスピンとが結合し、スピン-重項を作ることにより、あたかも 3d 電子のスピンが無くなったかのように振る舞う近藤状態となると考えられることがわかった。重い電子系あるいは近藤状態となる物質は希土類やアクチノイド金属間化合物では多く見られるが、酸化物では、この物質以外では、おそらく LiV_2O_4 を除いて見つかっていない。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Takegami D., Tanaka A., Agrestini S., Hu Z., Weinen J., Rotter M., Schueler-Langeheine C., Willers T., Koethe T. C., Lorenz T., Liao Y. F., Tsuei K. D., Lin H.-J., Chen C. T., Tjeng L. H.	4. 巻 13
2. 論文標題 Paramagnetic LaCoO ₃ : A Highly Inhomogeneous Mixed Spin-State System	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review X	6. 最初と最後の頁 011037/1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.13.011037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhao Jianfa, Haw Shu-Chih, Wang Xiao, Cao Lipeng, Lin Hong-Ji, Chen Chien-Te, Sahle Christoph J., Tanaka Arata, Chen Jin-Ming, Jin Changqing, Hu Zhiwei, Tjeng Liu Hao	4. 巻 107
2. 論文標題 Stability of the Pb divalent state in insulating and metallic PbCrO ₃	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 024107/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.024107	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 D.Takegami, C-Y Kuo, K.Kasebayashi, J-G Kim, C.F.Chang, C.E.Liu, C.N.Wu, D.Kasinathan, S.G.Altendorf, K.Hoefer, F.Meneghin, A.Marino, Y.F.Liao, K.D.Tsuei, C.T. Chen, K-T Ko, A.Guenther, S.G.Ebbinghaus, J.W.Seo, D.H.Lee, G.Ryu, A.C.Komarek, S.Sugano, Y.Shimakawa, A.Tanaka, T.Mizokawa, J.Kunes, L.H.Tjeng, A.Hariki	4. 巻 12
2. 論文標題 CaCu ₃ Ru ₄ O ₁₂ : A High-Kondo-Temperature Transition-Metal Oxide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Rev. X	6. 最初と最後の頁 011017 1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.12.011017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 E. Gorelov, A. A. Guda, M. A. Soldatov, S. A. Guda, D. Pashkov, A. Tanaka, S. Lafuerza C. Lamberti and A. V. Soldatov	4. 巻 175
2. 論文標題 MLFT approach with p-d hybridization for ab initio simulations of the pre-edge XANES	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiation Physics and Chemistry	6. 最初と最後の頁 108105/1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.radphyschem.2018.12.025	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Arata Tanaka	4. 巻 99
2. 論文標題 Metal-insulator transition in the two-dimensional Hubbard model: Dual fermion approach with Lanczos exact diagonalization	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205133/1-22
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.205133	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計13件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Arata Tanaka
2. 発表標題 Planckian metallic state in the two-dimensional Hubbard model
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中 新
2. 発表標題 銅酸化物超伝導体の異常金属状態における準粒子のプランク極限散乱
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中 新
2. 発表標題 ハバードモデルの擬ギャップ状態における自己エネルギーの特異な波数、周波数依存性
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 異方的三角格子ハバードモデルにおける磁気揺らぎと金属絶縁体転移の関係
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 銅酸化物超伝導体のストレンジメタル状態と擬ギャップ状態の関係について
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 正方格子ハバードモデルの擬ギャップ、反強磁性揺らぎ、リップシツト転移の関連について
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 デュアルフェルミオン法による2次元ハバードモデルの動的スピン帯磁率
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Arata Tanaka
2. 発表標題 Dynamic spin susceptibility of the 2D Hubbard model away from half-filling
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Arata Tanaka
2. 発表標題 Fermi arcs in cuprate superconductors studied by the dual fermion approximation
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid Films and Surfaces (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 デュアルフェルミオン法の自己エネルギーの漸近補正と2次元ハバードモデルへの応用
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 Dual fermion approach to the fermi arc formation in the two-dimensional square-lattice Hubbard model
3. 学会等名 International conference on magnetism (ICM 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 デュアルフェルミオン法による2次元ハバードモデルの金属絶縁体転移
3. 学会等名 琉球大学物性研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中新
2. 発表標題 デュアルフェルミオン法による異方的三角格子ハバードモデルにおける金属絶縁体転移
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
ドイツ	Max Planck Institute	European XFEL	