

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007 - 2008

課題番号：19540408

研究課題名（和文） 長距離電子相関を取り入れた新しい動的クラスター理論の構築と強相関電子系への応用

研究課題名（英文） Construction of a New Dynamical Cluster Theory Taking into Account Long-Range Electron Correlations and Its Application to Strongly Correlated Electron Systems

研究代表者

梯 祥郎 (KAKEHASHI YOSHIRO)

国立大学法人 琉球大学・理学部・教授

研究者番号：10191975

研究成果の概要：

第1に、長距離電子相関を取り入れた新しい非局所電子相関の動的クラスター理論(SCPM)の運動量分解能を更にあげて、2次元ハバードモデルの中間結合領域における励起スペクトルの運動量・エネルギー依存性を詳細に調べ、アンダードープ領域におけるマージナルフェルミ液体の存在を確かめた。さらに、この領域で、従来の方法では結論できなかった準粒子のキック構造が存在することを見出した。また、フェルミ面がドーピングと共にホールのから電子的な形状に移行することを確かめ、これらの振舞いが銅酸化物超伝導体の多くの異常を説明していることを明らかにした。第2に、非対角有効媒質を初めて導入して長距離電子相関を完全に自己無撞着に取り入れる新しい動的クラスター理論を定式化した。単純立方格子ハバードモデル理論を適用し、非対角自己無撞着計算を行った。その結果、非局所励起スペクトル計算を強相関領域まで拡張できなかった。中間結合領域では、準粒子バンド幅はこれまでSCPMに比べてさらに25%縮まり、モット・ハバードバンドを形成するインコヒーレント励起はk空間のガンマ点とR点付近に局在する傾向を示し、その付近で“water fall”的な準粒子崩壊を示すことが分かった。強相関結合領域では、長距離反強磁性相関に伴うshadowバンドの励起を見出し、また、強い反強磁性相関のため、モット・ハバードバンドは原子的極限から期待される値よりも増大している事も見出した。さらに、従来の動的短距離クラスター理論(DCA, CDMFT)では金属・非金属転移点 $U_c$ は有限であるが、長距離電子相関を取り入れると、グッツウィラー波動関数の場合と同様、 $U_c$ が存在しなくなる可能性がある事を見出した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1700,000	510,000	2210,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	2300,000	690,000	2990,000

研究分野： 数物系科学

科研費の分科・細目： 物理学 数理物理・物性基礎

キーワード： 電子相関，長距離電子相関，非局所電子相関，励起スペクトル，動的クラスター理論，銅酸化物，金属・非金属転移

## 1. 研究開始当初の背景

弱い遍歴電子系から強相関電子系までの物理的性質を系統的に記述する理論を構築して様々な物質の特異性と多様性を統一的に説明することは物性基礎の理論家に共通の夢であろう。Hubbard の金属・絶縁体理論に始まる非摂動領域の電子相関の理論は、近年、有効媒質を用いたシングルサイト理論として発展し、その夢を無限次元で実現させた。これらの理論はコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を多体系へ拡張した多体 CPA 理論 (Hirooka and Shimizu JPSJ **43**, 70(1977)) であり、磁性の分野で我々が発展させた動的 CPA 理論 (Takehashi, PRB **45**, 7196 (1992); PRB **65**, 184428(2002)) であり、金属・絶縁体転移の分野では動的平均場理論 (Jarrell et al., PRL **69**, 168(1992); Kotliar et al. PRB **45**, 6497(1992)) として確立されたものである。現在では、3つの理論は数学的に等価であることが示され、その応用範囲は磁性、金属・絶縁体転移、高温超伝導、重い電子系など膨大な分野に広がっている (Y. Takehashi, Adv. Phys. **53**, 497(2004) を見よ)。

電子相関のシングルサイト理論は、しかし、自己エネルギーの運動量依存性を無視しているため、物質の構造・次元性や空間的な電荷とスピンの揺らぎの相関を十分に反映していない。そのために、現実の現象との不一致や問題点も次第に明らかになってきている。例えば、酸化物超伝導体や重い電子系にみられる非フェルミ液体的振る舞い、低次元金属磁性体にみられる長距離磁気相関、フラストレート系にみられる短距離電荷・磁気相関現象などはその例である。そこで、この数年、有効媒質法を基本として自己エネルギーの運動量依存性を取り入れる方向の理論的改良が活発に行なわれてきた。その代表格がクラスター型自己エネルギーを基本とする動的クラスター近似 (M. Jarrell et. al., PRB **64**, 195130(2001)) であり、セル型動的平均場理論 (G. Kotliar et. al., PRL **87**,

186401(2001)) である。前者は運動量空間において自己エネルギーをクラスターへ拡張する理論であり、後者は実空間において自己エネルギーをクラスターへ拡張する方法で、それらの具体的な応用も始まっている。

これらのクラスター理論は短距離型非局所電子相関を自己無撞着に取り入れる大変優れた方法であるが、同時にまた、解決すべき重要な課題も多い。すなわち、クラスターを基本としているために (1) 得られる励起スペクトルの運動量・エネルギー分解能に限界がある。(2) 長距離非局所電子相関が取り入れられていない。(3) 現実の3次元系への応用が困難である等の問題点が指摘されている。特に、近年、超高分解能角度分解光電子分光法が急速な進歩を遂げた結果、そのエネルギー分解能は 1 meV、運動量分解能は  $0.005 \text{ \AA}^{-1}$  に達し、クラスター型理論計算の分解能を越えた微細な励起構造が明らかになりつつある。また、2次元反強磁性秩序の記述に対する限界も明らかになってきた。このような理論の限界や実験技術の進展のために、上述の問題点(1)–(3)を克服する新しい方向からのアプローチや方法の開発が非局所励起スペクトルの理論における今後の重要な課題となっている。

## 2. 研究の目的

最近、我々は固体内電子相関を記述するために、マックスプランク研究所 P. Fulde 教授と共同で、動的平均場理論・動的 CPA 理論と全く等価な射影演算子法 CPA 理論を発展させた (Takehashi and Fulde, PRB **69**, 045101(2004))。この方法では遅延グリーン関数を直接的・解析的に求めるので従来の動的クラスター理論にみられるようなエネルギー分解能の問題が無い。そこで、この点に着目して、運動量分解能を損なわないように理論を非局所の場合に拡張した結果、これまでの非局所電子相関の理論の難点を取り除いて、(1) 絶対零度においても高いエネルギー・運動量分解能を持ち、(2) 長距離電子相関

を取り入れた, しかも (3) 3次元系にも適用可能な励起スペクトルの動的クラスター理論が構築できることを見出した. これが非局所電子相関の自己無撞着射影演算子法 (Y. Kakehashi and P. Fulde, PRB **70**, 195102 (2004)) である. 本研究の目的はこの新しい非局所電子相関の動的クラスター理論を完成させ, もって固体物理における広範な電子相関の理解に寄与することである.

従来の動的クラスター理論では, 不純物原子のかわりに結晶から切り出した一定の  $N_x N_x N$  クラスターを非対角有効媒質に埋め込むことによって温度グリーン関数における非局所電子相関を自己無撞着に取り込むことが行なわれてきた. この場合, 運動量の分解能は  $\Delta k = 2\pi/N$  程度にとどまり, またエネルギー分解能は温度グリーン関数の解析接続の仕方に大きく依存する. 我々の方法はこれらの理論と対極をなす独自の考え方に基づくもので, エネルギー分解能を十分良くするために, (1) 温度グリーン関数ではなく運動量表示の遅延グリーン関数から直接出発し, (2) 運動量表示の自己エネルギーを実空間メモリー関数のフーリエ変換として求める. そして (3) 実空間非対角メモリー関数を射影演算子法に基づいて定式化して, それらの非局所電子相関を有効媒質から出発するクラスター増加展開法を用いて展開の各次数で無限遠まで取り入れる. その結果, 従来のクラスター理論で取り入れていない長距離電子相関が取り入れられると共に, エネルギー・運動量の分解能の問題が消失する. 即ち, 遅延グリーン関数の直接計算によってエネルギー分解能の問題を避け, 実空間の非対角メモリー関数を十分遠くまで計算してそのフーリエ変換を計算することによって高い運動量分解能を獲得し, クラスター展開の各次数で常に長距離電子相関を取り入れることによって従来のクラスター理論の問題点を克服しようというわけである.

### 3. 研究の方法

長距離電子相関を取り入れた新しい動的クラスター理論, 即ち, 非局所電子相関の自己

無撞着射影演算子法の理論を完成させるために残された課題は以下の通りである.

(1) 運動量空間のメッシュを増やして運動量分解能を上げた計算によって, これまでに得た結果が不変であるかどうかを確認する.

(2) 理論を非対角有効媒質へ一般化して非対角自己エネルギーの自己無撞着性を取り入れる.

(3) 理論を簡単なモデルに適用して理論の妥当性と長距離電子相関の役割を明らかにする.

(4) 射影演算子法に基づくクラスター問題解決法の開発と一般化.

課題(1)はより詳しい数値解析を推し進めることであるので特に技術的な問題はない.

課題の中心は(2)である. 現在までに構築した我々の理論では, 遅延グリーン関数の実空間自己エネルギー  $\Lambda_{ij}(z)$  に対角型有効媒質  $\Sigma$  を射影演算子法によって導入し, クラスター増加展開法を用いて展開して各項を直接計算し, 自己エネルギーの対角成分を計算する. このとき,  $\Lambda_{ii}$  は  $\Sigma$  の汎関数だから自己無撞着条件  $\Sigma = \Lambda_{ii}$  から有効媒質  $\Sigma$  を決めることができる. 決めた対角型媒質のもとで, 非対角自己エネルギー  $\Lambda_{ij}$  を有効媒質の中でクラスター増加展開法を用いて求め, それらをフーリエ変換することによって運動量空間における自己エネルギーを求める. 得られた励起スペクトルは既に述べたように, 優れた分解能を有している. しかしながら, この場合, 非対角自己エネルギーは自己無撞着には決まっていないので, 非局所電子相関が引き起こす特異性や相転移を十分に記述できていない. そこで, 非対角有効媒質  $\Sigma_{ij}$  を導入し, 対角成分  $\Lambda_{ii}$  と非対角成分  $\Lambda_{ij}$  をクラスター増加展開法を用いて同時に計算して, 自己無撞着条件  $\Sigma_{ij} = \Lambda_{ij}$  から非対角媒質  $\Sigma_{ij}$  を決める. これが我々が提案している新しい方法である.

課題(3)では, 新しい方法がこれまでの結果をどのように改善するかを見る. 3次元単純立方格子ならびに2次元正方格子上のHubbardモデルを考え, 上述の自己無撞着計算を実行する.

特に, 2次元系では, 電子数とクーロン相互作用パラメーターを変えて, 我々が見出したマージナルフェルミ液体の性質, 準粒子バンドのキック構造などが自己無撞着な非対角

有効媒質によってどのように修正されるかを数値的に求め、検討する。

非対角媒質計算では、有効媒質も運動量依存であるので「コヒーレント」グリーン関数  $N^{-1} \sum_k \exp[ik \cdot (R_i - R_j)] / (z - \epsilon_k - \Sigma_k(z))$  の運動量積分を数値的に実行しなければならない。さらに、全ての非対角有効媒質を自己無撞着計算の中で保存し、且つ出力の運動量依存自己エネルギーを精度良く計算しなければならないので、エネルギー・運動量空間において十分細かなメッシュを確保する大規模計算を行う。

有効媒質の中で任意に配置したクラスター問題を解くことは全ての動的クラスター型理論に共通の問題であるが、遅延グリーン関数から出発する射影演算子による直接解法は現在のところ我々が開発した繰り込まれた摂動法のみである。この近似法は無限次元の極限では通常動的平均場理論における修正された摂動理論(Modified Perturbation Theory : Kajueter and Kotliar, PRL **77**, 131(1996))に帰着する。従って、理論の汎用性・定量性を高めるためには、この部分のより進んだ取り扱いが必要となってくる。これが上述の課題(4)の内容である。射影演算子法によって有効媒質の中のクラスター問題をより定量的に解くためには、そこに現れる静的相関関数の熱平均値をより正確に計算する方法を非局所相関も含めて再構築する必要がある。我々は変分法の立場からこの問題を再定式化して理論の定量性を高めることを試みる。この部分については、弱いクーロン相互作用から強い相互作用まで取り扱える方法を確立することは大変難しい問題であるので、十分な成果が出ない場合、科研費取得の有無にかかわらず、平成21年度以後も継続して研究を進める。

#### 4. 研究成果

前節課題(1)に関して、本科学研究補助金で導入された大容量メモリーワークステーションと東大スーパーコンピュータを用いて、これまでの運動量空間メッシュを4倍にあげて2次元ハバードモデルの中間結合領域 ( $U/|t|=10$ ) における励起スペクトルの運動量・エネルギー依存性を詳細に調べた。

その結果、高精度の運動量依存有効質量計算から、アンダードープ領域におけるマージナルフェルミ液体の存在を確かめた。さらに、この領域で、従来の方法では結論できなかった準粒子のキंक構造が存在することを見出した。また、フェルミ面がドーピングと共にホールのから電子的な形状に移行することを確認、これらの振る舞いが銅酸化物超伝導体の多くの異常を説明することを明らかにした。以上の結果は、海外連携研究者 Peter Fulde氏との共著でJ. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 074702 に発表された。

課題(2)(3)については、非対角有効媒質  $\Sigma_{ij}$ を導入して長距離電子相関を完全に自己無撞着に取り入れる新しい動的クラスター理論(FSCPM)を定式化した。そして、3次元単純立方格子ハバードモデル(half-filling)に理論を適用し、第10隣接原子間距離までの2サイトクラスターを全て取り入れた非対角自己無撞着計算を行った。これらの計算によって、これまでの対角成分のみの自己無撞着理論(SCPM0)に比べて、新しく得られた非対角自己エネルギーの振幅が抑えられることが明らかになった。中間結合領域(例えば  $U/|t|=10$ )では、準粒子バンド幅はSCPM0に比べてさらに25%縮まり、モット・ハバードバンドを形成するインコヒーレント励起はk空間のガンマ点とR点付近に局在する傾向を示し、その付近で“water fall”的な準粒子崩壊を示すことが分かった。

さらに重要なことは、FSCPMによって非局所励起スペクトル計算可能な領域が、Uをクーロンエネルギーパラメーター、tを最隣接電荷移動積分として  $U/|t| < 10$  から  $U/|t| < 20$  まで拡がり、強相関領域までの長距離電子相関効果を調べる事が可能になった事である。強相関結合領域(例えば、 $U/|t|=16$ )では、長距離反強磁性相関に伴うshadowバンド励起を見出し、また、強い反強磁性相関のために、モット・ハバードバンドは原子的極限から期待される値よりも20%程度増大している事も見出した。さらに、従来の動的短距離クラスター理論(DCA, CDMFT)では金属・非金

属転移点 $U_c$ は有限であるが、長距離電子相関を取り入れた本理論では、Gutzwiller波動関数の場合と同様、 $U_c$ が存在しなくなる可能性がある事を指摘した。以上の結果は、現在、海外連携研究者 Peter Fulde氏との共著論文として出版準備中である。

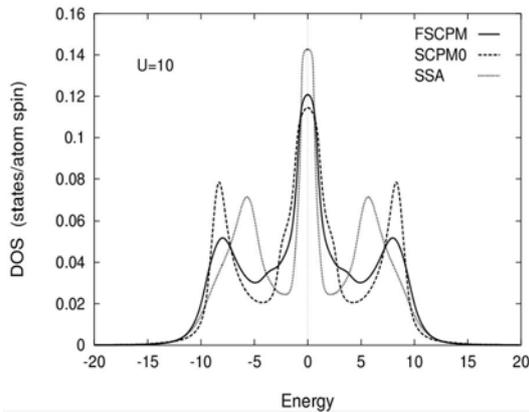


図 1 : 完全自己無撞着射影演算子法 (FSCPM), 従来の自己無撞着射影演算子法 (SCPM0), およびシングルサイト近似 (SSA) で計算された単純立方格子上的状態密度 ( $U/|t|=10$ ).

2007年度は教室主任を務めた結果、研究活動に支障が出た。FSCPMを用いた2次元ハバードモデル(銅酸化物)の計算は現在進行中であり、計算が遅れているが2009年度内に公表予定である。

その他、課題(4)と関連して、射影演算子法動的クラスター理論に現れる運動量依存の静的平均値を効率的に計算するために、変分波動関数の改良を行なった。従来のGutzwiller型波動関数は非局所励起に関係する運動量依存の電子相関効果を取り入れられていない。その結果、運動量分布関数などの平均値が正しく評価されなかった。そこで、運動量依存の新しい変分パラメーターをもつGutzwiller型変分波動関数を提案し、これが無限次元で従来の波動関数を大幅に改善することを突き止めた。この結果は、J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 114702 に発表されている。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

(1) Y. Kakehashi, T. Shimabukuro, T. Tamashiro, and T. Nakamura, Dynamical Coherent Potential Approximation and Tight Binding Linear Muffintin Orbital Approach to Correlated Electron System, J. Phys. Soc. Jpn. 77 094706 1-16 (2008) 査読有。

(2) Y. Kakehashi, T. Shimabukuro, and C. Yasuda, Local Ansatz Approach with Momentum Dependent Variational Parameters to Correlated Electron Systems, J. Phys. Soc. Jpn. 77 114702 1-11 (2008) 査読有。

(3) Y. Kakehashi and P. Fulde, Nonlocal Excitation Spectra in Two-Dimensional Doped Hubbard Model, J. Phys. Soc. Jpn. 76 074702 1-11(2007) 査読有。

(4) T. Uchida and Y. Kakehashi, Phenomenological Theory of Multiple Spin Density Waves in fcc Transition Metals, J. Phys. Soc. Jpn. 76 094703 1-1(2007) 査読有。

(5) R. Konno, Y. Takahashi, H. Nakano, Strongly enhanced thermal expansion of low-dimensional itinerant weak antiferromagnets near quantum critical points, J. Appl. Phys. 101 09G517 1-3 (2007) 査読有。

[学会発表] (計 12 件)

(1) 梯 祥郎, 中村哲郎, 射影演算子動的 CPA 理論の改良, 日本物理学会, 2009年3月30日, 立教大。

(2) 梯 祥郎, 玉城敏仁, 第1原理動的 CPA 理論に基づく Fe と Ni の有限温度磁性 III, 日本物理学会, 2009年3月28日, 立教大。

(3) 内田尚志, 梯 祥郎, 第一原理分子動力学・磁気構造理論とその  $Mn_3Pt$  合金への応用, 日本物理学会, 2009年3月28日, 立教大.

(4) 梯 祥郎, 島袋貴文, 安田千寿, 運動量依存パラメーターを持つ Gutzwiller 型波動関数の理論, 日本物理学会, 2008年9月22日, 岩手大.

(5) 梯 祥郎, 島袋貴文, 玉城敏仁, 中村哲郎, 動的 CPA+第1原理 TB-LMTO-LDA の理論, 日本物理学会, 2008年9月20日, 岩手大.

(6) 梯 祥郎, 島袋貴文, 玉城敏仁, 中村哲郎, 第1原理 LDA+動的 CPA 理論に基づく Fe と Ni の有限温度磁性 II, 日本物理学会, 2008年9月20日, 岩手大.

(7) 内田尚志, 梯 祥郎, 第1原理分子動力学磁気構造理論とその  $Mn_3Pt$  への応用, 日本物理学会, 2008年9月26日, 近畿大.

(8) 梯 祥郎, 第1原理 LDA+動的 CPA 理論に基づく Fe と Ni の有限温度磁性, 日本物理学会, 2008年9月26日, 近畿大.

(9) 島袋貴文, 安田千寿, 梯 祥郎, 運動量依存パラメーターを持つ新しい Gutzwiller 型変分波動関数の理論, 日本物理学会, 2008年9月25日, 近畿大.

(10) 畑山伸訓, 今野理喜男, 高橋慶紀, 中野博生, 準一次元系の弱い反強磁性金属と反強磁性寸前の金属の磁氣的性質の理論, 日本物理学会, 2008年9月23日, 近畿大.

(11) 梯 祥郎, 鉄のキュリー温度 III, 日本物理学会, 2007年9月21日, 北海道大.

(12) 今野理喜男, 畑山伸訓, Thermal expansion in quasi one-dimensional weakly

and nearly antiferromagnetic metal, APCC 10 (第十回アジア・太平洋物理会議), 2007年8月23日, POSTECH(韓国).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

梯 祥郎 (KAKEHASHI YOSHIRO)  
琉球大学・理学部・教授  
研究者番号: 10191975

### (2) 研究分担者

今野 理喜男 (KONNO RIKIO)  
近畿大学工業高等専門学校・教授  
研究者番号: 20353287  
(2007年度のみ)

### (3) 連携研究者