

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 7日現在

機関番号：51303

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009年度～2011年度

課題番号：21740268

研究課題名（和文） 密度行列繰り込み群法による強相関電子系の緩和ダイナミクスの研究

研究課題名（英文） Density Matrix Renormalization Group Study of Relaxation Dynamics in Strongly Correlated Electron systems

研究代表者

松枝 宏明（MATSUEDA HIROAKI）

仙台高等専門学校・情報電子システム工学専攻・准教授

研究者番号：20396518

研究成果の概要（和文）：

遷移金属酸化物などの強相関電子系で近年観測されている様々な光誘起相転移現象は、物質の新たな光機能性として注目されている。この分野の基礎学理を確立し、有用な理論的コンセプトを提示することが求められている。本研究では、強相関電子系のスピン・電荷・軌道・フォノンの各量子自由度が、光照射後の非平衡状態でどのように結合・分離し、相転移現象に寄与するのかを幾つかの例を基にミクロなレベルから明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Photoinduced phase transitions are attracting much attention as new functionalities of matter. In particular, various experiments have been done for transition metal oxides such as cuprates, manganites, and cobaltites. Motivated by the experiments, we have constructed the fundamental concepts behind the transitions. We have examined coupling and separation among spin, charge, orbital, and phonon degrees of freedom, and have also examined how these quantum degrees affect relaxation dynamics after pulse laser irradiation to the oxides.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
21年度	1,300,000	390,000	1,690,000
22年度	600,000	180,000	780,000
23年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：強相関電子系，光誘起相転移，非平衡状態・時間発展，緩和ダイナミクス，密度行列繰り込み群（DMRG），テンソル積変分法

## 1. 研究開始当初の背景

強相関電子系の研究は、銅酸化物の高温超伝導・マンガン酸化物の多彩な相構造と磁気抵抗効果などをはじめとして、この四半世紀で大きな発展を遂げてきた。この次の段階と

して志向されるのは、それらの相を自在に制御することである。具体的には、異なる性質を持つ電子相を超高速にスイッチすること、電子状態の変化に伴って生ずる物理量の巨大な応答を引き出すこと、異なる相の相関を利用して外場と直接結合できない自由度を操作

することなどが考えられる。実際、この方向性に関する研究機運が高まっており、強相関電子論から強相関エレクトロニクスへという流れが見られる。本研究課題で対象としているのはフェムト秒パルスレーザーによる光誘起相転移であり、この流れの中で非常に重要な現象として位置づけられているものである。

良く知られた実験は、一次元 Mott 絶縁体であるハロゲン架橋 Ni 錯体や銅酸化物  $\text{SrCuO}_2$ ,  $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$  に対するもので、ここでは光照射直後に過渡的金属状態が生成し、それが数 ps で元の絶縁体に緩和することが観測されている。この過程における反射率変化をスイッチング原理に用いると、数 Tbit/s の情報量が通信可能である。この時間スケールは通常の半導体で見られる ns オーダーの緩和とは本質的に異なっている。従って、ここに強相関系のスピン・電荷・軌道といった内部自由度が高速応答・緩和過程に関わっているかどうかという問題の背景がある。

以上の問題を詳細に解析するための理論的基盤は残念ながら未成熟である。なぜならば、緩和過程まで含めた非平衡状態下で強相関効果をミクロな視点から取り扱う必要があるためである。このような方法論上の困難に加えて、遷移金属酸化物の物性理論として有効なコンセプトが欠けていることが大きな問題である。従って理論研究は単に応用を指向するものではなく、非平衡統計力学や強相関電子論の基礎的問題に深く絡んだレベルでの発展が望まれる。

以上のような状況に対して、申請者のこれまでの研究成果を進展させれば、光誘起相転移分野の理論研究に大きな寄与ができると考えた。申請者は日本では独自に動的密度行列繰り込み群法 (dynamical density matrix renormalization group method, DDMRG) を発展させ、低次元強相関電子系のスピン・電荷・フォノンダイナミクスを研究してきた。この方法を用いることで得られた特筆すべき成果は、環境である無限自由度のフォノンまで取り込んだ強相関電子系の量子ダイナミクスが解析できるようになったことである。そのとき環境は単に観測系からエネルギーを受け取るという消極的な存在ではなく、その量子効果やダイナミクスが緩和過程に本質的な役割を果たすと考える。このため、緩和過程を調べる上では極めて重要である。

## 2. 研究の目的

以下に研究の具体的な項目を述べる。各研究項目において焦点となるのは、対象とする強相関系特有の光誘起緩和とダイナミクスにおけるフォノン及び電子内部自由度（特にスピ

ン）の役割を明らかにすることである。

(1) 一次元 Mott 絶縁体における超高速緩和過程の解明：

先述のハロゲン架橋 Ni 錯体、及  $\text{ET-F}_2\text{TCNQ}$  に対するポンプ・プローブ分光で示されているように、光誘起金属相は数 ps 以内に元の絶縁体に無輻射緩和する。またパルスの時間分解能より高速な瞬時応答成分が存在し、この割合は励起密度の増大と共に増加する。後者の物質は電子・格子相互作用が弱く、また実験的に得られるポンプ・プローブスペクトルがスピンを考慮しないドルーデモデルで解析できることから、スピン・電荷分離の傾向を示している。従って光励起で生成されるホロン・ダブロン対は、フォノン及びスピンとの直接的な結合が小さいと考えられる。このような状況でホロン・ダブロン対が再結合したときにエネルギーを吸収する自由度がいずれであるかを明らかにする。そこから緩和過程において特徴的な時間スケールの主要因を特定し、緩和の高速性の起源について言及する。

(2) 多軌道系における光誘起スピンダイナミクス：

電荷軌道秩序した反強磁性 Mn 酸化物  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  において、ポンプ光照射に伴う磁気光学 Kerr 効果が観測されている。この結果は光照射でマクロな磁気モーメントが誘起されることを示している。この背景として、スピン・軌道相互作用或いはスピン角運動量を保った状態での強磁性ドメインの生成という可能性が考えられる。本研究項目では多軌道系の光誘起スピンダイナミクスを調べ、角運動量保存則に由来する特徴的な強磁性ドメイン生成・成長機構を明らかにする。またコバルト系においてはスピン状態自由度（高スピン・中間スピン・低スピン状態）に関する光誘起相転移の可能性が実験的に示唆されている。またスピנקロスオーバー錯体との比較から、遍歴系のスピン自由度転移の特徴が抽出できると考えられる。これらの結果を理論的に解析することを目的とする。

(3) 擬二次元系における時間発展 DMRG 法の開発：

(1) 及び (2) における次元性の効果を理解するために、擬二次元系に対する計算プログラムを開発する。(2) に関連して、高温超伝導体の母物質である二次元銅酸化物のポンプ・プローブ分光が行われているが、現状では次元性と緩和時間の関係について明確な

結論が得られていない．この問題に対する見方を与えることが目的である．加えて近年、DMRG の成功の背景には量子エンタングルメントの制御という問題があることが認識されるようになり、統計力学・量子情報の側面からも DMRG の高次元化という問題は非常に注目されている．

超短パルス励起（特に強励起）では、時間とエネルギーに関する不確定性から、広いエネルギースケールの固有状態が混合する．従って、過渡状態でしか見られない新しいタイプの素励起を見出し、低エネルギー素励起との質的な違いを明確化することが議論の焦点となる．例えば一次元系であっても低エネルギー励起で有効な見方であるスピン・電荷分離は成り立たず、緩和過程にスピン自由度が顔を出してくる可能性がある．一方、一次元 Mott 絶縁体において励起密度が大きい時には、多くの光キャリアの生成に伴って基底状態の反強磁性的スピン構造は既に乱されており、スピン自由度だけで更に光のエネルギー全てを吸収することはできないと考えられる．このことは環境自由度が深く絡んだ素励起のダイナミクスが本質であることを示唆している．Mn 系においては、単純なパーコレーションにはない強磁性ドメイン間の量子力学的共鳴・競合が、時間発展に大きく影響すると考えられる．

### 3．研究の方法

DMRG を応用し、動的相関関数の計算及び実時間シミュレーションを行った．DMRG は一次元量子多体系の基底状態を精密に計算する数値シミュレーション法であり、莫大な次元のハミルトニアン行列の情報を圧縮して対角化するところに特徴がある．申請者はこれを動的計算に拡張し、過去に一次元 Mott 絶縁体の光学伝導度や一粒子励起スペクトルを計算してきた．また電子格子結合系のように、フォノン自由度が結合したモデルの電子状態解析も行っている．本研究課題では、それらを縦横に駆使して解析を行うところに申請者の独自性がある．即ち、強相関効果の取り扱い、パルス励起による光励起状態の生成、緩和過程の実時間シミュレーション、格子系へのエネルギーの散逸過程、などを量子的なレベルで非常に精密に取り扱うことが可能である．

### 4．研究成果

(1)一次元 Mott 絶縁体における超高速緩和過程の解明：

レーザーパルスのベクトルポテンシャルとフォノン自由度を取り込んだ拡張 Hubbard 模型を用いて、光照射で強相関系に生成さ

れた光キャリア（ホロン・ダブロン）のダイナミクスを解析した．光励起によって電荷とスピン自由度は結合するが、この結合は非常に弱いことが分かった．この傾向は非常に強いパルス励起のときにも保たれ、スピン電荷・分離という低エネルギー領域のコンセプトがそのまま光励起状態・緩和過程においても成り立つことが分かった．一方、電子格子相互作用は、その値が小さくても緩和過程において非常に沢山のフォノンを放出し、キャリアはフォノン揺らぎの雲をまとった状態となる．フォノンの影響はむしろ弱相関係の方が強く、その場合のキャリアは局在しやすい．従って強相関係中の光キャリアに対して、フォノン系はエネルギーの散逸場として有効に働くと考えられる．DMRG による詳細な数値計算の結果から、スピン・電荷分離の安定性とフォノンダイナミクスに対する上記の視点が初めて得られた．

(2)多軌道系における光誘起スピンダイナミクス：

二重交換系の光誘起ダイナミクスについて：二重交換模型を用いて、パルス励起後のスピン・電荷自由度の分離・結合と緩和過程について調べた．光励起後の短い時間スケールではスピンと電荷の自由度の結合は強い．通常の二重交換相互作用の物理で知られているように、そこでは電子の運動が支配的である．一方、スピン緩和が支配的な長時間応答については、電荷のセクターはスピン状態の変化にそれほど追従しない．従って、緩和の時間軸で見ると、スピン・電荷の結合の強さはダイナミックに変化していく．このような結果は、平衡状態の二重交換系の理論を拡張したものになっている．

スピン状態自由度転移について：高スピン状態・低スピン相を持つ有効模型に対して、その光照射効果を調べた．相境界近傍の低スピン・バンド絶縁体へ光を照射した場合、光注入されたホールは周囲に誘起された高スピン状態と束縛状態を作ることが分かった．この束縛状態は、ポンプ・プローブシグナルに特徴的なピーク構造を与えることが分かり、最新の実験結果ともコンシステントであることが分かった．

(3)擬二次元系における時間発展 DMRG 法の開発：

量子多体系は、空間次元に対応したエンタングルメント・エントロピーのスケール特性を持っていることが知られている．この性質を取り込んだ変分波動関数を構成することが本質的で、一次元系の場合、DMRG を用いた繰り込みはそれに対応する変分関数を作る操作であることが分かっている．これを二次元系に拡張するためには、テンソル積変分

波動関数を構成する必要がある．また基底状態の計算のみならず，虚時間発展の方法を用いてダイナミクスを扱うことも原理的には可能である．

この変分理論を光誘起相転移の問題に適用することが求められるが，残念ながら研究期間内には完成を見なかった．しかしながらこの分野は，超弦理論のゲージ重力対応や超高効率画像圧縮法など，全くの異分野と実は密接な関わりがあるということが明らかになりつつある．そのためコミュニティを創設し，新たな活動を模索しつつある．光誘起相転移の問題への応用という観点は一つの例として捉えなおし，より大きな方向性の研究へと進展させることができそうである．

研究成果全体を総括すると，(1)及び(2)で得られた結果は，強相関系へ光注入されたキャリアの特質をよく捉えていると考えられる．キャリアは周囲の量子揺らぎの雲をまとって複合的な粒子となっている．異なる電子相の相境界では，この揺らぎは非常にグローバルに伝搬する．従って，時間の非常に初期の過程で，どのようなタイプの複合励起が局所的に生成されるかで，その後の相の時間変化が決まってくる．そのようなキャリアは一般には単純なフェルミオンではなく，そのスペクトル重みや一粒子的バンドが非常に強い波数依存性と温度・ドーピング変化を示す．これは申請者の新たな研究として，銅酸化物高温超伝導のメカニズムの問題に関わって展開中である．光誘起相転移の問題は，強相関電子系の基礎的な励起モードを，時間軸という今までアクセスしてこなかった方向から捉え，そのモードの電子状態をより詳細に理解するためのプローブであるということが分かった．

## 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8件): 全て査読あり

H. Matsueda, S. Sota, T. Tohyama, and S. Maekawa, Relaxation Dynamics of Photocarriers in One-Dimensional Mott Insulator Coupled to Phonons, J. Phys. Soc. Jpn. 81, 013701(1-4) (2012).

Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, Photoinduced Change in the Spin State of Itinerant Correlated Electron Systems, Phys. Rev. Lett. 107, 167403(1-4) (2011).

松枝宏明: エンタングルメントで見る時空の幾何学構造とテンソル積波動関数, 物性研究, 96, 383-482 (2011).

Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, Numerical Study of photoinduced dynamics in a double-exchange model, Phys. Rev. B82, 115101(1-14) (2010).

松枝宏明: 密度行列繰り込み群の最近の話題 テンソルネットワークに潜むエンタングルメント構造, 日本物理学会誌, 65, 409-416 (2010).

Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, Dynamical coupling and separation of multiple degrees of freedom in a photoexcited double-exchange system, Phys. Rev. Lett. 103, 267401(1-4) (2009).

Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, Transient spectra of photo-excited states in double exchange model, Journal of Physics: Conference Series 148, 012060 (2009).

S. Ishihara, Y. Kanamori, and H. Matsueda, Photo-induced phenomena in correlated electron system with multi-degree of freedom, Journal of Physics: Conference Series 148, 012056 (2009).

[学会発表](計5件)

松枝宏明, 強相関絶縁体の金属化と緩和過程に関する研究, DYCE 理論ワークショップ, 大阪大学理学部, 2010年8月9・10日

H. Matsueda, Application of density matrix renormalization group method to photoinduced phenomena in strongly correlated electron systems, Workshop on Matrix Product State Formulation and Density Matrix Renormalization Group Simulations (MPS & DMRG), Oxford Kobe Institute, August 12-13, 2009

S. Ishihara, Y. Kanamori, H. Matsueda, J. Ohara, Photo excited state in spin-charge coupled correlated electron system, APS March meeting 2012 (Boston, Massachusetts, US) Feb. 27-March 2, 2012

H. Lu, S. Sota, H. Matsueda, T. Tohyama, Photoinduced phase transition in one dimensional extended Hubbard model, APS March meeting 2012 (Boston, Massachusetts, US) Feb. 27-March 2, 2012

松枝宏明, 低次元強相関電子系の光学スペクトルに対する DMRG の応用, 日本物理学会 2009 年秋季大会 (熊本大学 2009 年 9 月) 領域 11・領域 3・領域 5・領域 8 合同シンポジウム「密度行列繰り込み群 (DMRG) の新展開」

〔図書〕(計1件)

Hiroaki Matsueda:  
Application of density matrix  
renormalization group method to  
photoinduced phenomena in strongly  
correlated electron systems  
(分担執筆, World Scientific 社より発行予  
定)

〔その他〕

ホームページ等

<http://hirose.sendai-nct.ac.jp/matsueda/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松枝 宏明 (MATSUEDA HIROAKI)  
仙台高等専門学校・  
情報電子システム工学専攻・准教授

研究者番号 : 20396518

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号 :

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号 :