

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23540359

研究課題名(和文)高精度電子状態計算を利用した多自由度系の光電子分光とモット転移の研究

研究課題名(英文) Highly accurate electronic structure calculations for the Mott transition with multiple degrees of freedom

研究代表者

富田 憲一 (Tomita, Norikazu)

山形大学・理学部・教授

研究者番号：70290848

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：電荷、スピン、軌道、格子といった複数の自由度が複雑に絡み合った物質は、技術的応用の可能性が高い為、精度の良い理論的物性予測が重要である。本研究では、まず、3つの縮退した軌道を有するSrVO₃が、同一サイトの異なる軌道間に働く交換相互作用によりバンドの縮退が解けることを指摘し、次元変化に伴う金属-絶縁体転移の機構も明らかにした。

次に、格子を非断熱的、量子力学的に記述する手法を開発し、ポリマーの電子状態について研究した。低次元導電性ポリマーの多くは、金属状態における格子構造が不明なままであった。本研究では、状態密度の波数依存性から、格子歪を伴った動続状態の可能性を指摘した。

研究成果の概要(英文)：Correlated materials with multiple degrees of freedom, such as charge, spin, orbital, and lattice, have potentials for technological application. However highly accurate theoretical description has been quite difficult so far. We have developed a new theoretical framework to describe such correlated materials and clarified their detailed electronic structures. First, we have pointed out that the exchange interaction of the on-site and different orbitals can break the band degeneracy of SrVO₃ which has three degenerate orbitals.

Then we have clarified the electronic structures of conducting polymers. The relationship between the conductivity and the lattice structure has been an open question for a long time. We have succeeded to treat the lattice quantum mechanically and beyond the adiabatic application by using the coherent state representation of phonons. We have pointed out that the lattice distortion survives even after they behave as a simple metal.

研究分野：光物性理論

キーワード：多自由度系 モット転移 共鳴Hartree-Fock法 非断熱的效果 格子 量子揺らぎ

1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷、スピンの自由度に加え、軌道や格子の自由度が絡み合うことで、強誘電性と強磁性など、**複数の自由度で秩序化が共存する**マルチフェロイックと呼ばれる現象も発見され、**電子の持つ多自由度性と豊かな物性が注目されていた**。多自由度系では、複数の秩序状態がエネルギー的に接近しているため、**光や磁場等で励起することで、基底状態では隠れていた秩序状態が発現すること**も確認されており、高速スイッチングやメモリなどのデバイスへの応用も期待されていた。一方で、こうした複雑な物性を制度良く記述する理論は限られていた。特に、格子構造は断熱近似の枠内で記述されることがほとんどで、量子力学的、非断熱的な手法の開発が待たれていた。

2. 研究の目的

(1) **多自由度系エレクトロニクス**の基礎を構築することが本研究の目的である。具体的には、ペロブスカイト構造の層数を制御できる軌道縮退系の SrVO₃ の電子構造を解明する。この物質については、角度分解光電子分光が既に観測されており、3つの構造が明らかになっているが、各構造の起源については分かっていないことも多かった。特に軌道の自由度が電子構造に及ぼす影響と、それが光電子分光にどう観測されるかを明らかにする目的があった。

(2) 電子と格子は互いに密接に関連しているが、電子状態計算が顕著な発展を見せてきたのに対し、格子構造は相変わらず断熱的古典的に扱われることが多い。本研究では、格子を量子力学的に、また断熱近似を越えて取り扱える方法論を開発し、特に低次元系の電子格子相互作用の効果を明らかにする目的があった。

3. 研究の方法

本研究では、非直交マルチスレーター行列式で多体波動関数を構築する高精度電子状態計算手法(共鳴 Hartree-Fock(HF)法)を用いて研究を推進する。ここで少し本手法について説明する。共鳴 HF 法では、以下のように非直交スレーター行列式の重ね合わせで多体波動関数を構築する。

$$|\Psi\rangle = \sum_{f=1}^{N_S} C_f |f\rangle$$

ここで、重ね合わせの係数 C_f と各スレーター行列式 $|f\rangle$ の軌道を同時に最適化する。非直交スレーター行列式を重ね合わせることで、各スレーター行列式の全電子励起の効果が取り込まれ、少数個のスレーター行列式で効率よく電子相関を取り込むことが可能になる。

一方、格子はコヒーレント状態表示を用いる

と

$$|z\rangle = N_z \exp(\mathbf{z} \cdot \mathbf{b}^\dagger) |0\rangle$$

$$\mathbf{z} = (z_1, z_2, \dots), \mathbf{b}^\dagger = (b_1^\dagger, b_2^\dagger, \dots)$$

$$\mathbf{z} \cdot \mathbf{b}^\dagger = z_1 b_1^\dagger + z_2 b_2^\dagger + \dots$$

のように表される。共鳴 HF 波動関数を

$$|\Psi\rangle = \sum_{f=1}^{N_S} C_f |u_f\rangle |z_f\rangle$$

と拡張することで、異なる格子構造を重ね合わせることになり、断熱近似を越えた格子の揺らぎを量子力学的に記述することが可能になる。

4. 研究成果

(1) SrVO₃ は 3 重縮退した t_{2g} 軌道に 1 つの d 電子が占有されており、モット転移における軌道自由度の効果を見る上で最適の物質である。基本となるハミルトニアンは次式で表される。

$$H = - \sum_{\langle \vec{r} \vec{r}' \rangle} \sum_{i=1}^3 \sum_{\sigma=\uparrow\downarrow} t(\vec{r} - \vec{r}') \{ a_{i\vec{r}\sigma}^\dagger a_{i\vec{r}'\sigma} + h.c \} \\ + U \sum_{\vec{r}} \sum_{i=1}^3 n_{i\vec{r}\uparrow} n_{i\vec{r}\downarrow} + U' \sum_{\vec{r}} \sum_{\langle i,j \rangle} n_{i\vec{r}} n_{j\vec{r}} \\ + J \sum_{\vec{r}} \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma,\rho} \{ a_{i\vec{r}\sigma}^\dagger a_{j\vec{r}\rho}^\dagger a_{i\vec{r}\rho} a_{j\vec{r}\sigma} + a_{i\vec{r}\sigma}^\dagger a_{i\vec{r}\rho}^\dagger a_{j\vec{r}\rho} a_{j\vec{r}\sigma} \}$$

ここで i, j は 3 重縮退した t_{2g} 軌道を表し、右辺第 1 項のトランスファーは次最隣接格子点まで取る。第 2 項は同一軌道間の、第 3 項は異なる軌道間のサイト内クーロン相互作用を、最後の項はフント結合を表している。私は U' 及び J から来る交換項が、軌道の再構築とエネルギー分裂を生じさせることを示した。これは single site での固有値方程式

$$\begin{pmatrix} \epsilon_U & \epsilon_{U',J} & \epsilon_{U',J} \\ \epsilon_{U',J} & \epsilon_U & \epsilon_{U',J} \\ \epsilon_{U',J} & \epsilon_{U',J} & \epsilon_U \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{xy} \\ a_{yz} \\ a_{zx} \end{pmatrix} = E \begin{pmatrix} a_{xy} \\ a_{yz} \\ a_{zx} \end{pmatrix}$$

からも理解できる。つまり、非対角項(交換項)がなければ軌道は 3 重縮退しているが、非対角項が入ると、低エネルギーの軌道(a)と高エネルギーで 2 重縮退した軌道(b,c)に分裂する。この軌道再構築の特徴は、**3つの t_{2g} 軌道には、等価な確率で電子が占有されているにもかかわらず、再構築された軌道にはエネルギー分裂が生じ占有確率が異なる** と言う点である。そのため再構築された軌道を作るバンドは等価ではなく、**軌道 b,c はフェルミエネルギー近傍にバンドを作り、軌道 a はより深い位置にバンドを作る**。図 1 にバンド計算の結果を示す。この結果は、SrVO₃ の光電子分光実験の結果を良く説明している。エネルギーの低いバンドには、より多くの電子が占有さ

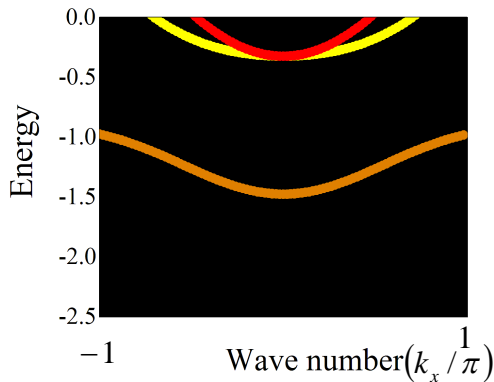


図 1

れ、絶縁体に近い電子構造が実現されていると考えている。一方、これまで SrVO₃ の電子構造は、*t_{2g}* 軌道がそのまま 3 重縮退したバンドを作ると考えられてきた。また、薄膜を作成し 2 次元化すると、絶縁体に転移することが実験によって示されている。私は、同じモデル、同じパラメーターを用いて次元だけ 2 次元に変え、状態密度の計算を行った。その結果を図 2 に示す。

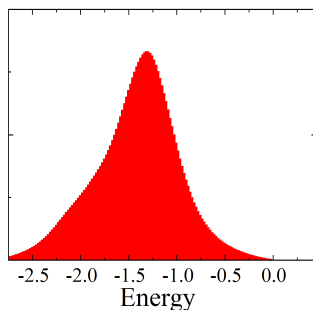


図 2

フェルミエネルギーのところに明確なギャップが現れることがわかる。このように、次元交差による金属 絶縁体転移を自然に説明することができた。

(2) 一方、1 次元導電性ポリマーを表すハミルトニアン

$$H = -t \sum_{i\sigma} \{1 + \alpha(q_{i+1} - q_i)\} (a_{i\sigma}^\dagger a_{i+1\sigma} + a_{i+1\sigma}^\dagger a_{i\sigma}) + \sum_i \left[\frac{p_i^2}{2m} + \frac{k(q_{i+1} - q_i)^2}{2} \right]$$

について、格子のコヒーレント状態とスレーター行列式の直積を重ね合わせた波動関数を最適化し、状態密度の波数依存性を計算した。結果を図 3 に示す。正孔をドーピングすることで、状態密度に飛びが現れることがわかる。この飛びが現れる高ドーピング領域では、パウリ帯磁率が観測できる一方、格子はひずみを伴っており赤外分光に構造が現れることがわかる。この、パウリ帯磁率と赤外分光のピークを理論的に矛盾なく説明したのは本研究

が初めてである。

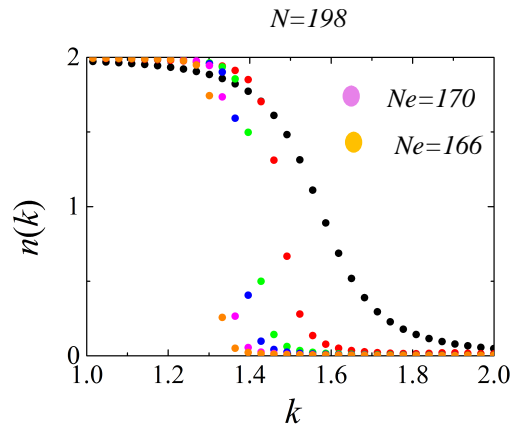


図 3

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 7 件)

T. Maruyama, F. Sato and N. Tomita,
Resonating Hartree-Fock Studies on
magnetic states in the Hubbard model on the
uniform triangular lattice,
Journal of Physics, Conference Series 査読
有 **320** (2011) 012061.
DOI:10.1088/1742-6596/320/1/012061

F. Satoh, T. Maruyama, M. Ozaki and N. Tomita
Group-theoretical and resonating
Hartree-Fock studies for spin fluctuations in
two-dimensional Hubbard model on
triangular lattice, Phys. Rev. 査読有 **B84**
(2011) 245101.
DOI:10.1103/PhysRev.84.245101

富田憲一、渡辺秀治、丸山貴昭
共鳴 Hartree-Fock 法を用いた量子揺らぎ
の視覚化、日本物理学会学会誌、査読有
2011 年 6 月号 430

N. Tomita, S. Watanabe, K. Shida, H. Gomi,
and A. Takahashi
Visualization of quantum electronic and
lattice fluctuations in the Hubbard model by
using a resonating Hartree-Fock method,
Journal of Physics: Conference Series 査読
有 **410** (2013) 012159
DOI:10.1088/1742-6596/410/1/012159

S. Watanabe, M. Kato, and N. Tomita,
Resonating Hartree-Fock studies on the
electronic structures of the two-dimensional
hole-doped Hubbard model, J. Phys. Soc,
Jpn. 査読有 **82**, (2013) 044705.
DOI:10.7566/JPSJ.82.044705

T. Okunishi, R. Clark, K. Takeda, K. Kusakabe, and N. Tomita,
Time-Dependent Configuration Interaction Approach for Multielectron System Confined in Two-Dimensional Quantum Dot, Jpn. J. App. Phys. 査読有 52(2013) 022801.
DOI:10.7567/JJAP.52.022801

H. Ohnishi, N. Tomita and K. Nasu
Real Time Relaxation Dynamics of Macroscopically Photo-Excited Electrons toward the Fermi Degeneracy Formation in the Conduction Band of Semiconductors, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 84(2015)043701.
DOI:10.7566/JPSJ.84.043701

[学会発表](計 7 件)

富田憲二, SrVO₃ の光電子分光に対する新解釈, 2011 年日本物理学会秋季大会、富山大学

N. Tomita, Visualization of quantum electronic and lattice fluctuations in the Hubbard model by using a resonating Hartree-Fock method, International Conference on Mathematical Modeling in Physical Science, Budapest, Hungary, 2012.

N. Tomita, Visualization of quantum fluctuations due to electron-electron and electron-phonon interactions, Collaborative Conference on 3D & Materials Research, Jeju, Korea, 2013.

富田憲一, 大西宏昌, 那須奎一郎, 光励起された伝導帯電子の Fermi 縮退形成へ向かう時間発展と 2 光子光電子分光の理論, 2013 年日本物理学会秋季大会、徳島大学

富田憲一, 時間分解・2 光子光電子分光の理論～伝導帯に光励起された電子が Fermi 面を形成するまで～日本物理学会第 69 回年次大会、東海大学

N. Tomita, Theory for the two-photon photoemission spectroscopy: Photogeneration of the Fermi surface in the electron vacuum, Collaborative Conference on 3D & Materials Research, Seol, Korea, 2014.

N. Tomita, Theory for the time-resolved

two-photon photoemission spectroscopy on GaAs and InP, ICCP9, Singapore(2015).

[図書](計 0 件)

[産業財産権]
出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等
http://sci.kj.yamagata-u.ac.jp/~tomita/Tomita's_Home_Page_j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富田 憲一 (Tomita Norikazu)

山形大学理学部物理学科教授

研究者番号:

7 0 2 9 0 8 4 8

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: