

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25400327

研究課題名(和文)電子正孔系・セミメタル系・Dirac電子系における多体効果と光学応答の理論

研究課題名(英文) Theory on manybody effects and optical response in electron-hole, semimetal, and Dirac electron systems

研究代表者

浅野 建一 (ASANO, Kenichi)

大阪大学・理学研究科・准教授

研究者番号：10379274

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)：電子正孔系に関して3つの成果を得た。1)自己無撞着 T 行列近似を用いて二次元電子正孔系の励起子のイオン化率を求め、励起子気体と電子正孔プラズマ間のクロスオーバーを明らかにした。また、低温では両者の間に、気液相転移あるいはイオン化率のとびを伴う一次相転移があり得ることも示した。2)バンドの非放物線性、バンド間の遮蔽効果を考慮したハミルトニアンを数値的に対角化して、カーボンナノチューブにおける荷電励起子の微細構造を調べ、実験結果と比較した。3)クラスター変分法を用いて、カゴメ格子 Hubbard 模型における Mott 転移が、バレンスボンド固体の形成によって引き起こされることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We studied the Mott transition in electron-hole system and related matters, which are summarized into three parts:

(1) Using the self-consistent T matrix approximation, we obtained the ionization ratio of the excitons in two dimension and clarified the whole picture of the crossover between the exciton gas and the electron hole plasma. (2) We dealt the trions in carbon nanotubes by taking account of both the non-parabolicity of the energy band and the inter-band screening effect, and clarified the detailed low energy structure of the ionized excitons, succeeding in making realistic comparison with the experiments. (3) We showed using the variational cluster method that in the frustrated Kagome lattice the Mott transition is driven by the formation of the valence bond crystal.

研究分野：物性理論

 キーワード：電子正孔系 励起子 半導体 光学応答 モット転移 ハバードモデル カーボンナノチューブ BCS-B  
ECクロスオーバー

## 1. 研究開始当初の背景

### (1) 電子正孔系のグローバル相図

二価金属やタイプ II 半導体構造、あるいは強く光励起した半導体では、多数の電子と正孔が熱平衡に達したセミメタル系や電子正孔系が実現される。電子数と正孔数が等しい系の相図を電子正孔密度と温度の平面上に図示すると、低密度・低温で励起子気体(絶縁相)、高密度・高温で電子正孔プラズマ(金属相)が実現し、両者間で Mott 転移またはクロスオーバーが起こる。また、これら二相を極低温まで冷やすと、それぞれが励起子 Bose-Einstein 凝縮(BEC)状態および電子正孔 Cooper 対の BCS 凝縮状態へ転移し、両状態は BEC-BCS クロスオーバーで繋がると予想される。しかし、この系の相図全体を統一的に描いた理論は殆どなく、特に Mott 転移・クロスオーバーについては、転移とクロスオーバーの区別さえ曖昧であった。

そこで我々は、擬一次元電子正孔系のグローバル相図を、自己無撞着 T 行列近似を改良し、励起子のイオン化率の概念を導入することによって描き、Mott 転移およびクロスオーバーの全容を解明した。これによって転移・クロスオーバーが、高温領域の量子古典クロスオーバー、イオン化率が不連続に変化する純粋な Mott 転移、励起子気体とプラズマ間の気液相転移(または不均一相の出現)の三つの型に分類されることが示された。また、これまで伝統的に用いられてきた Mott 密度の概念が、バンド間光学スペクトルの変化を表す大雑把な目安に過ぎず、イオン化率の変化(絶縁体から金属への変化)を表す指標としては役に立たないことも示した。

### (2) カーボンナノチューブにおける荷電励起子・励起子分子

我々はカーボンナノチューブにおける荷電励起子および励起子分子についても研究を進めてきた。以前からこの系では、一次元性を反映した巨大な励起子束縛エネルギーをもつことが示されていた。この理論を荷電励起子や励起子分子の考察へ拡張し、バンド間遮蔽効果とバンドの非放物線性の効果の重要性を示した。

### (3) カゴメ格子 Hubbard 模型における Mott 転移

強相関電子系の分野では、多バンド Hubbard 模型における Mott 転移の研究が進んでおり、そこで得られる結果は電子正孔系と非常によく似た特徴を示すことが明らかになっている。しかし、両者の類似性がどこから来ているのか、あるいは、電子正孔系には見られない強相関電子系の特徴はどのようなものかといった基本的な問題が良く分かっていない。

電子正孔系の Mott 転移・クロスオーバー

は長距離秩序の形成を伴わないことが分かっているため、強相関系での対応物を、磁氣的フラストレーションのために単純な磁気秩序形成が起こさず Mott 転移を起こす系に求める必要がある。実際に三角格子やカゴメ格子上の Hubbard 模型でこの種の Mott 転移を考察した先行研究があった。

## 2. 研究の目的

### (1) 電子正孔系のグローバル相図

我々が開発した改良された自己無撞着 T 行列近似は、励起子気体と電子正孔プラズマ間で起こる古典-量子クロスオーバー、純粋な Mott 転移、気液相転移(または不均一相の出現)という三つの可能性を、同一の理論の枠組みの中で扱うことができ、既存の理論をはるかに越えた情報を与える。この手法を二次元系へ適用して、レーザーの応用も見据えた「地図作り」を行うことを目標とする。

### (2) カーボンナノチューブにおける荷電励起子・励起子分子

我々はカーボンナノチューブにおける荷電励起子について、その微細構造を含めた計算を行っていたが、計算結果と実験との比較は不十分であった。そこで本研究課題では両者の比較から物理的理解を深化させることを目指す。

### (3) カゴメ格子 Hubbard 模型における Mott 転移

磁氣的フラストレーションがあるために単純な磁気秩序形成が起こらない Hubbard 模型としてカゴメ格子上で定義されたものを考える。この系をハーフフィリングにしてオンサイト相互作用を大きくしていくと Mott 転移が起きる。

しかし、この系には強い磁氣的フラストレーションがあつて、強結合極限に対応する反強磁性的 Heisenberg 模型でも磁気秩序が生じないことが分かっており、Mott 転移が磁気秩序形成を伴わない例になっていることが期待される。そこで、この系での Mott 転移の機構を解明することを目指とする。

## 3. 研究の方法

### (1) 電子正孔系のグローバル相図

まず静的に遮蔽されたクーロン相互作用を使い、はしご近似で T 行列を構成し、電子正孔の自己エネルギーを T 行列とコンシステントになるように定め、相互作用効果を繰り込んだ準電子と準正孔間の有効散乱問題を構成する。これを数値的に解けば電子正孔密度を自由準粒子と束縛状態からの寄与に分解できる。これにより現象論に頼らず、量子力学レベルで励起子のイオン化率を決める Saha 方程式を導出できる。その際、遮蔽

にはプラズマを形成する自由準粒子のみが関与すると仮定する。こうしてイオン化率の変化から、Mott 転移およびクロスオーバーの様子を調べることができる。また T 行列から電子正孔のペア感受率が得られるので、Thouless の判定条件から量子凝縮相への転移温度が求まる。

#### (2) カーボンナノチューブにおける荷電励起子・励起子分子

カーボンナノチューブがグラフェンを丸めて作られていること、およびバンド間の遮蔽効果を正しく考慮したハミルトニアンを数値的に対角化して厳密に荷電励起子および励起子分子の準位とそれらの波動関数を求めた。さらに、荷電励起子の微細構造を調べた。

#### (3) カゴメ格子 Hubbard 模型における Mott 転移

ここでは Mott 転移を調べるだけでなく、磁気秩序の有無を調べる必要があるため、両者を同等に扱えるクラスター変分法を用いた。これはいくつかの変分パラメーターを含むクラスターのハミルトニアンを数値的に対角化し、電子の自己エネルギーを求め、この自己エネルギーを埋め込んだ無限系の熱力学ポテンシャルを求め、熱力学ポテンシャルの変分がゼロになるように変分パラメーターを決める手法である。

### 4. 研究成果

#### (1) 電子正孔系のグローバル相図[文献 3-6]

我々が開発した自己無撞着 T 行列近似では、電子正孔間、電子間、正孔間の二体相関（特に電子正孔間の励起子相関）を T 行列を通じて取り入れ、その情報を電子や正孔の自己エネルギーに自己無撞着に反映させている。さらに一粒子スペクトルから励起子のイオン化率を決め、それを相互作用の遮蔽パラメーターに反映させて、外部からパラメーターを与えずに、T 行列、自己エネルギー、イオン化率、遮蔽パラメーターを自己無撞着に決定している。

実際にこの手法を二次元電子正孔系に適用して、広い密度・温度領域に渡る「グローバル相図」を励起子のイオン化率を密度と温度の平面上に等高線プロットすることによって作成し、これまで当該分野で用いられてきた Mott 密度の概念を超えて、励起子気体と電子正孔プラズマの間に生じるクロスオーバーの全貌を明らかにした。そこから、励起子のイオン化の振る舞いのある種の古典量子クロスオーバーとして理解できることが分かった。また、温度を下げていくと、励起子気体相と電子正孔プラズマ相の間に、一様な状態が不安定化する（圧縮率が負になる）領域、およびイオン化率が不連続に跳ぶ点が見つかった。これらは励起子形成により

相互作用の遮蔽効果が抑制され、励起子気体が自己安定化した結果として生じたもので、共存相を伴う一次相転移や非一様な新奇相の出現を示唆している。

電子正孔対の凝縮相（励起子のボーズ・アインシュタイン凝縮相や電子正孔クーパ対の凝縮相）についても考察し、有限温度では短距離引力相互作用系と同様に長距離秩序は生じないことを示した。さらに、これまでの研究であまり調べられていなかった一粒子スペクトルを系統的に調べ、そこに現れる励起子的相関由来の構造を明らかにした。特に低温・高密度領域では電子正孔対凝縮への前駆現象が見出された。

#### (2) カーボンナノチューブにおける荷電励起子・励起子分子[文献 2]

カーボンナノチューブ上の荷電励起子の微細構造を調べ、最もエネルギーが低い荷電励起子が、暗励起子と正孔（または電子）の束縛状態に近い性格を持つことを明らかにした。

それにも関わらず、この励起子は光学許容であり、発光スペクトルで観測可能である。さらに、励起状態も含めて、状態を対称性によって分類する理論を作り、それらの束縛エネルギーを計算した。この結果を実験グループとの共著の論文にまとめた。

#### (3) カゴメ格子 Hubbard 模型における Mott 転移[文献 1]

カゴメ格子上で定義されたハーフフィリングの Hubbard モデルにおいて Mott 転移を考察した。この系は強い磁氣的フラストレーションを示す系として興味を持たれており、特に強結合極限に当たる反強磁性 Heisenberg モデルの基底状態が 120 度ネール秩序のような単純な磁気秩序を示さないことが知られている。

我々はクラスター変分法を用いて考察を行ったが、その結果はクラスターのサイト数や形状に依存する。その結果、反強磁性 Heisenberg モデルの結果を強結合極限で再現するには偶数サイトのクラスターを用いるべきことが明らかになった。

また、絶対零度における Mott 転移が、これまで信じられていた Brinkman-Rice 機構（フェルミ準位上の準粒子の質量が発散する機構）ではなく、valence-bond が結晶化する非自明な秩序の形成を原動力とする Slater 機構によるものであることを明らかにした。つまり、相互作用起因のバンド分裂により、セミメタルから絶縁体への転移が起きるわけである。これは電子正孔系で見られる Mott 転移と類似した現象であり、大変興味深い。

上記の物理を、バンド描像ではなく実空間上の描像で見ると、valence-bond の形成により一重項を組んで隣接する 2 サイト上に電子が局在する機構が Mott 転移において

重要であることが分かる。クラスターのサイズを大きくした場合には、我々が考えたものより複雑な valence-bond 結晶や、結晶が融解したスピン液体が実現する可能性もあるが、上記の機構自体は生き残ると予想される。

#### (4) その他

グラフェンに定常的に光を照射した系を Floquet 理論で扱おうと、バンドにギャップが開き、有効的なトポロジカル絶縁体（ある種の量子ホール系）に変化することが知られている。従って、系に端がある場合にはカイラルエッジ状態が出現する。特にグラフェンリボンを考えたとき、両端のカイラルエッジ状態間の混成を無視できれば、この系は量子ホール系の新しい舞台と見なる。しかし、光によって生じるバンドギャップはとても小さく、カイラルエッジ状態の空間的広がりが大きいので、現実的な幅のグラフェンリボンが本当に量子ホール系とみなせるかどうかについて疑問が残る。そこで、光照射の強度によってカイラルエッジ状態がどのように変化するかを調べた。ここでは、これまであまり研究されていなかったアームチェア型のリボンについて調べ、kp 摂動論を用いて、ほとんど解析的にこの系を取り扱うことに成功した。光を当てていないグラフェンリボンにバンドギャップが開いているかいないかに依存して、光を当てたときのカイラルエッジ状態の生じ方が変化することが明らかになった。

#### 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6件)

Ryota Higa, Kenichi Asano, Bond formation effects on the metal-insulator transition in the half-filled kagome Hubbard model, *Physical Review B*, 査読有, **93**, 2016, pp. 245123/1-11.  
DOI:10.1103/PhysRevB.93.245123

N. Akizuki, M. Iwamura, S. Mouri, Y. Miyachi, T. Kawasaki, H. Watanabe, T. Suemoto, K. Watanabe, K. Asano, K. Matsuda, *Physical Review B*, 査読有, **89**, 2014, 195432 1-5.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.89.195432

Kenichi Asano and Takuya Yoshioka, Exciton-Mott Physics in Two-Dimensional Electron-Hole Systems: Phase Diagram and Single-Particle Spectra, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有, **83**, 2014, pp. 084702/1-10.  
DOI: 10.7566/JPSJ.83.084702

Takuya Yoshioka, Kenichi Asano,

Quasi-equilibrium phase diagram and optical response in two-dimensional electron-hole system, *AIP Conf. Proc.*, 査読有, **1566**, 2013, pp. 443-444.  
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4848516>

Kenichi Asano, Mott transition and crossover in quasi-one-dimensional electron-hole systems, *AIP Conf. Proc.*, 査読有, **1566**, 2013, pp. 524-525.  
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4848476>

浅野建一, 電子正孔系の物理, 物性研究電子版, 査読無, 3, 2013, pp.031207/1-21.

[学会発表](計11件)

Kenichi Asano, "Metal-Insulator Transition in the Half-Filled Kagome Hubbard Model", 8th International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2016, 2016年9月7日~2016年9月11日, 台北市(台湾).

Chisa Hotta, Kenichi Asano, "Bulk susceptibility and specific heat in some frustrated lattice models", 8th International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2016, 2016年9月7日~2016年9月11日, 台北市(台湾).

堀田 知佐, 浅野 建一, "三角格子系の磁化率の問題", 物性研短期研究会「パイ電子系物性科学の最前線」, 2016年8月9日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

八木 梢恵, 浅野 建一, "グラフェンリボンにおけるフロクエエッジ状態", 日本物理学会 第71回年次大会 2016年03月21日, 東北学院大学(宮城県仙台市).

比嘉 亮太, 大橋 琢磨, 浅野 建一, "カゴメ格子 Hubbard 模型における磁気秩序 II", 日本物理学会第70回年次大会, 2015年03月21日~2015年03月24日, 早稲田大学(東京都新宿区).

Kenichi Asano, "Trions and Biexcitons in Semiconducting Single-Wall Carbon Nanotubes", XXVI IUPAP Conference on Computational Physics, CCP2014, 2014年08月11日~2014年08月14日, Boston.

Ryota Higa, Takuma Ohashi, Kenichi Asano, "Magnetic Orders in Half-Filled Hubbard Model on Kagome Lattice", The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2013, 2013年08月05日~2013年08月09日, 東京大学(東京都文京区)

Kenichi Asano, "Mott Transitions and Crossovers in Low-Dimensional Electron-Hole Systems", The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2013, 2013年08月05日～2013年08月09日, 東京大学(東京都文京区)

浅野 建一, "二次元格子における Dirac 点の設計", 2013 年度 基研研究会 「固体中におけるディラック電子系物理の新展開」(招待講演), 2013年06月19日～2013年06月21日, 京都大学(京都府京都市)

浅野 建一, "電子正孔系の物理", 第 58 回物性若手夏の学校(招待講演), 2013年08月12日～2013年08月16日, 白浜荘(滋賀県)

比嘉 亮太, 大橋 琢磨, 浅野 建一, カゴメ格子ハバード模型における磁気秩序, "日本物理学会 第 69 回年次大会", 2014年03月27日～2014年03月30日, 東海大学(神奈川県伊勢原市).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

浅野 建一 (ASANO, Kenichi)

大阪大学・理学研究科・准教授

研究者番号: 10379274