

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：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2016

課題番号：25800204

研究課題名(和文)強相関系における電荷不均一現象の理論的研究

研究課題名(英文)Theory on randomness in strongly correlated electronic systems

研究代表者

堀田 知佐 (HOTTA, Chisa)

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授

研究者番号：50372909

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：2次元分子性結晶ET塩の電荷の異常応答の実験に動機づけられ、量子多体効果の本質的な要因とする電荷の不均一や特徴的な応答を理解する一般論の構築に向け、複数の手法の発展及び開発を行うとともに、実験現象を解明することに成功した。

量子モンテカルロ法における動的応答関数の計算法を提案、横磁場イジングモデルに適用し、周波数分散をもつ誘電応答が本質的には臨界現象による相関長や相関時間の発散に由来することを明らかにした。ハミルトニアンを空間変調することによってスケールフリーな物理量を求めるグランドカノニカル法で、10サイト程度の系で10の-3乗の誤差で熱力学極限での磁化率、比熱を得た。

研究成果の概要(英文)：Motivated by a series of experimental studies on kappa-ET2X materials, showing dielectric anomaly at temperatures lower than 50K, we made several attempts to develop numerical methods to precisely analyze the dynamical and finite temperature properties of quantum many body systems in two dimension.

We clarified the temperature and frequency dependence of the dielectric response functions of the two dimensional transverse Ising model. By regarding the quantum Monte Carlo time evolutions as real time by not allowing cluster flips, we derived the exponential decay of relaxation function and the response function at the critical region of the order-disorder phase boundary, that mimics that of the experimental results.

We also applied the so-called grand canonical analysis and succeeded in reproducing the temperature dependent static susceptibility within the accuracy of 10 to -3, even in a system as small as 10 sites.

研究分野：物性理論

キーワード：量子多体系 ディスオーダー ランダムネス 量子モンテカルロ法 不均一性 強相関 電荷秩序

1. 研究開始当初の背景

強い相互作用をする電子系(強相関電子系)では、複数の秩序の競合・共存を背景に、電子の不均一化が起こりうる。これら局所不均一相を種に、外場に対する異常応答、巨大応答を得る試みが1990年代から活発に行われてきた。例えば、ペロフスカイト型マンガン酸化物や銅酸化物では、ナノメートルスケールでの電子相ドメイン形成による不均一化が、強相関物性の二大金字塔である巨大磁気抵抗や高温超伝導の直接的発生メカニズムであるという考え方が提唱されている。マンガン系の巨大磁気抵抗は、競合する電荷整列絶縁相-強磁性金属相の間のスイッチング現象である。本来、この2相は熱力学的には高いポテンシャル障壁に隔てられ、スイッチングを起こすことは困難である。しかし系に不均一が存在すると、微弱な電場でも、絶縁の弱い部分を破壊してフィラメント状の金属相を準安定に生成し、スイッチングを起こすことができると考えられている。こうした不均一性は、不純物欠陥によって有効的に得られる。実際、代表的な不均一系であるリラクサー誘電体も系に化学的に欠陥を積極的に導入した人工的な物質系であり、その巨大誘電応答は、欠陥を核にしたナノスケールの強誘電不均一相に基づくと理解されている。研究開始の2013年より遡って3年前から、不純物がほぼ零の電子系である筈の2次元有機物質で、系に不均一な電荷のナノスケール構造が存在し、非線形伝導や異常誘電応答を示すとの報告が相次いだ。

これらの物質は次の2つのクラスの強相関有機電子系に属する。(1)ダイマーモット絶縁体(-ET₂X, -ET₂ICl₂, -meso系)(2)電荷秩序(電荷整列)(-ET₂MX(SCN)₄)。 (1)は2軌道がダイマーを組み、そこに電子が1つずつ局在したモット絶縁体を形成する系、(2)は電荷が系の対称性を破ってストライプあるいは3倍周期に整列する電荷秩序系である。申請者をはじめとする数名の理論研究者がこの問題に取り組んでいたが、研究開始時においては、動的応答などを含めた一般的な理解には遠く及ばない状況であった。

2. 研究の目的

本研究は2次元分子性結晶ET塩などで報告されている電荷の異常応答の実験に動機づけられ、量子多体効果を本質的な要因とする電荷の不均一や特徴的な応答を理解する一般的な理論の枠組み、由来を理論的に明らかにし、そこに量子多体問題が果たす役割を理解することを目標としている。

3. 研究の方法(研究成果を含む)

量子多体系の数値計算を行う。恣意性のある近似を一切排除し、また有限サイズ効果を劇的に抑える方法論を開発し、それを適用する。ベンチマークのため、これらの方法論を本研究課題の系以外に、過去に多く研究され

ているスピン系などに適用する。

これら新しい方法論の詳細に関しては以下の(a)(b)(c)の通りである:

(a) 量子多体系の不均一現象はほとんど理解されていないのが現状である。そもそも一様系ですら、恣意性のない方法で、平均場近似(量子多体効果をほとんど取り込めない最低次の近似)を超えた、バイアスのかからない近似法自体が欠如していることが主な要因である。その中で量子モンテカルロ法のみが有力な数値計算法であったが適用される系に限られているという問題があり、また量子ダイナミクスに関してはまだ適用方法が確立していない。本研究では、横磁場イジングモデルを量子モンテカルロ法で取り扱い、ダイナミクスを近似的に取り扱う新しい方法論を提案、適用した。具体的には、連続時間量子モンテカルロ法のモンテカルロ時間発展を実時間発展と1:1の相関があると解釈する。この解釈はモンテカルロフリップを局所的にしか行わない場合に半経験的に保証される。その時間発展をフーリエ変換して得られる物理量から動的な応答関数を導出し、その関数形を定めること、および臨界指数を抽出することに成功した。

(b) 一般の有限系の数値計算においては、量子多体系の基本的な熱力学量である比熱や磁化率に関しても系の特徴的なエネルギースケールをJとすると0.5J以下の温度スケールでは有限サイズ効果が顕著に働き、有意な結果を得ることが不可能である。これに対してグランドカノニカル法という申請者が2012年に開発した数値計算法を有限温度の熱力学量の計算法へと発展させ、恣意性のない、十分信頼できる計算精度を0.1J程度の低温まで得ることに成功した。

グランドカノニカル法では、まず、ハミルトニアン H の相互作用の大きさを $(1+\cos(r/R))/2$ という、系の中心から距離 r での相互作用を系全体の半径 R で割った関数でスケールするsine square deformation(SSD)と呼ばれる仕組みを適用する。この空間変調したハミルトニアンを解くことにより、実時間繰り込みの効果を取り込まれる。ここで系の中央における物理量のみに着目すると、低エネルギー励起状態がスケールフリーになることが雑誌論文の成果で明らかになり、これをグランドカノニカル数値解析と名付けた。我々が[Phys. Rev. B 86, 041108(2012)]と雑誌論文で発表した最初の論文ではグランドカノニカル法は基底状態のみを取り扱う内容であった。本研究では有限温度でもこの繰り込み効果が有意に発揮されることを明らかにした(学会発表)。

(c) 一般に相互作用が位置によって異なるランダム系のハミルトニアンを厳密に解くことはほぼ不可能である。ところが我々はごく最近、2次元ランダムイジングモデルの転送行列法において、ランダムネスが入って

いる場合にも自由エネルギーの数値厳密解が得られることを明らかにすることができた(Phys. Rev. E 投稿中). これにより, 古典極限でのランダム状態が明らかになり, そこに量子効果を加えたときの新しいディスオーダー相を定量的に取り扱う基礎が確立できたと考えている.

4. 研究成果

ダイマーモット絶縁体系における電荷ダイポールの揺らぎと相関の競合の問題を, 横磁場イジングモデルという統計力学のミニマルモデルに落とし込み, これを連続時間量子モンテカルロ法によって解析し, 基底状態および有限温度の相図を明らかにした.

また動的な応答関数を求める新手法を開発した(3. 研究の方法 参照). ダイマーモット相と電荷秩序相の境界にある臨界領域において緩和関数が冪的に振る舞うことを確認した. この緩和関数およびスケールングから系の動的および静的臨界指数が3次元イジングモデルのユニバーサリティクラスに属することが明らかになった. 緩和関数をフーリエ変換して得られる応答関数の振動数依存性はローレンツ型になる. その形状は相関時間 および相関長 によって特徴づけられるが, 両者とも臨界領域で低温になるにつれ温度の冪として発散する. その発散の仕方から, 電荷感受率(複素誘電率の虚部と対応)に顕著な周波数分散が観測されることも明らかとなった. より具体的には応答関数が特徴的な温度 T のピークを持ち, ピーク値およびピーク位置が振動数 の関数としてシフトする振る舞いをする. その振る舞いが極低温までユニバーサルに起こることを示すことができた(投稿準備中). この振る舞いは実際に我々が共同研究する実験グループで [Phys. Rev. B 82, 125119 (2010)] で得られている振る舞いである.

上述の結果を実験と具体的に定量的に比較するために, 第一原理計算を一連の2次元分子性結晶ET塩について系統的に行った(雑誌論文). 得られた物質のモデルパラメータを我々の横磁場イジングモデルにマップし, 強磁性型の正方格子のイジング相互作用をもつこと, および量子モンテカルロ計算で得られた低温での相図で, 無秩序相から長距離秩序相への転移点近傍の無秩序相に系が位置することが明らかにした. 実際の物質が臨界領域に位置するというモデル計算での解釈が妥当であることを示したことになる. この結果は横磁場イジングモデルという最も有名かつ基礎的なモデルの一つにおいてすら, これまで臨界的な揺らぎが動的な物理量にどう反映されるかが十分理解されていなかったこと, 本研究対象が, 物質系においてこの臨界現象を捉えたおそらく最初の例であることを物語っている.

一方, 2次元量子相における不均一性をどう特徴づけるかという, より一般的な問題に将来的に取り組むことを念頭に, 古典系において sine square deformation というハミルトニアンの変形を用いた新手法を考案し, 2次元古典イジングモデルに適用した. その結果, これまで温度パラメータを変えながら行っていたモンテカルロ計算を, 1つの温度で広い温度パラメータにおけるデータについて得ることができることを示した. この手法の背後には実空間繰り込みの考え方が存在する. その考えを応用し, 実際に2次元イジングモデルの転送行列で解析した結果, 80年来(厳密には)解けないと信じられていた任意のボンドランダムネスをもつイジングモデルが厳密に解けることを明らかにすることができた. この成果により, これまで小さなサイズの数値計算に限られ, 結果に関しても論争が絶えなかったランダムイジングモデルのスピングラスに関連した問題に関して明確な結論を得ることができ, そこに無限小の量子性を導入して量子スピングラスの本質を解き明かすことが近々に可能になった.

最終年度から現在継続して, 量子多体系における熱力学量を精緻にもとめるためのグランドカノニカル法の発展(3. 研究方法 参照)を行っている. 1次元量子スピン系に関してはこれまで(十分な信頼性のある範囲で)到達できなかった低温まで, 高々10サイトの格子における計算で, 有限サイズ効果を抑えてほぼ厳密な(システムサイズ無限大での)比熱と磁化率を求めることに成功している. 2次元フラストレート系など取り扱いが困難な系についても現在研究を進めており, ある程度信頼性がある結果が得られる感触を得ることができた.

以上のように本研究では, 取り扱いが困難であったランダムネスのある2次元量子多体系のモデル計算について, 主に手法上の発展を具体的な物質系や一般的なモデルを舞台に複数の観点から行った. 本テーマはそもそも有効的な手法の欠如から理論的アプローチが困難な問題であるが, その一端を切り崩し, 具体的に信頼性のある結果を将来得るための突破口を作ることができたと考えている. これらの手法を具体的に今後多くの系に適用しながらさらに発展させていく予定である.

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 8 件)

Yukihiro Yoshida, Hiroshi Ito, Mitsuhiro Maesato, Yasuhiro Shimizu, Hiromi Hayama, Takaaki Hiramatsu, Yuto Nakamura, Hideo Kishida, Takashi Koretsune, Chisa Hotta, Gunzi Saito,

Spin-disordered quantum phases in a quasi-one-dimensional triangular lattice, Nature Physics, 査読有, **11**, 2015, pp. 679-683.
DOI:10.1038/nphys3359

Y. Kono, T. Sakakibara, C.P. Aoyama, C. Hotta, M.M. Turnbull, C.P. Landee, and Y. Takano, Field-Induced Quantum Criticality and Universal Temperature Dependence of the Magnetization of a Spin-1/2 Heisenberg Chain, Phys. Rev. Lett., 査読有, **114**, 2015, pp.037202,
DOI:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.037202

Tempei Yoshida, Chisa Hotta, Frustrated electrons on a spatially anisotropic triangular lattice: Emergent competition of charge orders and exotic disorders due to thermal fluctuations, Phys. Rev. B, 査読有, **90**, 2014, pp.2451145.
DOI:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.245115

Hazuki Morisaki, Takashi Koretsune, Chisa Hotta, Jun Takeya, Tsuyoshi Kimura, and Yusuke Wakabayashi, Large surface relaxation in the organic semiconductor tetracene, Nature Communications, 査読有, **5**, 2014, pp.5400.
DOI:10.1038/ncomms6400/www.nature.com/naturecommunications

Frank Pollmann, Krishanu Roychowdhury, Chisa Hotta, Karlo Penc, Interplay of charge and spin fluctuations of strongly interacting electrons on the kagome lattice, Phys. Rev. B, 査読有, **90**, 2014, pp.035118.
DOI:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.035118

Takashi Koretsune, Chisa Hotta, Evaluating model parameters of the κ - and β -type Mott insulating organic solids, Phys. Rev. B, 査読有, **89**, 2014, pp.045102.
DOI:https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.045102

Satoshi Nishimoto, Naokazu Shibata, Chisa Hotta, Controlling frustrated liquids and solids with an applied field in a kagome Heisenberg antiferromagnet, Nature Communications, 査読有, **4**, 2013, pp.2287.
DOI:10.1038/ncomms3287

Chisa Hotta, Satoshi Nishimoto,

Naokazu Shibata, Grand canonical finite size numerical approaches in one and two dimensions: Real space energy renormalization and edge state generation, Phys. Rev. B, 査読有, **87**, 2013, pp.115128.
DOI:https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.115128

〔学会発表〕(計 25 件)

田中克大, 桃井勉, 堀田知佐, "多軌道系におけるスピンと電気分極の相関", 2017 年 3 月 20 日, 大阪大学(大阪府豊中市).

遠藤寛之, 堀田知佐, 清水明, "熱的量子純粋状態を用いた系の応答", 2017 年 3 月 20 日, 大阪大学(大阪府豊中市).

横山祐人, 堀田知佐, "スピンドイマー系における多スピン交換相互作用の効果", 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 19 日, 大阪大学(大阪府豊中市).

谷口大輔, 岡林潤, 堀田知佐, "弾性相互作用モデルによる多段スピントスオーバーの考察", 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 14 日, 金沢大学(石川県金沢市).

堀田知佐, 浅野建一, "磁化率や比熱の数値計算法", 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 14 日, 金沢大学(石川県金沢市).

Chisa Hotta, Kenichi Asano, "Bulk susceptibility and specific heat in some frustrated lattice models", 8th International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2016, Sep.7-11, 2017, Taipei (Taiwan).

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).

中間庭崇, 中村統太, 堀田知佐, "グランドカノニカル数値解析の古典スピン系への適用", 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 20 日, 東北学院大学(宮城県仙台市).

Chisa Hotta, "Critically dielectric", The International chemical congress of pacific basin societies 2015, Dec.15-20, 2015, Honolulu (Hawaii, USA).

堀田知佐, "有機ダイマー系における電荷の揺らぎの動的性質", 物性研短期研究会「低次元電子系におけるエキシトニック相の新展開」, 2015 年 11 月 26-28 日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

堀田知佐, 吉田天平, 原田健自, "二次元

横磁場イジングモデルにおける動的帯磁率", 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 16 日, 関西大学(兵庫県神戸市).

Chisa Hotta, "Charge fluctuation and magnetism in dimer Mott insulators", 11th international symposium on crystalline organic metals, superconductors and magnets, Sep. 6-11, 2015 Bad Gogging (Germany).

河野洋平, 榊原俊郎, C. P. Aoyama, 堀田知佐, M. M. Turnbull, C. P. Landee, Y. Takano, "極低温高磁場下磁化測定による $S=1/2$ 一次元鎖反強磁性体 CuPzN の一次元性の検証", 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 24 日, 早稲田大学(東京都新宿区).

吉田天平, 原田健自, 堀田知佐, "ダイマーマット絶縁体における電荷揺らぎの解析", 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学(東京都新宿区).

Chisa Hotta, "Grand canonical analysis: A route to measuring bulk properties in an applied field", Tensor Network States: Algorithms and Applications, Dec.2, 2014, Chinese Academy of Sciences (Beijing, China).

Chisa Hotta, "Exotic phases of matter on kagome lattice models", International Workshop "Novel Quantum States in Condensed Matter 2014 (NQS2014)", Nov. 6, 2014, Yukawa Institute, Kyoto University (Kyoto).

Frank Polmann, Krishanu Roychowdhury, 堀田知佐, Karlo Penc, "カゴメ格子上的の $1/3$ -filling 電子系における電荷とスピンの揺らぎ", 日本物理学会秋季大会, 2014 年 9 月 10 日, 中部大学(愛知県春日井市).

是常 隆, 堀田知佐, " $-(\text{ET})_2\text{X}$ におけるモデルパラメータの導出", 日本物理学会秋季大会, 2014 年 9 月 8 日, 中部大学(愛知県春日井市).

Chisa Hotta, "Grand canonical analysis in one and two dimension: A route to measuring bulk properties in an applied field", XXVI IUPAP Conference on Computational Physics, CCP2014 Aug. 13, 2014, Boston (Massachusetts, USA).

Chisa Hotta, "Discovering magnetization plateaus in a spin-1/2 kagome antiferromagnet", Second International Symposium on "Novel states in correlated

condensed matter-- from model systems to real materials", April 8-10, 2014, Konigstein (Frankfurt, Germany).

②1 堀田知佐, "グランドカノニカル数値解析と $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体への応用", 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 29 日, 東海大学(神奈川県伊勢原市).

②2 堀田知佐, "異方的三角格子上的電荷秩序と無秩序", 「電子誘電体の新展開 -光と分極がおりなす新物質相-」2013 年 12 月 2 日-4 日, 東北大学金属材料研究所(宮城県仙台市).

②3 西本 理, 柴田 尚和, 堀田知佐, "カゴメ格子スピン系のグランドカノニカル数値解析", 物性研短期研究会「極限強磁場科学 -場、物質、プローブのリンクから融合へ」, 2013 年 10 月 30 日~11 月 1 日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

②4 吉田天平, 堀田知佐, "二次元異方的三角格子上的拡張 4state Potts model に対する古典モンテカルロ法によるアプローチ", 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 25 日 徳島大学(徳島県徳島市).

②5 S. Nishimoto, N. Shibata and C. Hotta, "Discovering magnetization plateaus in a spin-1/2 kagome antiferromagnet", Strongly Correlated Electron Systems 2013, Aug.5-9, 2013, The University of Tokyo (Tokyo, Japan).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

堀田知佐 (HOTTA, Chisa)

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授
研究者番号: 50372909