

平成 22 年 6 月 10 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2009

課題番号：19540388

研究課題名 (和文) 量子モンテカルロ法および第一原理計算による 2 次元強相関系の研究

研究課題名 (英文) Study of two-dimensional strongly correlated systems on the basis of Quantum Monte Carlo simulations and first principles calculations

研究代表者

柳澤 孝 (YANAGISAWA TAKASHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・研究グループ長

研究者番号：90344217

研究成果の概要 (和文)：

量子モンテカルロ法、および変分モンテカルロ法による大規模なシミュレーションにより、高温超伝導体の相図を明らかにした。伝導を担うキャリア濃度が低い領域では反強磁性と超伝導が共存することを示した。チェッカーボード状態と呼ばれている特異な電荷秩序状態が安定であることを、変分モンテカルロ計算により明らかにした。また、量子モンテカルロ法により、超伝導感受率を計算し、2次元系でコストリッツ-サウレス型の超伝導相転移が起こるパラメーター領域があることを示した。

研究成果の概要 (英文)：

We have carried out quantum and variational Monte Carlo simulations for the Hubbard model and three-band d-p model to clarify the physics of high-temperature superconductors. Numerical studies of the two-dimensional d-p model by using the Gutzwiller ansatz have exhibited that the incommensurate antiferromagnetic state coexists with superconductivity in the under- and lightly doped regions. The phase diagram is consistent with recent experiments for layered high-temperature cuprates. We have also performed a variational Monte Carlo simulation on the two-dimensional $t-t'-t''-U$ Hubbard model with Bi-2212-type band to examine the stability of a 4×4 checkerboard state which has been observed recently by scanning tunneling microscopy in Bi-2212. We have found that the coexistent state of bond-centered four-period diagonal and vertical spin-checkerboard structure characterized by a multi-Q set is stabilized and composed of 4×4 period checkerboard spin modulation. We have proposed a method to evaluate susceptibilities such as the spin susceptibility and pair susceptibility on the basis of quantum Monte Carlo methods and exact diagonalization method. Using quantum Monte Carlo method, we have examined the size dependence of the spin susceptibility at half filling and pair susceptibilities with d- and s-wave symmetries for the repulsive and attractive interactions, respectively. We have shown that the results are consistent with the existence of the Kosterlitz-Thouless transition.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	2,500,000	750,000	3,250,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関電子系、計算物理

1. 研究開始当初の背景

比較的高い臨界温度の超伝導は、擬2次元物質において得られる可能性が高い。2次元系の高い状態密度により高い温度での秩序状態が可能となるであろう。この観点から、2次元強相関系の電子状態を明らかにすることは重要である。われわれは量子モンテカルロ法、量子変分モンテカルロ法および第一原理計算により2次元強相関電子系における磁性、超伝導とそれらの競合について研究を行い、新機能物質、高い臨界温度の超伝導への指針を得ることを目的とする。量子モンテカルロ法は厳密に多体系の電子状態を計算する方法であり、変分モンテカルロ法においては波動関数を固定して計算を行う。変分モンテカルロ法では波動関数が陽に与えられるため、相互作用が非常に大きい場合でも安定した計算を行うことができる。第一原理計算では相互作用を比較的平均化して扱うが、物質に即した計算を行うことができる。

高温超伝導など非BCS的で特異な超伝導の起源は明らかになったとは認識されていないが、これは2次元強相関電子系がどのようなものであるかが明らかになっていないからである。特異な超伝導の起源などを解明するためにも、2次元強相関系の研究は重要である。高温超伝導の起源を明らかにするためには、コントロールできる近似で電子状態計算を行う必要がある。われわれは変分モンテカルロ法、続いて量子モンテカルロ法のプログラムを開発してきた。変分モンテカルロ法は発展し成熟した手法であるが、量子モンテカルロ法は現状ではまだ発展の余地がかなりある。

2. 研究の目的

量子モンテカルロ法を発展させつつ、以下の研究を行う。

(1) 高温超伝導の特徴は物質ごとに様々な相図が得られていることにあり、特に、反強磁性と超伝導を示す領域の広がり物質ごとに異なっている。これは、第一にフェルミ面の構造を反映していると考えられる。われわれはLa(ランタン)系、Y(イットリウム)系、Bi(ビスマス)系など代表的な銅酸化物高温超伝導体の物質ごとに異なるフェルミ面に対して計算を行い、相図の違いを明らかにする。相図を理解することは超伝導機構の解明につながるであろう。2次元ハバードモデルを用いて、それぞれのフェルミ面を設定して変分モンテカルロ計算を行い超伝導と反強磁性の競合を調べ、実験との詳しい比較を行う。Y、Bi系においては彎曲したフェルミ面のため反強磁性が起こりにくいと考えられる。La系とY系での凝縮エネルギーを比較し、超伝導に対する反強磁性相関の効果を明らかにする。また、低キャリアー域での擬ギャップは反強磁性と密接な関係があり、状態密度の欠如は反強磁性などの秩序が生じたことにより起きていると考えられる。すなわち、低キャリアー域での反強磁性と超伝導の共存状態を調べることは、擬ギャップ相を理解する上で重要である。この目的のため波動関数を最適化し、反強磁性と超伝導が共存したより安定な波動関数を構築する。

(2) 2次元強相関系において変分モンテカルロ法を超えたより厳密な計算をしようとする、量子モンテカルロ法を使わなければならないが、一般的な方法では負符号が現れる。われわれは最近、負符号のない量子モンテカルロシミュレーション法のアルゴリズムを詳しく研究し、開発してきた。この方法は量子モンテカルロ対角化とよばれるシミュレーション手法である。並列化等によりアルゴリズムを高率化させるとともに、2次元ハバードモデルなどの2次元強相関系に適用し、

大規模な数値計算により電子状態計算を行う。超伝導や磁性の相関関数および感受率を計算し、超伝導と磁性の競合と共存の力学を明らかにする。相関関数の長距離部分の計算は一般に非常に困難である。より大きな系での計算を試み、超伝導相関の距離依存性を明らかにする。我々は、線型応答理論に基づいて感受率を計算し、超伝導を含む相図を明らかにする。また、変分モンテカルロ法によって得られた結果と比較吟味し、それを基に詳しい計算を行い、物質ごとの特異性、特に固有のフェルミ面に対する依存性を明らかにする。

3. 研究の方法

二次元電子系においても、フェルミ面の構造が種々の物性に大きな影響を与えている。高温超伝導体におけるフェルミ面の効果を見るために、LaSrCuO系、YBCuO系、Bi系のフェルミ面をモデルとして、反強磁性と超伝導の安定性およびそれらの競合、共存を明らかにするための計算を行う。これまで主としてLa系を想定した計算を始めていたが、Y系、Bi系のフェルミ面を再現するような次近接、次次近接トランスファー積分 t' 、 t'' を持つモデルに対しても基底状態の計算を行う。フェルミ面が超伝導、反強磁性あるいはストライプなどの電荷秩序の安定性に大きな影響を与えているはずである。それぞれの状態に対して波動関数を設定し、変分モンテカルロ法によりエネルギーを計算して相図を決める。Y系やBi系銅酸化物のように大きく彎曲したフェルミ面をもつ系では、反強磁性秩序が起こりにくくなるはずである。その時の超伝導凝縮エネルギーをLa系と比較して、超伝導と反強磁性との関係を明らかにする。

変分モンテカルロ法を進めて、厳密な計算ができる量子モンテカルロシミュレーションにより、より確かな計算を行う。変分モンテカルロ法の結果は定性的には正しいと考えているが、定量性まで含めたより厳密な数値計算を行う予定である。量子シミュレーションについてはいろいろのアルゴリズムを詳しく調べ、モンテカルロ対角化法に基づいた新しいプログラムをコーディングした。並列化等によりプログラムを高効率化し大規模計算に適したものにす。この方法をハバードモデルに適用して反強磁性相関、超伝導相関などの物理量の計算を行う。相関関数の長距離部分を量子モンテカルロ法で計算するのは難しい。比較的収束させやすい感受率も計算するため、プログラムを構成し、超伝導感受率および帯磁率を計算する。

上記以外に、新たな超伝導の可能性を示す物質として、価数スキップ元素を含んだ化合物の研究を行う。ここで価数スキップとよんでいるのは、例えば+3、+5価は取るが+4

価は安定な状態として存在しないというものである。この理由は明らかになっていないが、典型元素の中にはP、As、Bi、Pb、Sb、Tlなどこのような元素が多数存在する。+3と+5の間でゆらぐということは、有効的に引力相互作用を含んでいること、すなわち有効的クーロン相互作用が負であることを示している。この観点からフォノン媒介の引力による超伝導としては高い超伝導臨界温度 T_c を示すBaKBiOも再吟味が必要であろう。PbTeにTlをドーブした系での超伝導も報告された。+3、+4、+5価の状態のエネルギーを計算して有効的なクーロン相互作用を評価する。価数スキップの起源がクーロン相互作用にあると考えており、電荷の分極の効果が効いてくれば、有効相互作用が負となり特定の価数の不安定性を説明できると期待している。

4. 研究成果

(1) 変分モンテカルロ法において、波動関数をGutzwiller型からGutzwiller-Jastrow型に改良し、ニュートン法によってマルチパラメータ空間内の安定な解を探すアルゴリズムを構築した。特に、La系の高温超伝導体に対応するパラメータに対して実験とコンシステントな超伝導凝縮エネルギーのサイズ無限大極限が得られることがわかった。YBCO系の高温超伝導体はLSCO系に比べ高い T_c を示しているが、実際にYBCO系に対応したバンドパラメータに対して波動関数を最適化することにより、より大きい凝縮エネルギーが得られることが明らかになった。

量子変分モンテカルロ法による大規模なシミュレーションを、d-pモデルに対して行った。最近、実験により多層系の高温超伝導体に対して反強磁性と超伝導の共存が報告されている。われわれは、d-pモデルに対してそのような共存も考慮したモンテカルロ計算を行い、二次元のd-pモデルに対する相図を明らかにした(図1)。実際、低ドーブ域(ドーブ量 $x < 0.18$)では反強磁性と超伝導が共存し、さらにキャリア数を増やすと超伝導が単独で安定になることが明らかになった。

反強磁性状態のQベクトルの(p, p)からのずれ、すなわち非整合性とキャリア濃度との関係を変分モンテカルロ計算により明らかにした。極低ドーブ域では、ストライプ的な反強磁性状態が形成され、非整合度とキャリア濃度は比例関係にあることを示した(図2)。これにより、中性子散乱実験を説明することができる。

Bi2212等の高温超伝導体で報告されている特異な電荷秩序状態(チェッカーボード状態と呼ばれている)の安定性を2

次元ハバードモデルに対して変分モンテカルロ計算を行うことにより明らかにした。バンド構造を決める重なり積分 t' 、 t'' をパラメーターとして基底状態のエネルギーを計算し、Bi221 2系の銅酸化物に対して得られているバンド構造を含むパラメーター領域でチェッカーボード状態が安定となることを示した。

(2) Bi、Pbなどの価数スキップゆらぎを示す元素が自然界には多数存在するが、なぜ、価数スキップ現象が起こるのかは明らかになっていない。価数スキップ揺らぎの主要な起源は長距離のクーロン相互作用にあるとの考えに基づき、BaBiO₃に対してマードルンゲエネルギーの計算、および電荷分極の効果を入れてイオン位置をずらした計算を行った。酸素原子の電荷分極の効果により、特定の価数の状態が不安定になり価数スキップが起こり得ることを示した。

(3) 負符号問題のない量子モンテカルロ法として、量子モンテカルロ対角化法のプログラムを構成した。この方法においてハミルトニアンを対角化する際の基底関数の数をより多くし、基底関数の生成に遺伝アルゴリズムを適用して最適化の効率を上げた。行列の演算を並列化し計算スピードを飛躍的に向上させた。小さいクラスターにおいて、厳密対角化法による結果と比較し正しい結果が得られることを確かめた。反強磁性、超伝導などの相関関数とそれらの静的な感受率を計算するプログラムを構成した。また、負符号問題のない第二の手法として「拘束されたパスによる量子モンテカルロ法」のプログラムも開発した。2次元ハバードモデルの基底状態におけるスピン感受率および超伝導感受率を計算した。超伝導感受率が、コストリッツ-サウレス型相転移を特徴づける、サイズLに対する2乗依存性を示すパラメーター領域があることを示した。すなわち、2次元強相関係において、コストリッツ-サウレス転移として超伝導転移が起こり得ることを見いだした。

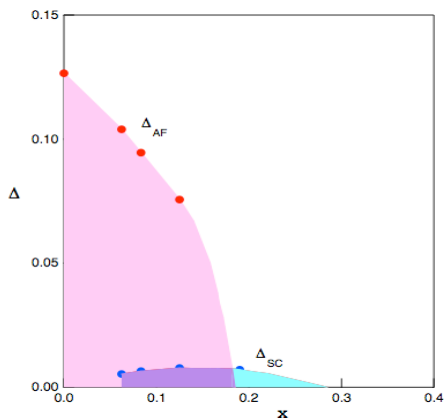


図1. 2次元 d-p モデルの相図。

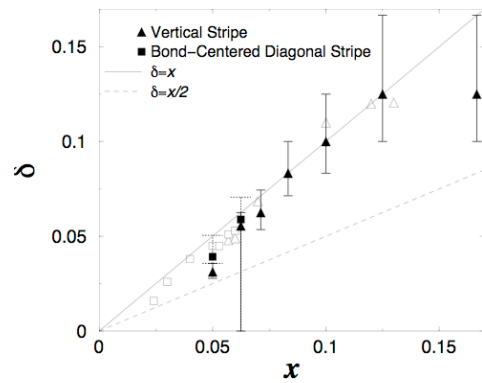


図2. 反強磁性の非整合性とキャリアー濃度。

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 10 件)

①小池上繁、柳澤孝、Three-Dimensional Multi-Band Model of Superconductivity in Spin-Chain Ladder Cuprate, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、79 巻、2010 年。

②長谷泉、柳澤孝、Electronic Structure of RNiC₂ (R=La, Y and Th), Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、78 巻、084724-1~頁、2009 年。

③柳澤孝、宮崎真長、山地邦彦、Incommensurate Antiferromagnetism Coexisting with Superconductivity in Two-Dimensional d-p Model Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、78 巻、013706-1~4、2009 年。

④宮崎真長、山地邦彦、柳澤孝、門野良典、Checkerboard States in the Two-Dimensional Hubbard Model with the Bi2212-Type Band, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、78 巻、0437065-1~5 頁、2009 年。

⑤山地邦彦、柳澤孝、宮崎真長、門野良典、System Parameter Dependence of the Metallic Phase of the Non-Doped 2D Hubbard Model, Physica C, 査読有、469 巻、1037-1040 頁、2009 年。

⑥柳澤孝、小田切宏輔、長谷泉、山地邦彦、P. M. Shirage、田中康資、伊豫彰、永崎洋、Isotope Effect in Multi-Channel

Attractive Systems and Inverse Isotope Effect in Iron Based Superconductors、Journal of the Physical Society of Japan、査読有、78 巻、094718-1~5、2009 年。

⑦P. M. Shirage、木方邦宏、宮沢喜一、李哲虎、鬼頭聖、永崎洋、柳澤孝、田中康資、伊豫彰、Inverse Iron Isotope Effect on the Transition Temperature of the (Ba,K)Fe₂As₂ Superconductor、Physical Review Letters、査読有、103 巻、257003-1~4、2009 年。

⑧柳澤孝、Quantum Monte Carlo Diagonalization for Many-Fermion Systems、Physical Review B75、224503-1~12、査読有、2007 年。

⑨長谷泉、柳澤孝、Madelung Energy of Valence Skipping Compound BaBiO₃、Physical Review B76 巻、174103-1~4、査読有、2007 年。

⑩柳澤孝、Phase Diagram of t - U^2 Hamiltonian of Weak Coupling Hubbard Model、New Journal of Physics、査読有、10 巻、023014-1~21、2007 年。

〔学会発表〕(計 8 件)

①山地邦彦、柳澤孝、宮崎真長、門野良典、Solutions of Kondo's Small Gap Equation for 2D Band Parameters of Cuprate Superconductors、沖縄科学技術大学院ワークショップ、沖縄、2009 年 5 月。

②柳澤孝、二次元強相関係における異方的超伝導、異方的超伝導と渦糸物理会議、大阪府立大学、2009 年 1 月。

③長谷泉、柳澤孝、Electronic Structure of LaFeOX and AFe₂X₂、International Symposium on Superconductivity、つくば市、2008 年 10 月。

④柳澤孝、量子シミュレーションによる強相関電子系の研究、計算科学における新たな知の発見統合創出シンポジウム、筑波大学、2008 年 4 月。

⑤小池上繁、柳澤孝、Superconductivity in Spin-Orbit Ladder Cuprates、アメリカ物理学会、ピッツバーグ、2008 年 3 月。

⑥柳澤孝、高温超伝導の世界、量子サイエンスフォーラム、茨城大学、2007 年 12 月。

⑦山地邦彦、柳澤孝、宮崎真長、 t' and t'' dependence of the bulk limit superconducting condensation energy of the 2D Hub-

bard Model、International Symposium on Superconductivity、つくば市、2007 年 11 月。

⑧柳澤孝、Physics of the Hubbard Model and High Temperature Superconductivity、International Symposium of Lattice Effects and High Temperature Superconductivity、つくば市、2007 年 9 月。

〔その他〕

ホームページ等

<http://staff.aist.go.jp/t-yanagisawa/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

柳澤 孝 (YANAGISAWA TAKASHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・研究グループ長

研究者番号：90344217

(2) 研究分担者

長谷 泉 (HASE IZUMI)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・主任研究員

研究者番号：00357774