

機関番号：34304

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2010

課題番号：19740218

研究課題名 (和文) 強相関有機系における異常応答の理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical studies on the anomalous response to external fields in strongly correlated organic crystals

研究代表者

堀田 知佐 (HOTTA CHISA)

京都産業大学・理学部・准教授

研究者番号：50372909

研究成果の概要 (和文)：

低次元電子系およびスピン系で、強相関効果を起源に、外場に対して特異な応答を示す新しい量子状態を探索する目的で研究を行った。具体的に以下の五つの有機低次元系で、新たな量子状態の提案、既存の電子系の性質の理解を確立、および外場中の電子・スピン状態の解析を行った。(1)三角格子上での強相関電子系における異方的な1×1次元の準粒子励起と異常金属状態の提案、(2)相互作用のない二次元電子系で、ディラック電子系の探索のための一般論の構築、(3)1次元1/4-filling電子系が局在スピンの複合系における、電子相関により強い磁氣的フラストレーション状態の提案と磁場に対して特異な応答の予想、(4)三角格子的なダイマーモット絶縁体における誘電異常の解明、(5)梯子上のスピン系における磁場誘起朝永ラッティンジャー液体の解析、という、それぞれ独自の量子状態が形成されることを示し、外場に対して強相関系特有の特異な応答をする系が数多く存在することを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：

We studied the low-dimensional strongly correlated electronic systems, motivated by several organic systems which respond anomalously to the magnetic or electric field. Five different topics are studied; (1) an exotic 1×1 dimensional metal in strongly correlated electronic system on an anisotropic triangular lattice is proposed, (2) a generalized von Neumann theorem is constructed which enables to design multi-band systems with Dirac points, (3) The one-dimensional quarter-filled strongly correlated electronic system coupled to localized spins is shown to produce frustrated magnetism which respond sensitive to magnetic field, (4) the origin of an anomalous dielectric properties in the dimer Mott insulator, κ -ET₂Cu₂(CN)₃, is clarified based on the quantum electric dipole picture, (5) universal temperature dependence of field induced Tomonaga-Luttinger liquid state in one dimensional gapped spin system is proposed and examined in organic crystal, DIMPY. Thus, the strong correlation of electrons results in various exotic quantum many body states.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	900,000	0	900,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,200,000	690,000	3,890,000

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：強相関系, フラストレーション, 有機導体

1. 研究開始当初の背景

今世紀に入り、(a)~(c)に挙げられるように1次元・2次元有機導体の中にこれまでにない異常応答現象が次々と報告されている。(a)サイリスタ型の非線形電流電圧特性を示す不安定有機金属 θ -ET₂CsZn(SCN)₄、(b)絶縁相へのレーザー照射によって高伝導性を示すディラック電子系 α -ET₂I₃、(c)巨大負磁気抵抗を示す1次元フタロシアニンTTP[FePc(CN)₂]₂が、本研究課題申請時に挙げた代表例である。

(a)に関しては、 θ -ET系の分子配列がもたらす電子間相互作用のフラストレーション効果が原因で新たな物性が生じている可能性が、すでに本研究課題の研究者らにより指摘されていた。(b)については α ET₂I₃で圧力下においてディラック電子系が安定に存在することが実験および理論によって明らかになっていたが、なぜこの物質に限りディラック電子状態が出るのか、相互作用効果によってディラック電子状態が壊れる可能性はないのか、など根本的な疑問は未解決のままであった。

さらに(c)のフタロシアニン鉄塩については、1次元電荷秩序の存在が系の特異な伝導特性や磁気的性質に重要な役割を果たすことが本研究課題研究者のグループで提案されていたが、物質の細かな特徴や具体的な磁場下での電子状態を扱った理論研究はまだ存在しなかった。

2. 研究の目的

1に挙げた(a)~(c)の実験研究から、強相関効果によって低次元の有機結晶特有の特異な電気的および磁気的な状態が実現しうる示唆されていた。そこで本研究課題は、強相関効果に由来する新たな異常量子状態を理論的に見出し、その発現機構および外場に対する応答の特徴を明らかにすることを目的とする。研究対象としては、上記実験研究に対応して(A)異方的三角格子上のフラストレートした電子状態、(B)2次元異方的格子におけるディラック電子系、(C)1次元局在スピン+1/4-fillingの拡張ハバード電子系、という3つのテーマに加え、(D)2次元三角格子ダイマーモット絶縁体、(E)1次元磁場誘起朝永ラッティンジャー液体状態、の二つの系を加え、幅を広げた研究を行った。これは、研究開始以降に、二つの代表的な実験、(d)モット絶縁体 κ -Eにおける誘電異常、(e)有機梯子スピン系DIMPYの磁場誘起量子相転移、が報告され、その解析に申請者が携わることになったという経緯による。

3. 研究の方法

数値的および解析的手法を組み合わせて、各系の基底状態および外場下における状態を解析した。具体的に、各課題(A)~(E)において使用した方法は下記のとおりである。

(A) この課題では4で説明するように主に t V モデルおよび古典イジングモデルを解析した。

t V モデルに関しては、強結合領域からの摂動論、ヒルベルト空間の次元を強結合領域で支配的なmanifoldのみに限定した数値対角化計算、変分モンテカルロ法、2次元DMRG法をそれぞれ適用し、各手法の長所を生かしながら結果を比較し、妥当な結論を導き出した。古典系に関しては、古典モンテカルロ法および転送行列法を用いた。

(B) 相互作用がない系を対象に、解析的な理論研究を行い、系の対称性と拘束条件との関係を導き出した。またバンドをいくつかの系で具体的に数値計算し、理論の検証を行った。

(C) (E)1次元の特性を生かし、DMRGを適用した。

(D) (A)と共通の手法を用いた。モット絶縁体の強結合極限からの4次までの摂動および厳密対角化を組み合わせ、妥当な結論を得た。

4. 研究成果

2にあげた(A)~(E)までの研究課題について以下のような成果を得た。

(A) [雑誌論文 ②, ⑥, ⑩, ⑪, ⑫, ⑬] 二次元異方的三角格子 および カゴメ格子における電荷秩序相近傍の異常金属相が存在することを指摘する研究を行った。電荷自由度のみを考慮し、格子のサイト間の飛び移り積分 t 、電子間クーロン相互作用 V の異方性(V/V')をもつ tV モデルを解析した。このモデルは、強結合領域($t \ll V$)でスピン系XXZモデルのそれと等価な性質をもつことが知られており、二つのモデルを同時並行で解析した。三角格子の1/2-filling, カゴメ格子の2/3-fillingにおいては、強結合において相互作用の強い V' 方向に電荷の多いサイトと少ないサイトが交互に並んだ形で秩序化した結果、 V 方向にストライプ状の絶縁体となる。それに電荷あるいはホールを1個ドープすると、有限の量子揺らぎによってストライプに沿った方向への一体型の分散と、ストライプに垂直な多体型の分散が生じる。これら2種類の異質な分散により、系には異方的な1*1次元の準粒子が形成され、異常金属状態となる。こうした状態は光学応答によって系で部分的に実現されると期待している。

(B) [雑誌論文①, ⑨] α -ET系は分子が2

次元面で異方的に並び、反転対称性以外の空間対称性のない結晶構造をもつ。この系では低温で磁場をかけるとディラック型の線形分散が安定に存在する。このような異方性の強いディラック電子系は他に余り見いだされておらず、物質設計のための指針が必要とされてきた。そこで、複数(3以上)のバンドからなる相互作用のない任意の二次元電子系で、系のパラメタ(遷移積分やポテンシャルなど)の値を制御することによって縮重したエネルギーバンドをもつ k 点が出現可能かどうかを判定する「一般化されたvon Neumann Wigner 条件」を導出し、縮退する k 点とパラメタの関係を解析的に関係づける定式化に成功した。その結果、各系でパラメタを変化させて固有値方程式を解くことなく、ディラック電子系の候補となる系を探索することが可能になった。この理論をもとに、異方的カゴメ格子やハニカム格子の拡張版など、具体的に新しいディラック電子系となる格子構造の提案も行った。

(C) [雑誌論文⑦] $1/4$ -fillingの拡張ハバードモデルでは電子間相互作用の強い領域で電荷秩序が生じる。1次元の拡張ハバード電子鎖の各サイトに局在スピニング、電子鎖とスピン間相互作用 J で結合している系を解析した。電荷が1個置きに並ぶ電荷秩序鎖では、電荷のスピニングが4サイト周期で、局在スピニング内では2倍周期で反強磁性的相互作用している。2つの鎖の不整合性によって、磁性が抑制され、異なるスピン量子数の状態が擬縮退した密な低エネルギー構造をとる。そこに外部磁場をかけると、低磁場で磁化が敏感に応答することが明らかになった。電荷ギャップがいったん抑制され、磁化過程の後半でギャップが増大するという予想外の結果が得られた。

(D) [雑誌論文③, ⑤] κ - $\text{ET}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ は代表的な三角格子モット絶縁体物質であり、フラストレーション由来のスピン液体を実現する候補物質とされてきた。この物質の誘電率に6 Kをキュリー温度とするキュリーワイス的な誘電率と6 Kから10 K付近にわたってゆるやかなピークを持ち、ピーク温度の強い周波数依存性を示すことが、この研究期間に明らかになった。低温のモット絶縁体領域で、電荷の誘電的な自由度が生き残っていることを明確にしたこの実験を受けて、誘電自由度が、ダイマーを組む二つの分子間を量子力学的にゆらぐ電荷であるという提案を行った。この自由度を量子ダイポールとして定式化し、拡張ハバードモデルから導出した、強結合領域に適用される量子ダイポール=スピン有効モデルを提案した。このモデルでは、量子ダイポールとスピン自由度が相互作用することによりスピン液体状態が出現することから、電荷とスピンの相互作用がスピン液

体の起源であるという新たな提案となった。

(E) [雑誌論文④, ⑩] 一次元量子スピン鎖では、臨界磁場 H_c で量子相転移を起こしてギャップレスな朝永ラッティンジャー液体になる。 $H \geq H_c$ の磁場領域では、磁化の温度依存性に極小値 T_m を持ち、 T_m が無磁場下でのスピニングギャップの大きさにユニバーサルにスケールされることを有効理論および数値計算によって示した。この現象を実現する例として、一次元有機量子梯子系DIMPYがある。この系はスピニングギャップの大きさは、中性子散乱の磁気分散および磁場中での比熱によって評価され、比熱の T の線形項の係数から朝永ラッティンジャーパラメタであるフェルミ速度が求められた。これをDMRGの計算結果と比較することにより系の相互作用の強さを定量的に見積もることに成功した。またこの梯子系でも、実際に磁化の温度依存性に低温で極小が存在することも検証され、磁化の温度依存性の実験と理論との比較も現在行われている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計13件)

⑧査読なし 他査読あり

- ① K. Asano, C. Hotta, Designing Dirac points in two-dimensional lattices, accepted to Phys. Rev. B (2011).
- ② C. Hotta, T. Kiyota, N. Furukawa, Dimensional crossover in the Ising antiferromagnet on the anisotropic triangular lattice at finite temperature, Europhys. Lett., **93** (2011)47001 (1-5).
- ③ C. Hotta, Quantum electric dipoles in spin-liquid dimer Mott insulator κ - $\text{ET}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$, Phys. Rev. B, **81** (2010) 31044R (1-4).
- ④ T. Hong, Y. H. Kim, C. Hotta, Y. Takano, G. Tremelling, C. P. Landee, H.-J. Kang, N. B. Christensen, K. P. Schmidt, K. Lefmann, G. S. Uhrig, and C. Broholm, Field-Induced Tomonaga-Luttinger Liquid Phase of a Two-Leg Spin-1/2 Ladder with Strong Leg Interactions, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 137207 (1-4).
- ⑤ M. Abdel-Jawad, I. Terasaki, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, Y. Uesu, C. Hotta, Anomalous dielectric

- response in the dimer Mott insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃, Phys. Rev. B, **82** (2010)125119 (1-5).
- ⑥ 堀田 知佐, 古川 信夫, 異方的三角格子上の電荷のフラストレーション, 固体物理 **45** (2010) 255 (1-5).
- ⑦ C. Hotta, Interplay of strongly correlated electrons and localized Ising moments in one dimension, Phys. Rev. B, **81** (2010)245104(1-9).
- ⑧ 堀田 知佐, 古川 信夫, 異方的三角格子上の電荷のフラストレーション, 固体物理 **45** (2010) 255 (1-5).
- ⑨ C. Hotta, A. Kobayashi, Effect of interactions on Dirac points in organic solids, Physica B **405** (2010) S164 (1-4).
- ⑩ N. Furukawa, S. Miyahara, C. Hotta, Frustrated Metals on a Triangular Lattice, Int. J. Mod. Phys. C **20** (2009) 1477
- ⑪ C. Hotta, F. Pollmann, "Strongly interacting particles on an anisotropic kagome lattice", J. Phys. Conf. Ser. **145** (2009) 012007(1-4)
- ⑫ M. Miyazaki, C. Hotta, S. Miyahara, K.Matsuda, N. Furukawa, "Variational Monte Carlo Study of a Spinless Fermion t-V Model on a Triangular Lattice: Formation of a Pinball Liquid", J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 014707(1-7)
- ⑬ C. Hotta, F. Pollmann, Dimensional tuning of electronic states under strong and frustrated interactions, Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 186404(1-4)
- ⑭ Y. Maeda, C. Hotta, M. Oshikawa, Universal temperature dependence of the magnetization of gapped spin chains, Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 057205(1-4).

[学会発表] (計 36 件)

[1] C. Hotta, Quantum electric dipoles in spin liquid dimer Mott insulator κ -ET₂Cu₂(CN)₃, American Physical Society March meeting 2011, March 23,

2011, Texas, United States of America

[2] 堀田 知佐, ディラック・ポイントに対するgeneralized von Neumann-Wigner理論, 新学術領域「分子自由度が拓く新物質科学」第4回領域会議, 2011年1月6日, 東京大学本郷キャンパス小柴ホール

[3] 堀田 知佐, 1次元イジングスピン+強相関電子系における磁氣的フラストレーションと電荷ギャップ, 第6回トピカルミーティング「フラストレーションと量子輸送」, 2010年10月16日, 広島

[4]松岡京, 堀田 知佐, 異方的三角格子上的XXZ スピン系における新奇量子液体, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大学

[5] 堀田 知佐, 浅野 建一, 異方性のある二次元格子におけるディラック・ポイントの探索, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大学

[6] T. Hong, Y.H. Kim, 堀田知佐, 高野安正, G. Tremelling, M.M. Turnbull, C.P. Landee, H.-J. Kang, N.B. Christensen, K. Lefmann, K.P. Schmidt, G.S. Uhrig, C. Broholm, 量子スピングャップ系における 磁場誘起朝永-Luttinger液体相の解析, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月23日, 大阪府立大学

[7] C. Hotta, N. Shibata, Boundary effects in DMRG, International Workshop on Density Matrix Renormalization Group and Ptjer Advances in Numerical Renormalization Group Methods, August 30, 2010, Renmin University, Beijing, China

[8] K. Matsuoka, C. Hotta, Strong Coupling Approach to the Excited States of Spinless Fermion on Anisotropic Triangular Lattice, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010, July 8, 2010, Kyoto, Japan

[9] C. Hotta, Quantum electric dipoles in Spin liquid Mott insulator, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010, July 5, 2010, Kyoto, Japan

[10] 堀田 知佐, ダイマーモット系における量子ダイポール=スピン相関, 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月22日, 岡山大学

[11] M. Abdel-Jawad, 寺崎一郎, 佐々木孝彦^A, 米山直樹, 小林典男, 上江洲由晃, 堀田 知佐, ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の誘電異常, 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月22日, 岡山大学

[12] 松岡 京, 堀田 知佐, 異方的三角格子上的フラストレートしたXXZスピン系の低エネルギー状態, 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月20日, 岡山大学

[13] C. Hotta, Quantum electric dipoles in dimer Mott insulators, Novel states in correlated condensed matter -- from model systems to real materials, 2010年3月3日, Harnack Haus, Max Planck Institute (Berlin)

[14] 堀田 知佐, 新学術領域研究「分子自由度が拓く新物質科学」第3回領域研究会, 2010年1月6日, 仙台秋保温泉

[15] 堀田 知佐, 量子ダイポールとスピン液体, 特定領域「フラストレート系」第5回トピカルミーティング「誘電体にひそむランダムネスとフラストレーション」, 2009年12月19日, 大阪大学豊中キャンパス

[16] 堀田 知佐, “分子研研究会” 新規な誘電体最前線—電子と強誘電性—, 2009年10月31日, 国立分子科学研究所

[17] 堀田 知佐, 絶縁体の物理, 新学術領域研2「分子自由度が拓く新物質科学」第2回領域会議, 2009年10月7日, 東京大学本郷キャンパス

[18] 堀田 知佐, 古川 信夫, 異方的三角格子イジングスピン系における次元クロスオーバー, 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月26日, 熊本大学

[19] 西本 理, 堀田 知佐, 1/4-fillingの2次元拡張ハバード模型におけるダイマーモット絶縁体と電荷秩序, 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月26日, 熊本大学

[20] C. Hotta, Mott Insulator vs Charge Order, The 8th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors, and Ferromagnets, 2009

年9月16日, Niseko, Japan

[21] 堀田 知佐, “異方的三角格子における電荷秩序化と不均一化: 相互作用の効果”, 基研研究会「分子性導体における質量ゼロのディラック粒子とその新展開」, 2009年7月2日, 京都大学基礎物理学研究所

[22] 伊藤英俊, 堀田知佐, 久保健, ダイマーモット絶縁体と電荷秩序絶縁体, 日本物理学会第64回年次大会, 2009年3月30日, 立教大学

[23] 堀田知佐, π d系再考, 日本物理学会第64回年次大会, 2009年3月27日, 立教大学

[24] 堀田知佐, 古川信夫, F. Pollmann, K. Penc, 三角格子上の電荷のフラストレーション: 誘電性と金属性, 特定領域研究第三回トピカルミーティング「フラストレーションとスピン液体」, 2008年12月23日, 神戸大学

[25] 堀田知佐, DMRGにおける並進対称性の破れ, 京都大学基礎物理学研究所研究会「密度行列繰り込み群法を用いた物性研究の新展開」, 2008年12月17日, 京都大学基礎物理学研究所

[26] 堀田知佐, 清田哲広, 古川信夫, 異方的三角格子イジングモデルにおけるノンローカルオーダー, 日本物理学会 2008年秋季大会, 2008年9月22日, 近畿大学

[27] C. Hotta, F. Pollmann, N. Furukawa, “In between one and two dimension”, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2008, 2008年9月10日, Braunschweig, Germany

[28] 堀田 知佐 “異方的三角格子の強結合電子系に見られる1+1次元性”, ISSP ワークショップ: 分子性導体の電荷揺らぎと非線形伝導, 2008年5月21日, 東京大学物性研究所

[29] 堀田 知佐, 小林 晃人, 浅野 建一, “ディラックポイントと電荷不均化・電荷秩序”, 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月24日, 近畿大学

[30] 堀田 知佐, “異方的三角格子系における電荷の強相関物性”, 「強相関電子物性 理論研究会」, 2008年2月13日, 箱根

[31] 堀田 知佐, “ α 型有機結晶のコンタクトポイントの安定性に対する相互作用の効果”,

基研研究会「分子性ゼロギャップ物質の新物性」, 2007年12月4日, 京都大学基礎物理学研究所

[32] C. Hotta, “Dimensional tuning of electronic states under strongly frustrated interactions”, Yukawa International Seminar 2007 (YKIS2007), 2007年11月29日, 京都大学基礎物理学研究所

[33] C. Hotta, “Exotic states in organic triangular lattice system”, The 7th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and ferromagnets, 2007年9月26日, Peñíscola (Spain)

[34] 堀田 知佐, Frank Pollmann, “異方的三角格子における fractional charge”, 日本物理学会 第62回年次大会, 2007年9月21日, 北海道大学

[35] 宮崎 真長, 堀田 知佐, 宮原 慎, 松田 圭介, 古川 信夫, “変分モンテカルロ法による三角格子 t - V スピンレスフェルミオン模型の密度波状態”, 日本物理学会 第62回年次大会, 2007年9月21日, 北海道大学

[36] C. Hotta, “Geometrically frustrated charges on the anisotropic triangular lattices”, School and Workshop on Highly Frustrated Magnets and Strongly Correlated Systems, 2007年8月8日, Trieste (Italy).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

堀田 知佐 (HOTTA CHISA)

京都産業大学・理学部・准教授

研究者番号: 50372909