

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2006～2008

課題番号：18540327

研究課題名 (和文) 光学応答を介した金属絶縁体転移の理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical studies on the metal-insulator transition through the optical responses

研究代表者 富田 憲一 (TOMITA NORIKAZU)

山形大学・理学部・准教授

研究者番号：70290848

研究成果の概要：

モット型金属絶縁体転移は、キャリアがバンドを部分的にしか占有していないにもかかわらず、電子間相互作用の影響で電子が局在し、低温で絶縁体に転移することである。本研究では 1.温度によるモット転移が多段階的に起こること、2.光電子スペクトルの形状が相互作用の強さによって著しく異なること、3.弱相関領域の絶縁相は一体描像で説明できることを明らかにした。こうしたスペクトル形状の違いから、電子間相互作用の強さを知るプローブという、光電子分光法の新しい可能性を指摘した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	2,700,000	0	2,700,000
2007年度	500,000	150,000	650,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	300,000	4,000,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：①光物性 ②物性理論 ③強相関電子系

## 1. 研究開始当初の背景

(1)モット型金属絶縁体転移は電子間相互作用に起源を持つことから、モット絶縁体は強相関電子系であると考えられがちであった。

(2) 一方で、光電子分光実験から、モット絶縁体もしくはモット転移近傍にある金属のスペクトル形状は、例えば銅酸化物とバナジウム酸化物のように、物質によって大きく異

なることがわかっていた。このことは、モット絶縁体の中にも性格の異なるいくつかのタイプが存在することを示唆していた。

(3)高温超伝導がモット絶縁体に少量のキャリアをドーピングすることで実現されることから、モット絶縁体やモット型金属絶縁体転移の本質を理解することには大きな意義があった。

## 2. 研究の目的

(1) 光電子スペクトル等の光学応答を介したモット型金属絶縁体転移の振る舞いが相互作用の強さによってどのように異なるかを解明する。

(2) いわゆる強相関物質に対する光電子スペクトルが多体効果によって支配されていることを明らかにする。

(3) 弱相関においてもモット型金属絶縁体転移は起こるが、光電子スペクトルは一体近似で説明できることを示す。

(4) モット型金属絶縁体転移近傍に位置する金属相の光電子、及び光吸収スペクトルを計算し、その温度依存性を明らかにする。また、そのスペクトル形状を介して、金属状態にある電子について相互作用の効果を明らかにする。

(5) 1次元モット絶縁体の光電子スペクトルにはスピン-電荷分離に伴う、起源の異なる2つの成分が存在すると言われている。この問題を解明するため、1次元電子系における素励起の性質を調べ、光電子スペクトルに与える影響を明らかにする。

## 3. 研究の方法

電子間相互作用の効果を厳密に取り込んだスペクトル計算は、少数系に対するクラスター計算を除き、一般には困難であった。私は経路積分と量子モンテカルロ法を組み合わせることで、電子間相互作用の効果を厳密に取り込んだスペクトルの計算を可能にした。以下にその要点を記す。例えばハバードハミルトニアン

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle \sigma} (a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma}) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$

に対して、 $e^{-\beta H}$  は厳密に

$$e^{-\beta H} = \int Dx T_+ \exp \left[ - \int_0^\beta d\tau \{ H_0(\tau) + \sum_l x(l, \tau) S_l(\tau) \} \right], \quad x(l, \tau) = \sqrt{\frac{U}{2\Delta}} \sigma_l(\tau)$$

と表される。ここで、 $H_0$  はハミルトニアン の第1項を、 $\Delta$  はトロッター刻みを表す。 $\sigma_l(\tau)$  は $\pm 1$ のスカラー量で、同一サイトクーロン相互作用はこの補助場によって一体

化される。また、経路積分  $\int Dx$  は  $\sigma_l(\tau)$  が、

各  $l$  及び  $\tau$  において取り得る全ての値を足し合わせることを意味している。この経路積分により、ハバードハミルトニアンは補助場  $\sigma_l(\tau)$  を含む一体ハミルトニアンに帰着し、各補助場の値が決まれば、その補助場に対応する(経路に対応する)一体ハミルトニアンを解く事で、観測量を計算することができる。厳密な観測量は、全ての経路について足し合わせることで求まる。つまり、

$$\langle \hat{O}(\tau_0) \rangle = \int Dx \langle \hat{O}(\tau_0) \rangle_x$$

$$\langle \hat{O}(\tau_0) \rangle_x =$$

$$\frac{\text{Tr} \left[ T_+ \hat{O}(\tau_0) \exp \left[ - \int_0^\beta d\tau \{ H_0(\tau) + \sum_l x_l(\tau) S_l(\tau) \} \right] \right]}{\text{Tr} (e^{-\beta H})}$$

となる。経路の和は importance sampling によって見積る。光電子スペクトルならば一体グリーン関数を、光吸収スペクトルならばカレント演算子の積を計算すればよい。本手法を用いることで、光学スペクトルに現れる多体効果が明らかになり、光学応答を介した金属絶縁体転移の本質解明が可能になる。

また、研究目的(5)を遂行するために、共鳴 Hartree-Fock (HF) 法を用いる。共鳴 HF 法では、非直交なスレーター行列式の重ねあわせで多体の波動関数を構築する。具体的には

$$|\Psi\rangle = \sum_f C_f |f\rangle$$

と表される。ここで、各スレーター行列式  $|f\rangle$  は互いに非直交とする。非直交スレーター行列式を重ね合わせることで、自動的に全電子励起を取り込み合うことになり、量子力学的多体効果を効率よく記述することができる。共鳴 HF 法では、重ね合わせの係数  $C_f$  だけでなく、各スレーター行列式  $|f\rangle$  の軌道についても最適化を行う。共鳴 HF 法では、波動関数を構成する各スレーター行列式が、それぞれ量子多体効果を取り込めるよう、DODS (スピン毎に異なる軌道を用いる) 型で対称性の破れた非制限 HF (UHF) タイプのものを用いる。その一方で、波動関数は、個々の物質が持つ点群対称性を反映するよう構築する。従って、UHF 型のスレーター行列式に対しては、対称性を回復する操作が必要になる。こうした対称性回復操作を施した波動関数に対してエネルギー期待値に関する変分

から重ね合わせの係数と軌道の両方を決定する。共鳴 HF 法の最大の利点は、波動関数を構築するスレーター行列式を介して、量子揺らぎに関する直接的な情報を得られることである。この手法を用いれば、1次元電子系における素励起の性質を明確にできるはずである。

#### 4. 研究成果

モット型金属絶縁体転移が、バンド型転移と異なる点は、キャリアがバンドを部分的にしか占有していないにもかかわらず、電子間相互作用の影響で電子が局在し、低温で絶縁体に転移することである。このように金属絶縁体転移が電子間相互作用に起源を持つことから、モット絶縁体は強相関電子系であると考えられがちである。

一方で、最近の光電子分光実験によって、モット絶縁体もしくはモット転移近傍にある金属のスペクトル形状は、例えば銅酸化物とバナジウム酸化物のように、物質によって大きく異なることがわかった。このことは、モット絶縁体の中にも性格の異なるいくつかのタイプが存在することを示唆している。

(1) 平成18年度は、こうしたモット絶縁体の性質の違いが電子間相互作用の強さに起因していることを明らかにした。

用いたモデルは、電子の最隣接格子点へのトランスファーと同一格子点上の2電子間に働くオンサイトクーロン相互作用を考慮したハバードモデルで、電子数が格子点の数と等しい 1/2-filled 系を考えた。以下の点が明らかになり、Physical Review B に掲載された。

1. オンサイトクーロン相互作用が弱くても、低温では絶縁体が基底状態であり、その光電子スペクトルはフェルミエネルギー ( $E_F$ ) 近傍に鋭いピークを持つ。(図1)

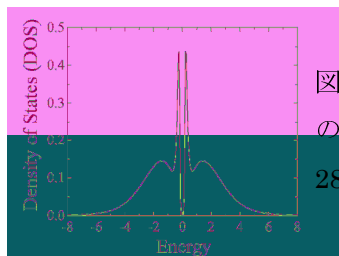


図1  $U/t=1.5$  の状態密度 ( $\beta = 28$ )

2. この  $E_F$  近傍のピークは1体成分からなり、電子状態も1体描像で記述される。
3. 電子間相互作用が強いときは、光電子スペクトルに鋭いピークはなく、全体に幅の広い単一ピーク構造をとる。(図2)
4. このとき、光電子スペクトルは多体成分によって支配され1体成分は消失する。
5. こうしたスペクトル形状の違いから、光電子分光は電子間相互作用の強さを知るプローブになり得る。

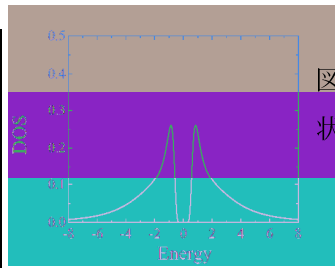


図2  $U/t=4$  の状態密度 ( $\beta = 12$ )

これらの計算結果は、測定された光電子スペクトルの形状と良く対応しており、物質中の電子間相互作用の強さを理解する上で、重要な結果であると考えている。

(2) 平成19年度は、主にモット転移近傍の金属相及び絶縁相へ転移する様子を光電子及び光吸収スペクトルを通して明らかにした。光学スペクトルは経路積分形式量子モンテカルロ法によって計算した。今回明らかになったことは、

1. 光電子スペクトルに現れるフェルミエネルギー ( $E_F$ ) 上でのピークは、温度の低下とともにその幅が広がる。熱揺らぎは減少しているはずなので、これは絶縁相への揺らぎ、つまり反強磁性揺らぎに起因していると考えられる。
2. 更に温度を下げると  $E_F$  近傍に鋭いピークが現れるが、このピークのエネルギー位置は温度に依存しない。これはギャップが少しずつ成長するのではなく、ギャップの開いた状態が揺らぎとして成長していることを示唆している。
3. 光吸収スペクトルは温度の低下とともにドルーデ成分が減少しエネルギーギャップに対応する位置に強度が移っていく。このこともギャップが連続的に成長するのではなく、ギャップの開いた状態が揺らぎとして成長していることを示唆している。(図3)

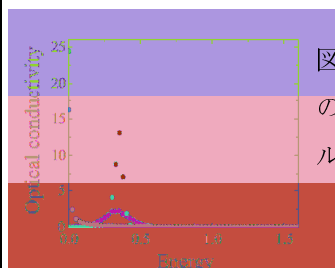


図3  $U/t=1.5$  の光吸収スペクトル ( $\beta = 5, 10, 20$ )

4. これらの結果は SMIS 実験の結果とも整合している。

以上の計算結果は、モット転移の性質を理解する上で重要な結果であると考えている。

(3) 平成20年度は、絶縁相に少量の電子(または正孔)をドーピングしたときのキャリアの性質について研究を行った。電子間相互作用の基本的な効果を理解するため、1次元及び2次

元ハバードモデルを使用した。Half-filledからずれた電子系については、数値計算が困難な為、キャリアの性質も極めて定性的な議論しか行われていない。本研究では、非直交スレーター行列式の重ね合わせでフェルミ粒子系の波動関数を構築する共鳴Hartree-Fock法を用いた。非直交なスレーター行列式は、互いに全電子励起の効果を取り込み合い、効率良く大規模量子揺らぎを取り込むことが可能になる。また、スレーター行列式としては、DODS(different orbitals for different spins)型を用いた。従来の摂動計算や第一原理計算で用いられる制限型のスレーター行列式では、モット絶縁体を記述するのが困難であるが、DODS型スレーター行列式ならば、スピン密度波状態やそこからの低エネルギー励起状態を容易に記述することが可能である。こうした物理的解釈が可能なスレーター行列式を重ね合わせることで多体波動関数を構築するため、単に電子相関効果を効率的に記述するだけでなく、量子揺らぎに関する直接的な情報を得ることができる。この手法を用いて、1次元系では以下の結果を得た。

1. 電子間相互作用が強い時の量子揺らぎはスピノンとホロンに分離されている。
2. 相互作用が中間領域以下のときは、スピンと電荷が結合したポーラロンの揺らぎも重要になる。(以上図4)

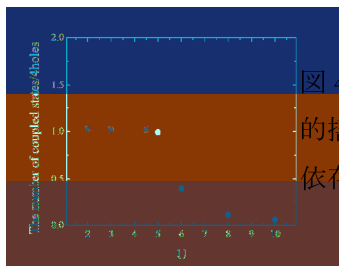


図4 ポーラロンの揺らぎの数のU依存性

3. ドーピングを進めると、強相関領域でもスピンと電荷の結合が進む。

また、本成果は *Physical Review B* に掲載された。2次元系の結果は現在投稿中である。

#### 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4件)

##### ① 富田憲一

Quantum fluctuations in the one dimensional doped Hubbard model, *J. Phys. Conference Series* **150**, 042214 (2009). 査読あり

##### ② 富田憲一

Visualization of quantum fluctuations by superposition of optimized nonorthogonal Slater

determinants, *Phys. Rev.* **B79**, 075113 (2009). 査読あり

##### ③ 富田憲一

Antiferromagnetic fluctuations in the quantum phase transition of the one-dimensional electron system, *J. Appl. Phys.* **101**, 09G509 (2007). 査読あり

##### ④ 富田憲一、那須奎一郎

Electron correlation effects on Lehmann spectra of one-body Green functions for insulating states caused by the Coulomb repulsion, *Phys. Rev.* **B75**, 115132 (2007). 査読あり

[学会発表] (計13件)

##### ① 富田憲一、渡辺秀治

共鳴HF法を用いた2次元ドーブ系における電子状態の研究、第64回年次大会、立教学院、2009年3月27日

##### ② 富田憲一

2次元ハバードモデルにおける量子揺らぎの視覚化—スピノン、ホロン、ストライプ—、文科省「最先端・高性能汎用スーパーコンピュータの開発利用」プロジェクト 次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発 第3回公開シンポジウム、岡崎コンファレンスセンター、2009年3月5日

##### ③ 富田憲一、渡辺秀治

二次元ドーブ系の電子状態に関するUHF近似を用いた研究、2008年秋季大会、岩手大学上田キャンパス、2008年9月22日

##### ④ 富田憲一、檜山智一

2次元SDW-CDW相転移におけるドメインウォールの研究、2008年秋季大会、岩手大学上田キャンパス、2008年9月22日

##### ⑤ 富田憲一、那須奎一郎

非マルコフ経路積分法による光電子分光理論、2008年秋季大会、岩手大学上田キャンパス、2008年9月22日

##### ⑥ 富田憲一

Quantum fluctuations in the one dimensional doped Hubbard model, *LT25*, Amsterdam, 2008年8月9日

##### ⑦ 富田憲一

A wavefunction by superposition of non-orthogonal multi-Slater determinants for strongly correlated electron systems, 1<sup>st</sup> International Conference of the Grand Challenge to Next-Generation Integrated Nanoscience, Tokyo, 2008年6月4日

⑧ 富田憲一

完全最適化された非直交スレーター行列式の重ね合わせによる光学応答の計算、第 63 回年次大会、近畿大学、2008 年 3 月 23 日

⑨ 富田憲一

完全最適化された非直交スレーター行列式による電子状態計算、文科省「最先端・高性能汎用スーパーコンピュータの開発利用」プロジェクト 次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発 第 2 回公開シンポジウム、岡崎コンファレンスセンター、2008 年 3 月 5 日

⑩ 富田憲一

共鳴 Hartree-Fock 法を用いた光学スペクトルの計算、第 62 回年次大会、北海道大学、2007 年 9 月 24 日

⑪ 富田憲一、那須奎一郎

弱相関電子系の金属-絶縁体転移に関する理論的研究、2007 年春の分科会、鹿児島大学、2007 年 3 月 20 日

⑫ 富田憲一

Antiferromagnetic fluctuations in the quantum phase transition of the one-dimensional electron system, The 10th Joint MMM/Intermag Meeting, Baltimore, 2007 年 1 月 9 日

⑬ 富田憲一、那須奎一郎

光学応答を介した金属-絶縁体転移の研究～金属状態を中心に～、2006 年秋の分科会、千葉大学西千葉キャンパス、2006 年 9 月 25 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富田 憲一 (TOMITA NORIKAZU)

山形大学・理学部・准教授

研究者番号：70290848