

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2023

課題番号：18K03475

研究課題名(和文) 格子自由度と結合した2次元強相関ディラック電子系における絶縁相の探索

研究課題名(英文) Numerical study of two-dimensional strongly correlated Dirac electrons with electron-lattice coupling

研究代表者

大塚 雄一 (Otsuka, Yuichi)

国立研究開発法人理化学研究所・計算科学研究センター・技師

研究者番号：30390652

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：ハニカム格子上的のハバード模型にパイエルス型の電子格子相互作用を加えた場合、どのようなvalence-bond-solid (VBS)が実現されるのかを数値的に調べた。reflection symmetryにより限定される、グラフェンに関して許される全ての可能な格子変位のパターンを考慮し、最も安定な格子構造を決定した。その結果、ケクレ型の二量体格子歪みを伴うVBS相が半金属相と反強磁性相の中間相として現れることが分かった。これは、実験的には、歪みのないグラフェンに負圧を印加することで、有限の電荷ギャップを持つVBS相が誘起される可能性があることを示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

グラフェンには高いキャリア移動度という際立った特徴があるため、電界効果型トランジスタ等への実用化が期待されている。そのためには何らかの手段によって電荷ギャップを導入することが望まれているが、今のところ決定的な手法は確立されていない。本研究は、グラフェンにおける実効的な電子間相互作用が比較的大きいことに着目し、電子間相互作用と電子格子相互作用の協奏による絶縁体化へのルートを探すことを目的としており、工学的に大きな波及効果を持つことが期待される。

研究成果の概要(英文)：We investigate if and how the valence-bond-solid (VBS) state emerges in the Hubbard model on the honeycomb lattice when the Peierls-type electron-lattice coupling is introduced. We consider all possible lattice-distortion patterns allowed for this lattice model for graphene which preserve the reflection symmetry and determine the most stable configuration in the adiabatic limit by using an unbiased quantum Monte Carlo method. The VBS phase with Kekulé dimerization is found to appear as an intermediate phase between a semimetal and an antiferromagnetic Mott insulator for a moderately rigid lattice. This implies that the undistorted semimetallic graphene can be driven into the VBS phase by applying strain, accompanied by the single-particle excitation gap opening.

研究分野：物性理論

キーワード：強相関電子系 量子モンテカルロ法 グラフェン 電子格子相互作用 Valence Bond Solid

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

グラフェンは単層のグラファイトとして存在することが報告されて以来、物性物理学における中心的なトピックの一つとして精力的に研究が続いていた。グラフェンを特殊なものにしている第一の要因は、それが原子層程度の厚みしか持たない真の 2 次元物質であることにある。さらに、グラフェンの骨格であるハニカム(蜂の巣)格子は配位数(隣接原子の数)が 3 であり、これは 2 次元結晶では最小の値である。このため、より強い低次元性と、それに伴う大きな量子効果が期待される。ハニカム格子であることはまた、グラフェンを特異なものにしている第二の要因である、ディラック電子系という性質に繋がっている。すなわち、格子の対称性により、フェルミ面近傍のエネルギー分散が線形となり、低エネルギーの電子状態は相対論的量子論であるディラック方程式によって実効的に記述される。通常、物質中の電子は非相対論的なシュレディンガー方程式に従うが、これがディラック方程式に置き換えられることで、特異な量子ホール効果などが現れ、グラフェンに多彩な物性をもたらしている。

2 次元ディラック電子系という特徴はまた、強相関効果を考える舞台としても注目を集めていた。古くは、線形分散のためフェルミ面上での状態密度がゼロとなる性質に着目し、有限の電子間相互作用の強さで起こる反強磁性モット絶縁体への転移が、ハニカム格子上的ハバード模型を基にして示されていた[Sorella and Tosatti, Euro. Phys. Lett. (1992)]。この模型に関しては、2010 年にスピン液体相の可能性が提案され、大きな注目を集めたが[Meng et al., Nature (2010)]、その後間もなく研究代表者らによる大規模な量子モンテカルロ(QMC)計算により、スピン液体相は否定されることになった[Sorella et al., Sci. Rep. (2012)]。モット転移に関する研究はその後も続き、この転移が素粒子分野における Gross-Neveu 模型でのカイラル対称性の破れと同じ普遍性クラスに属することが指摘された[Assaad, Herbut, Phys. Rev. X (2013)]。このシナリオはより精密な数値計算によって検証され、モット転移の普遍性クラスの存在と、それを特徴づける臨界指数が数値的に明らかにされた[Otsuka et al., Phys. Rev. X. (2016)]。

ディラック電子系におけるモット転移(すなわち金属-絶縁体転移)に関する理解は、基礎論的な観点からは進んだが、一方で、グラフェンにおいて金属-絶縁体転移は実験的に実現されていない。しかし、これは必ずしもグラフェンが弱相関系であることを意味してはいない。第一原理計算によると、グラフェンでの遮蔽も考慮に入れた実効的なオンサイトの相互作用は 9.3eV 程度と見積もられており[Wehling et al., Phys. Rev. Lett. (2011)]、これを遷移積分の見積もりである 2.8eV と比較すると、ハバード模型での相転移点 $U_c/t \cong 3.8$ と非常に近いことが分かる。すなわち、現実物質としてのグラフェンは半金属であるが、金属-絶縁体転移近傍に位置しており、このため、何らかの摂動により絶縁体(半導体)化させることが可能であると期待されていた。工学的応用という観点からも、グラフェンには高いキャリア移動度という際立った特徴があるため、電界効果型トランジスタ等への実用化が目指されていたが、そのためには電荷ギャップを導入することが強く望まれていた[Schwierz, Nat. Nanotechnol. (2010)]。

2. 研究の目的

実際にグラフェンを絶縁体化させる試みとしては、機械的な伸長を加えることで、遷移積分強度 t を減少させ、実効的に U/t を増やす方向性が探られていた[Guinea et al., Nat. Phys. (2010)]。この実験に対応した第一原理 QMC 計算も行われ、反強磁性絶縁相の近傍で、構造相転移を伴う新たな絶縁相の存在を示す結果が得られていた[図 1; Sorella et al., Phys. Rev. Lett (2018)]。本研究では、この第一原理計算と相補的なアプローチとして、電子間相互作用について近似なく扱うことが可能な、格子模型における QMC 計算から、構造相転移を伴うギャップ相の可能性を探求することを目的とした。

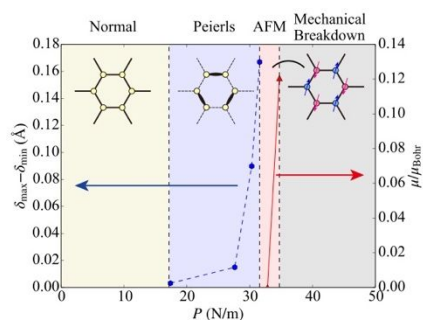


図 1: 圧力と格子変位の関係 (Sorella et al, PRL 2018)

3. 研究の方法

本研究で考察した可能な絶縁相の模式図を図 2 に示す。(a)は反強磁性モット絶縁相、(b)-(d)は構造相転移を伴う絶縁相である。Frank と Lieb はハニカム格子上的ハバード模型に対し、Reflection Positivity 定理に基づく数理的に厳密な議論を行い、パイエルス相で許される格子変位のパターンを絞り込んだ[Phys. Rev. Lett. (2011)]。その最大限に一般的な形が(b)であり、(c)と(d)はそれに含まれる。(c)は格子変位の強いプラケット内でスピナー重項が共鳴している広義の RVB 状態であり、また(d)は一重項が結晶化した VBS 状態を表している。本研究では、これらの絶縁相の間の競合を、格子模型に対する QMC 計算で数値的に調べた。

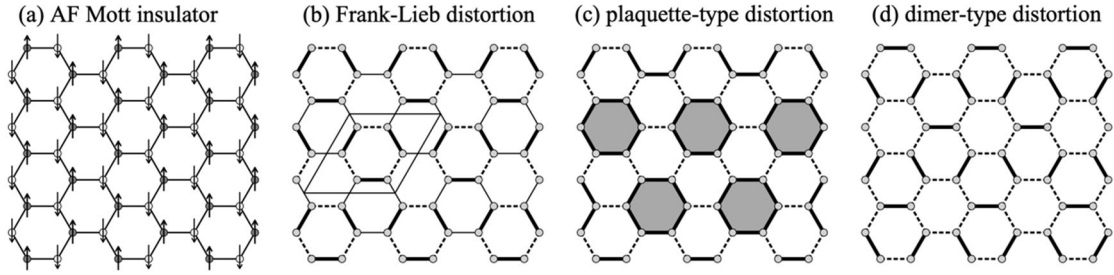


図 2: ハニカム格子上的のハバード模型において予想される絶縁相の状態

具体的には、ハニカム格子上的のハバード模型にパイエルス型の電子格子相互作用を加えた、以下のハミルトニアンで記述される模型を対象とした。

$$\hat{H} = - \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (t - gu_{ij}) (\hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} + \text{h.c.}) + U \sum_i \left(\hat{n}_{i\uparrow} - \frac{1}{2} \right) \left(\hat{n}_{i\downarrow} - \frac{1}{2} \right) + \frac{K}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} u_{ij}^2$$

ここで、 u_{ij} はサイト i とサイト j の間の格子変位を表す変数である。また、格子変位による弾性エネルギーは g/K という無次元化されたパラメータで調整される。 u_{ij} は断熱近似の下で古典変数として扱う。即ち、 u_{ij} は自由エネルギーが最小となる値を取るものとする。一方で、電子系の自由度に関しては温度および量子ゆらぎもフルに取り込んだ計算を行った。そのため、 u_{ij} を決定する自己無撞着方程式の各ステップで補助場量子モンテカルル法によるシミュレーションを行うという、大規模計算を行った。量子モンテカルル法は本質的に統計誤差を含む手法であることから、これによる自己無撞着方程式の解への影響を抑えるため、Robbins-Monro 法と呼ばれる手法を用いた。

4. 研究成果

(1) 補助場 QMC 法による有限温度相図の解明

典型的な格子変位の温度依存性を図 3 に示す。ここで、 \bar{u} と \bar{u}' はそれぞれ図 2 の (d) と (c) に対応する格子変位である。本研究で調べたすべてのパラメータ領域において、プラケット型のパイエルス相は実現されず、(d) で示されるようなケクレ型の VBS 相のみが現れることが分かった。この構造は先行研究である第一原理 QMC 計算の結果と一致するものである。温度依存性を詳しく見てみると、図 3(a) の $U/t = 3 < U_c/t$ では、サイズ (L) 依存性が大きいことが分かった。これは、この弱相関領域では格子変位がない場合、半金属相となっているため、低エネルギー領域の状態を決めているのはディラック点近傍の波数を持つ状態であり、波数空間におけるディラック点周りの解像度が結果に大きく関わっているためと考えられる。一方、電子間相互作用が十分強い場合 [図 3(c)]、小さい系で転移が一次転移的に見える結果となった。これは後でも述べるが、基底状態におけるケクレ VBS 相と反強磁性相は実際一次転移で隔たれており、有限温度においても反強磁性の相関距離が L を超えるような場合はこの一次転移的な振る舞いが有限温度においても現れるものと考えられることが分かった。

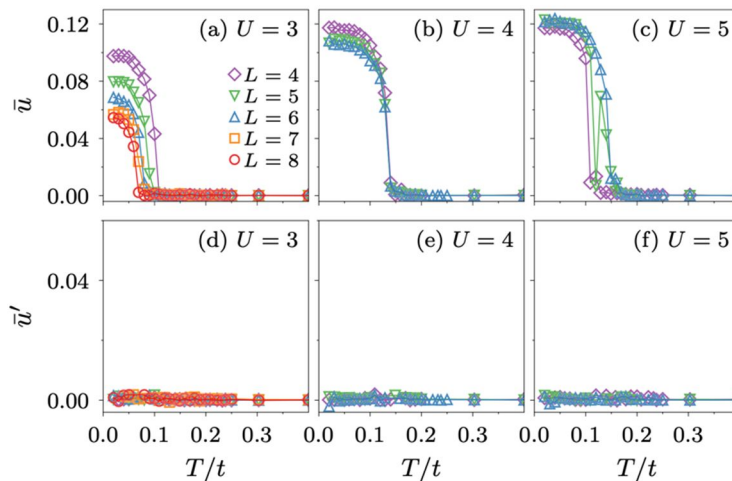


図 4 格子変位の温度依存性 ($g/K = 0.4$)

同様の計算を電子格子相互作用の強さを変えながら行い、有限温度相図を決定した結果が図 5 となる。格子がより「固い」場合、ケクレ VBS 相はより低温の狭い領域に限定されるが、特徴的なのは、その領域が U_c/t 近傍となることである。この特徴により、元々電子格子相互を考えない場合は半金属相から反強磁性への連続転移だった領域において、中間相としてケクレ VBS 相が現れることが示唆される。

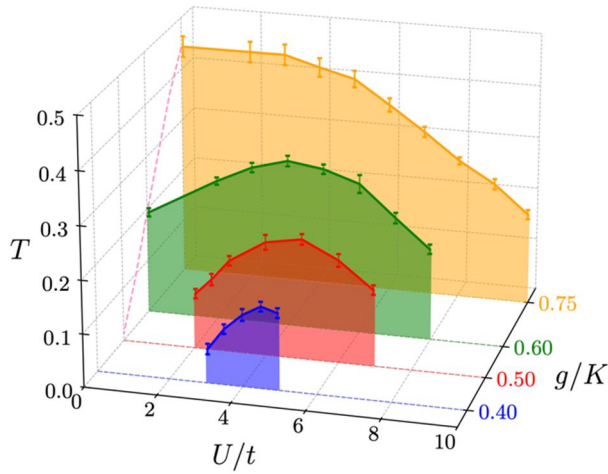


図 5 補助場 QMC 法により求められた有限温度相図

(2) 補助場 QMC 法による基底状態相図の解明

これまでの計算により、ブラケット型のパイエルス絶縁相は現れず、格子変位に関してはケクレ VBS 相の秩序変数である \bar{u} の 1 変数のみを考慮すれば良いことがわかった。そこで、反復法により \bar{u} を求めるのではなく、 \bar{u} に関する自由エネルギーの微分値を各点で補助場 QMC 法によって求め、数値積分することで直接的に自由エネルギーの \bar{u} 依存性を計算することが現実的となった。実際、この方法により $T/t = 0.05$ において決定した相図を図 6 に示す。なお、計算は有限サイズのクラスタで行われたため、この温度の相図は実際的には基底状態相図とすることが出来る。図から分かる通り、ケクレ VBS 相は U_c/t に向かい凸型に張り出している特徴的な形をしている。このため、例えば g/K を 0.4 に固定し、 U/t を増加させるような場合を考えると、系は半金属相から反強磁性相に転移する前に、ケクレ VBS 相となることが分かった。これは図 1 に示した第一原理 QMC 計算の結果と一致するものである。グラフェンとの関連で言えば、グラフェンは機械的な伸長に強い、「固い」系であり、これは本研究では g/K の小さい領域に対応する。そして、伸長、すなわち負圧は格子間距離を伸ばすものであるが、これは遷移積分強度 t を減少させる一方、電子間相互作用 U にはあまり影響がないものと考えられる。従って、小さい g/K (例えば 0.4) において U/t を増加させるというのは、実験的にはグラフェンに負圧をかけることに相当し、本研究の結果はこれによりケクレ型の VBS 相が安定化することを示唆するものと言える。

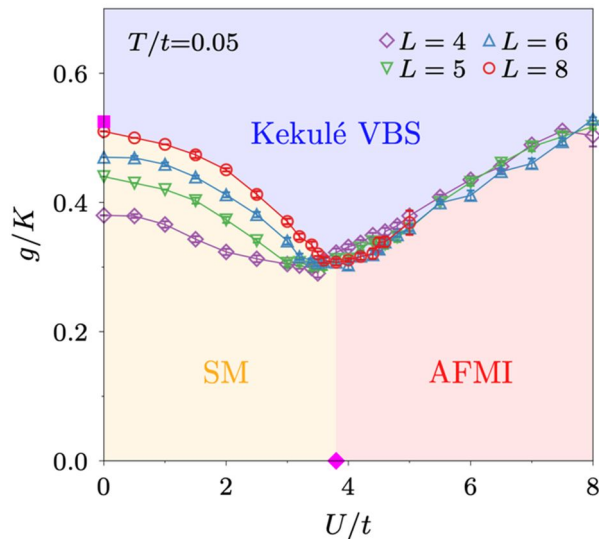


図 6 補助場 QMC により求められた基底状態相図

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Otsuka Yuichi, Yoshida Tsuneya, Kudo Koji, Yunoki Seiji, Hatsugai Yasuhiro	4. 巻 11
2. 論文標題 Higher-order topological Mott insulator on the pyrochlore lattice	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 20270-1 ~ 20270-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-99213-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Seki Kazuhiro, Otsuka Yuichi, Yunoki Seiji	4. 巻 105
2. 論文標題 Gutzwiller wave function on a quantum computer using a discrete Hubbard-Stratonovich transformation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155119-1 ~ 17
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.155119	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ueda Hiroshi, Otsuka Yuichi, Yunoki Seiji	4. 巻 91
2. 論文標題 Quantum-inspired Search Method for Low-energy States of Classical Ising Hamiltonians	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 044005-1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.044005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Otsuka Yuichi, Seki Kazuhiro, Sorella Sandro, Yunoki Seiji	4. 巻 2207
2. 論文標題 QMC study of the chiral Heisenberg Gross-Neveu universality class	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012030 ~ 012030
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/2207/1/012030	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Otsuka Yuichi, Seki Kazuhiro, Sorella Sandro, Yunoki Seiji	4. 巻 102
2. 論文標題 Dirac electrons in the square-lattice Hubbard model with a d-wave pairing field: The chiral Heisenberg universality class revisited	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235105-1/11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.235105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Otsuka Yuichi, Seki Kazuhiro, Sorella Sandro, Yunoki Seiji	4. 巻 98
2. 論文標題 Quantum criticality in the metal-superconductor transition of interacting Dirac fermions on a triangular lattice	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035126/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.035126	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Seki Kazuhiro, Otsuka Yuichi, Yunoki Seiji, Sorella Sandro	4. 巻 99
2. 論文標題 Fermi-liquid ground state of interacting Dirac fermions in two dimensions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 125145/1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.125145	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Yuichi Otsuka
2. 発表標題 Universal critical behavior in Hubbard models with Dirac dispersion: Gross-Neveu-Heisenberg class
3. 学会等名 2nd Global Summit on Condensed Matter Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuichi Otsuka
2. 発表標題 QMC study of the chiral Heisenberg Gross-Neveu universality class
3. 学会等名 XXXII IUPAP Conference on Computer Physics (CCP2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大塚雄一
2. 発表標題 パイロクロア格子上の高次トポロジカルモット絶縁体
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大塚雄一
2. 発表標題 強相関ディラック電子系における量子相転移の臨界性
3. 学会等名 分子研研究会「有機ディラック電子系におけるトポロジカル現象と新奇物性開拓」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大塚雄一
2. 発表標題 d波超伝導秩序変数を持つ系における反強磁性モット転移の数値的研究
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Otsuka
2. 発表標題 QMC study of the Gross-Neveu universality class; the chiral-Heisenberg class revisited
3. 学会等名 Mini-workshop: "Fermionic Quantum Criticality and beyond" (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuichi Otsuka
2. 発表標題 Quantum Monte Carlo study of interacting Dirac fermions
3. 学会等名 Electron correlation, Quantum biology and Quantum information (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yuichi Otsuka
2. 発表標題 Semimetal-superconductor phase transition of interacting Dirac fermions on a triangular lattice with pi-flux
3. 学会等名 Tensor Network States: Algorithms and Applications (TNSAA) 2018-2019 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

量子系物質科学研究チーム https://www.r-ccs.riken.jp/labs/cms/ 量子系物質科学研究チーム https://www.r-ccs.riken.jp/labs/cms/
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
イタリア	SISSA			