

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2013

課題番号：22340097

研究課題名(和文) 計算物理学的手法による低次元強相関電子系のスペクトロスコピーの研究

研究課題名(英文) Numerical Study of Spectroscopic Properties in Low-Dimensional Strongly Correlated Electron Systems

研究代表者

遠山 貴巳 (Tohyama, Takami)

京都大学・基礎物理学研究所・教授

研究者番号：70237056

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,900,000円、(間接経費) 4,470,000円

研究成果の概要(和文)：低次元強相関電子系の示す多彩な量子現象の理解を発展させるため、スピン・電荷・軌道・格子の自由度の励起ダイナミクスをとらえることができる各種スペクトロスコピーに着目して、それらのスペクトル構造の特徴を計算物理学手法(厳密対角化法や動的密度行列繰り込み群法等)を駆使して解明した。その結果、格子系と結合したモット絶縁体の光励起状態の緩和ダイナミクス・格子系と結合した低次元スピン系のスピン励起構造・遍歴反強磁性体や銅酸化物高温超伝導体の共鳴非弾性X線散乱スペクトル・二次元三角格子を有する有機物質に対する磁気ラマン散乱スペクトルなどのトピックスで成果を公表することができた。

研究成果の概要(英文)：We focus on spectroscopic properties of low-dimensional strongly correlated electron systems, which can detect dynamics of spin, charge, orbital, and lattice degrees of freedom, in order to make a progress on our understanding of various quantum phenomena appearing in the systems. We use numerical techniques such as exact diagonalization and dynamical density-matrix renormalization group. We find various spectroscopic properties in the systems, for example, photoexcitation the relaxation dynamics of Mott insulators coupled to phonon, spin dynamics in low-dimensional spin systems coupled to phonon, resonant inelastic x-ray scattering in itinerant antiferromagnets and cuprate superconductors, magnetic Raman scattering in organic systems with triangular lattice. The obtained results are published in many journals.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：物性理論 光物性 密度行列繰り込み群法 厳密対角化法 低次元強相関電子系

### 1. 研究開始当初の背景

格子と整合する電子密度を持つ系では、強い電子間クーロン相互作用によりモット絶縁体と呼ばれる絶縁体状態が生じる。クーロン相互作用を弱めたりキャリアを注入したりすると電子が動き始める。そこでは、強い電子相関効果のため電子のもつ内部自由度である電荷及びスピンの独自の役割を担いながら電子状態を形成している。低次元系ではこの効果が強調され、その解明が強相関電子系研究の中心課題であった。一次元系では電荷とスピンの分離がその物性の骨格を決めている。二次元系では両者はより複雑な相互関係を示し、高温超伝導のような現象が現れる。さらに格子振動が電子・格子相互作用を通じて電子相関効果にどのような影響を及ぼすのかという点も重要な課題となっていた。

近年、低次元強相関電子系を調べる手法として、角度分解光電子分光、共鳴非弾性X線散乱、走査トンネル分光といった様々な種類のスペクトロスコープが発展してきた。一次元モット絶縁体では精密な角度分解光電子分光測定により電荷とスピンの自由度に起因する素励起が明瞭に観測されていた。二次元系である高温超伝導体では、超伝導と深く関わっていると考えられている電荷不均一や擬ギャップの存在が明らかとなっていた。また、共鳴非弾性X線散乱では金属状態での電荷励起の運動量依存性が観測され始めていた。一方、伝統的な光学応答においても低次元モット絶縁体に対する非線形光学応答の研究が急速に進展してきており、ポンプ・プローブ法による時間分解角度分解光電子分光や時間分解ラマン散乱も実験研究が始まったところであった。スピン励起に関しては J-PARC の稼働に伴い非弾性中性子散乱によるその精密測定も可能となってきた。このような状況を反映して、研究開始当時、低次元強相関電子系に対する各種先端的スペクトロスコープの発展に符合した理論サイドからの寄与が求められていた。

### 2. 研究の目的

以上の背景のもと、本研究では申請者が得意とする計算物理学手法（厳密対角化法や動的密度行列繰り込み群法等）を駆使して低次元強相関電子系に対するスペクトロスコープの理論構築を行うとともに、各種先端スペクトロスコープが与える情報を解明することで低次元強相関電子系の示す多彩な量子現象の理解を格段に発展させることにあった。特に、次の四つの柱を掲げた。

- (1) 格子系と結合したモット絶縁体の光励起状態の緩和ダイナミクスの解明
- (2) 格子系と結合した低次元スピン系のスピン励起構造の解明
- (3) 電荷秩序状態を示す系や不純物・界面を含む不均一系に対する共鳴非弾性X線散乱の理論構築と電荷励起の解明

(4) 新しい実験手法である時間分解角度分解光電子分光や時間分解ラマン散乱の理論構築と低次元強相関電子系の準粒子緩和プロセスの解明

### 3. 研究の方法

(1) 電子系を記述するモデルとして単一バンド・ハバード模型を、格子系にはアインシュタイン型フォノン、電子・格子相互作用にはホルシュタイン型を採用したいわゆるハバード・ホルシュタイン模型を有効模型として採用する。動的に拡張された密度行列繰り込み群法を用いて、この有効模型の光学応答スペクトルを計算し、電子・格子相互作用の効果を明らかにする。さらに、光励起後の系の状態の時間発展を計算し、励起直後の緩和に対する電荷・スピンの自由度と格子の自由度の相互関係について明らかにする。

(2) 格子系と結合した低次元スピン系では、次近接反強磁性相互作用まで考えた  $J_1$ - $J_2$  模型に格子変位による  $J_1$  の変化を加えた模型を設定し、そのスピン励起構造を動的密度行列繰り込み群法を用いて調べる。

(3) 二次元多軌道ハバード模型や電荷秩序を生じるポテンシャルを含んだ二次元単一軌道ハバード模型を設定し、共鳴非弾性X線散乱スペクトルを厳密対角化法で計算する。

(4) ポンプ光照射後の角度分解光電子分光スペクトル、ラマン散乱スペクトル、光学伝導度などの時間依存性を厳密対角化法で計算する。

### 4. 研究成果

以下、本科学研究費でサポートされた研究成果のうち、主なものについて述べる。

(1) 格子系と結合したモット絶縁体の光励起状態の緩和ダイナミクスの解明として、ハバード・ホルシュタイン模型の光励起後の系の状態の時間発展を 12 格子点の系に対して動的密度行列繰り込み群法を用いて計算し、励起直後の緩和に対する電荷・スピンの自由度と格子の自由度の相互関係について明らかにした。また、光吸収スペクトルの二つのエネルギー領域の形状を動的密度黒込み群法で調べ、それぞれの領域での電子間相互作用と電子・格子相互作用の効果、さらに実験との対比から  $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$  の物質パラメータを決定した。そのほか、動的密度行列繰り込み群法を用いてハバード・ホルシュタイン模型の三次非線形光学応答や、空間反転対称性の破れた有機物質に対する二次非線形光学応答の計算を行った。

(2) 拡張ハバード模型の光励起後の系の状態の時間発展を動的密度行列繰り込み群法や厳密対角化法で計算し、光で誘起される電荷密度変調の起源について明らかにした。また、拡張ハバード模型に二重パルス照射した際の振る舞いについて、厳密対角化法で計算し、第一パルスによって励起された状態が第二パルスによって基底状態に近づくこと

を示した。

(3) 格子系と結合した低次元スピン系のスピン励起構造の解明のため、一次元  $J_1$ - $J_2$  模型に格子変位による  $J_1$  の変化を加えた模型を設定し、そのスピン励起構造を動的密度行列繰り込み群法を用いて調べるとともに、フォノンの分散関係に対する電子格子相互作用の効果を解明した。実験グループとの意見交換も適宜行った。また、そのスピン励起構造に対する非磁性不純物の効果を動的密度行列繰り込み群法を用いて調べ、スピンギャップ構造が不純物によって変化する様子を明らかにした。さらに、ダイマー化した一次元  $J_1$ - $J_2$  模型のスピン励起構造に対する非磁性不純物の効果を動的密度行列繰り込み群法で調べ、実験との対比を行った。

(3) 電荷秩序状態を示す系に対する共鳴非弾性 X 線散乱の理論構築と電荷励起の解明のため、二次元多軌道ハバード模型や電荷秩序を生じるポテンシャルを含んだ二次元単一軌道ハバード模型を設定し、共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルの厳密対角化法による計算を進めた。また、不純物を含む不均一系に対する理論研究として、不純物とその周りの母体の共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルを厳密対角化法で計算して、不純物系の電子状態の特徴を明らかにした。分担者ではない共同研究者による実験結果との比較を行い、よい一致を得た。

(4) 軌道自由度が重要である鉄化合物超伝導体や典型的な反強磁性金属であるクロムの L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルを乱雑位相近似の範囲で計算し、実験に対する提案を行った。

(5) 銅酸化物高温超伝導体の銅 L 吸収端の共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルをスタンフォード大学の理論グループと共同で研究し、そのドーピング依存性の特徴を明らかにした。また、分担者ではない国内共同研究者による電子ドープ型銅酸化物高温超伝導体の L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱実験との比較を行い、よい一致を得た。

(6) 低次元強相関電子系の準粒子緩和プロセスの解明のため、ポンプ光照射後の角度分解光電子分光スペクトル、ラマン散乱スペクトル、光学伝導度などの時間依存性を厳密対角化法で計算するための手法の検討を行った。その結果、一次元モット絶縁体に対するポンプ光照射後の光学伝導度の時間依存性を計算できるようになった。

(7) 二次元三角格子を有する有機物質に対する磁気ラマン散乱スペクトルを、四体スピン相互作用まで考慮した二次元三角格子ハイゼンベルグ模型に対して計算した。分担者ではない共同研究者による実験データとのよい一致を得るとともに、三角格子型有機物質におけるスピン液体状態に関する新たな知見を得た。

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 40 件、内査読有 36 件)

Y. Nakamura, N. Yoneyama, T. Sasaki, T. Tohyama, A. Nakamura, H. Kishida, "Magnetic Raman scattering study of spin frustrated systems,  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ X", J. Phys. Soc. Jpn. **83**, (2014) 印刷中.

K. Ishii, M. Fujita, T. Sasaki, M. Minola, G. Dellea, C. Mazzoli, K. Kummer, G. Ghiringhelli, L. Braicovich, T. Tohyama, K. Tsutsumi, K. Sato, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, K. Yamada, M. Yoshida, M. Kurooka, J. Mizuki, "High-energy spin and charge excitations in electron-doped copper oxide superconductors", Nat. Commun. **5**, 3714 (1-8) (2014).

DOI: 10.1038/ncomms4714

C. J. Jia, E. A. Nowadnick, K. Wohlfeld, C.-C. Chen, S. Johnston, T. Tohyama, B. Moritz, T. P. Devereaux, "Persistent spin excitations in doped antiferromagnets revealed by resonant inelastic light scattering", Nat. Commun. **5**, 3314 (1-7) (2014).

DOI: 10.1038/ncomms4314

H. Lu, J. Bonca, T. Tohyama, "Double-pulse deexcitations in a one-dimensional strongly correlated system", EPL **103**, 57005 (1-5) (2014). DOI: 10.1209/0295-5075/103/57005

T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, S. Maekawa, " Effects of frustration on magnetic excitations in a two-leg spin-ladder system", Phys. Rev. B **87**, 155143 (1-7) (2013).

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.155143

K. Sugimoto, Z. Li, E. Kaneshita, K. Tsutsui, T. Tohyama, "Spin dynamics and resonant inelastic x-ray scattering in chromium with commensurate spin-density wave order", Phys. Rev. B **87**, 134418 (1-8) (2013).

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.134418

H. Lu, S. Sota, H. Matsueda, J. Bonca, T. Tohyama, "Enhanced Charge Order in a Photoexcited One-Dimensional Strongly Correlated System", Phys. Rev. Lett. **109**, 197401 (1-4) (2012).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.197401

K. Ishii, K. Tsutsui, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, K. Yamada, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endoh, H. Ishii, Y. Q. Cai, "Electronic excitations around the substituted atom in  $\text{La}_2\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_4$  as seen via resonant inelastic x-ray scattering", Phys. Rev. B **85**, 104509 (1-5) (2011).

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.104509

T. Sugimoto, S. Sota, T. Tohyama, "Spin Excitation Assisted by Non-Softening Phonon for Spin-Peierls Model ", J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 034706 (1-8) (2012).

DOI: 10.1143/JPSJ.81.034706

H. Matsueda, S. Sota, T. Tohyama, S. Maekawa, "Relaxation Dynamics of Photo-

carriers in One-Dimensional Mott Insulators Coupled to Phonons", J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 013701 (1-4) (2012).

DOI: 10.1143/JPSJ.81.013701

L. Vidmar, J. Bonca, S. Maekawa, T. Tohyama, "Quantum Dynamics of a Driven Correlated System, Coupled to Phonons", Phys. Rev. Lett. **107**, 246404 (1-4) (2011).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.246404

E. Kaneshita, K. Tsutsui, T. Tohyama, "Spin and orbital characters of excitations in iron arsenides revealed by simulated Fe L-edge RIXS", Phys. Rev. B **84**, 020511 (1-4) (2011).

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.020511

K. Sugimoto, E. Kaneshita, T. Tohyama, "Origin of In-Plane Anisotropy in Optical Conductivity for Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron Pnictides", J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 033706 (1-4) (2011).

DOI: 10.1143/JPSJ.80.033706

G. Khaliullin, M. Mori, T. Tohyama, S. Maekawa, "Enhanced Pairing Correlations near Oxygen Dopants in Cuprate Superconductors", Phys. Rev. Lett. **105**, 257005 (1-4) (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.257005

S. Sota, T. Tohyama, "Density matrix renormalization group study of optical conductivity in the one-dimensional Mott insulator  $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$ ", Phys. Rev. B **82**, 195130 (1-5) (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.195130

E. Kaneshita, T. Tohyama, "Spin and charge dynamics ruled by antiferromagnetic order in iron pnictide superconductors", Phys. Rev. B **82**, 094441 (1-5) (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.094441

T. Sugimoto, S. Sota, T. Tohyama, "Chirality in spin-1/2 zigzag XY chain: Low-temperature density-matrix renormalization group study", Phys. Rev. B **82**, 035437 (1-6) (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.035437

{学会発表}(計46件、内招待講演29件)

T. Tohyama, "Electronic excitations in 3d transition-metal compounds revealed by simulated resonant inelastic x-ray scattering", Light and Particle Beams in Materials Science 2013, 2013年8月31日, Tsukuba, JAPAN

T. Tohyama, "Resonant Inelastic X-ray Scattering in Chromium", The 8th International Conference on Inelastic X-ray Scattering, 2013年8月13日, Stanford, USA

遠山貴巳, "3d電子系高温超伝導体における共鳴非弾性X線散乱理論", 日本物理学会第69回年次大会領域5シンポジウム, 2014年3月27日, 東海大学

遠山貴巳, "遷移金属化合物のL端共鳴非弾性X線散乱の理論", 物性研究所短期研究会「真空紫外・軟X線放射光物性研究の将来」, 2013年5月29日, 東京大学物性研究所

T. Tohyama, "Nonequilibrium photo dynamics

of low-dimensional strongly correlated electron systems", Electronic States and Phases Induced by Electric or Optical Impacts, 2012年9月12日, Orsay, FRANCE

T. Tohyama, "Spin and charge excitations in cuprates and iron pnictides revealed by simulated resonant inelastic x-ray scattering", The 19th International Conference on Magnetism with Strongly Correlated Electron Systems, 2012年7月10日, Busan, KOREA

T. Tohyama, "Nonequilibrium photo dynamics of low-dimensional strongly correlated electron systems", The Korean Physical Society Meeting, 2012年4月24日, Dajeon, KOREA

遠山貴巳, "強相関電子系の光誘起励起ダイナミクス", 日本物理学会第68回年次大会 領域5、理論核物理領域、実験核物理領域合同シンポジウム, 2013年3月27日, 広島大学

遠山貴巳, "先端スペクトロスコーピーと連携した強相関電子系の励起ダイナミクス研究", 物性研究所計算物質科学研究センター 第2回シンポジウム, 2012年10月23日, 東京大学物性研究所

T. Tohyama, "Spin and Charge Excitations in the Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron Arsenides: Inelastic Neutron Scattering and Resonant Inelastic X-Ray Scattering", The 26th International Conference on Low Temperature Physics, 2011年8月14日, Beijing, CHINA

T. Tohyama, "Theory of Inelastic X-Ray Resonance Scattering in Iron Arsenides", 8th International Conference on Stripes and High Tc Superconductivity, 2011年7月13日, Rome, ITALY

遠山貴巳, "スピン・パイエルス物質  $\text{CuGeO}_3$  におけるスピンドイナミクス", WCROSSROAD of Users and J-PARC 第1回「J-PARCにおける強相関系や機能材料研究の将来」, 2011年10月17日, 総合科学研究機構東海事業センター(茨城県東海村)

T. Tohyama, "Electronic and Magnetic Properties in the Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron Pnictide Superconductors", 11th Korea-Japan-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron System, 2011年2月11日, Jeju, KOREA

T. Tohyama, "Electronic and Magnetic Properties in the Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron Pnictide Superconductors", The 9th Asia Pacific Workshop on Material Physics, 2010年12月13日, Hanoi, BETONAM

遠山貴巳, "理論: 物性物理からの期待とコメント", 日本物理学会2010年秋季大会領域5シンポジウム, 2010年9月25日, 大阪府立大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

遠山 貴巳 (TOHYAMA, Takami)

京都大学・基礎物理学研究所・教授

研究者番号: 70237056

(2)研究分担者

松枝 宏明 (MATSUEDA, Hiroaki)  
仙台高等専門学校・総合科学科・准教授  
研究者番号：20396518

筒井 健二 (TSUTSUI, Kenji)  
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用  
研究部門・研究主幹  
研究者番号：80291011

(3)連携研究者

曾田 繁利 (SOTA, Shigetoshi)  
理化学研究所・計算科学研究機構・研究員  
研究者番号：60466414

兼下 英司 (KANESHITA, Eiji)  
仙台高等専門学校・総合科学科・准教授  
研究者番号：60548212