

強相関電子系の巨大高速光学応答

— 動的密度行列繰り込み群法による理論的研究 —

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 松枝宏明

はじめに

強相関電子系では強いクーロン斥力やスピン・電荷・軌道・格子自由度の絡み合いの結果として、バンド絶縁体や半導体とは質的に異なった巨大或いは高速な光学応答が観測される。またこれらの光学応答に関連した光誘起相転移現象も見出されている。背景として二つの重要なポイントが挙げられる：(1)モット絶縁体のようにクーロン斥力で光学ギャップが開く場合、光励起状態の性質がバンド絶縁体と本質的に異なる事、(2)強相関電子系では電磁氣的・光学的性質の全く異なった相が拮抗しており、相境界では僅かの摂動によってそのバランスを崩して物性を劇的に変化させることができる事である。(1)及び(2)に伴う巨大高速光学応答に強相関電子系の素励起が深く関わっている。

本講演では我々のグループが(1)及び素励起のダイナミクスに関して行った研究成果を解説する[1-7]。加えて(2)に関する今後の方向性について簡潔に述べる。また動的密度行列繰り込み群法概念と最近の動向にも触れる。

密度行列繰り込み群法による励起状態の計算

巨大高速光学応答の背景を明らかにするためには系の励起状態の情報が必要である。この目的のために、密度行列繰り込み群(Density Matrix Renormalization Group, DMRG)法を応用する。標準的な DMRG 法は励起ギャップのある一次元量子系の基底状態を高精度且つ大規模に計算する最適な方法である[8]。DMRG 法で最も重要な量は密度行列である。密度行列の固有値は対応する固有状態の出現確率を与えるため、確率の高い少数の状態のみでハミルトニアンを基底を表現することが可能である。基底状態に対する DMRG 法では密度行列は基底状態の波動関数のみから定義される。一方、励起状態を計算するためには密度行列の概念を拡張し、励起状態を含んだ混合状態の密度行列を導入すればよい(Dynamical DMRG, DDMRG)[9-11]。DDMRG 法をもとにして一粒子励起スペクトルや光学吸収スペクトルが計算されている。対角化可能な有限サイズクラスターに対して、計算結果は数値的に厳密であることが示されている。また厳密対角化で扱える 10 倍程度までのクラスターを扱うことができ、系統的なサイズスケールリングが可能である。

一次元モット絶縁体の光学応答

モット絶縁体の中で一次元構造を有する銅酸化物 SrCuO_2 , Sr_2CuO_3 やハロゲン架橋 Ni 錯体は巨大高速光学応答を示すモデル物質である。これらの系では三次の光学非線形感受率が非常に大きい[12]。また光励起後 100fs 以内に過渡吸収スペクトルにおいて金属的なドルー

デ重みの成長が観測されている[13]。更にその過渡的金属状態が 1.2ps で超高速に緩和することも観測されている[14]。これらの特徴により、ある光で他の光をコントロールする新しいタイプの超高速スイッチングが可能であることが認識されている。これらの特徴のうち巨大非線形光学効果に関する研究を紹介する[6,7]。三次の光学非線形感受率はパリティの異なる光励起状態間の遷移双極子モーメントの二乗で特徴づけられる。パリティの異なる光励起状態はバンド絶縁体では大きく離れているのに対し、一次元モット絶縁体ではほぼ縮退している。その縮退が大きな非線形応答を生み出していると考えられる[15]。本研究では縮退と励起子効果の関連、及び現実の物質との対応について解析を行った。その目的のために、隣接クーロン斥力 V を取り入れた Hubbard 模型及び d-p 模型を用いた。光励起状態では V に起因して励起子が形成される。特に $V > 2t$ (t は電子の遷移積分) の場合には励起子が束縛する。この場合にパリティの異なる光励起状態の縮退が解けることが分かった。また縮退の解けた光励起状態のエネルギー差が $t^2/(U-V)$ (U はオンサイトのクーロン斥力) 程度であることが分かった。以上より大きな非線形感受率を実現するには励起子の束縛が強くないことが必要である。これは銅酸化物の光学応答をよく説明する。銅酸化物よりも非線形感受率の大きなハロゲン架橋 Ni 錯体では非常に鋭い吸収スペクトルが観測されている。本研究では励起子の束縛が起こる境界付近 ($V=2t \sim 3t$) で吸収が最大となることが示されている。これはハロゲン架橋 Ni 錯体の非線形応答と吸収スペクトルの双方の特徴を説明する。

一次元モット絶縁体の素励起とそのダイナミクス

前節で述べた一次元モット絶縁体の光学応答においては、一次元系の特徴であるスピン・電荷分離とそれに伴う電荷励起(ホロン・ダブロン)が重要な役割を果たしている[15]。スピン・電荷分離した系においては、一電子励起スペクトルもスピン・電荷励起(スピノン・ホロン)の情報を含んでいる。一電子励起スペクトルは角度分解光電子分光 (Angle-Resolved Photo-Emission Spectroscopy, ARPES) で直接測定され、実際に準粒子ピークが 2 ピーク構造に分離する[16,17]。その構造は 100K の温度変化に対して 1eV のスケールで影響を受け、また電子格子相互作用にも強く影響される。本研究では一電子励起スペクトルに対する有限温度及びフォノン効果を調べた[1-5]。その目的のために、Hubbard 及び Hubbard-Holstein 模型に対して DDMRG 及び量子モンテカルロ法を適用した。温度効果の研究では、有効的な交換相互作用の大きさよりも温度を下げた場合にスピノン・ホロン励起が分離することが分かった。特にスピノン励起に対応する構造は反強磁性相関が発達することにより現れることが分かった。これらの結果は $\text{Na}_{0.96}\text{V}_2\text{O}_5$ に対する ARPES の温度変化を説明する[16]。一方量子力学的にフォノン効果を扱った計算では、ホロン励起が大きな影響を受けることが分かった。更に強い電子格子相互作用の下ではスピノン励起も影響を受けることが分かった。フォノンはスピノン・ホロン双方に影響を与えるが、これもスピン・電荷分離の描像から理解できることをベータ仮説法の観点から示した。これらの結果は SrCuO_2 に対する ARPES を説明する[17]。

強相関電子系における高速光学応答及び光誘起相転移のダイナミクスの理解に向けて

高速光学応答や光誘起相転移の機構は未解明な部分が多く、今後研究の進展が望まれる([18]及びその文献参照の事)。これらの問題では、強相関電子系の時間発展及び非平衡緩和機構を理解することが焦点となる。前者に関してはこれまで有効な解析手法が確立されていなかった。しかしながら時間依存 DMRG 法により強相関電子系の時間発展が正確に取り扱えるようになりつつある[19,20]。後者に関しては光励起状態がスピン波や軌道波、或いはフォノンを放出する強相関電子系特有の緩和機構が働くと考えられる。例えば一次元モット絶縁体ではスピン波のエネルギーを特徴付ける交換相互作用の大きさが 0.2eV 以上であり、少数のスピン波を放出することで基底状態まで高速に緩和すると推測されている。しかしながらスピン・電荷分離とスピン波放出による緩和機構は相容れない。非平衡緩和過程における素励起の役割を解明することがポイントになると考えられる。

本研究の一部は NAREGI 及び CREST の支援のもとに行われました。本研究は、遠山貴己、前川禎通、Nejat Bulut、石原純夫の各氏との共同研究です。また日頃よりご議論頂いている岩井伸一郎、柴田尚和、横山寿敏の各氏に感謝いたします。

- [1] H. Matuseda, T. Tohyama, and S. Maekawa, proceedings of ICM2006, to be published in J. Magn. Magn. Mater..
- [2] H. Matsueda, N. Bulut, T. Tohyama and S. Maekawa, AIP Conference Proceedings 816, 66–77 (2006).
- [3] N. Bulut, H. Matsueda, T. Tohyama, and S. Maekawa, cond-mat/0603098.
- [4] H. Matsueda, T. Tohyama and S. Maekawa, cond-mat/0511068.
- [5] H. Matsueda, N. Bulut, T. Tohyama, and S. Maekawa, Phys. Rev. B72, 075136 (2005).
- [6] H. Matsueda, T. Tohyama, and S. Maekawa, Phys. Rev. B71, 153106 (2005).
- [7] H. Matsueda, T. Tohyama, and S. Maekawa, Phys. Rev. B70, 033102 (2004).
- [8] S. R. White, Phys. Rev. Lett. 69, 2863 (1992); Phys. Rev. B48, 10345 (1993).
- [9] K. A. Hallberg, Phys. Rev. B52, R9827 (1995).
- [10] T. D. Kühner and S. R. White, Phys. Rev. B60, 335 (1999).
- [11] E. Jeckelmann, Phys. Rev. B66, 045114 (2002).
- [12] H. Kishida *et al.*, Nature (London) 405, 929 (2000); Phys. Rev. Lett. 87, 177401 (2001).
- [13] S. Iwai *et al.*, Phys. Rev. Lett. 91, 057401 (2003).
- [14] T. Ogasawara *et al.*, Phys. Rev. Lett. 85, 2204 (2000).
- [15] Y. Mizuno, K. Tsutsui, T. Tohyama, and S. Maekawa, Phys. Rev. B62, R4769 (2000).
- [16] K. Kobayashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 82, 803 (1999).
- [17] C. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. 77, 4054 (1996); B. J. Kim *et al.*, to be published in Nature Physics.
- [18] *Photo-Induced Phase Transition and their Dynamics*, J. Phys. Soc. Jpn. 75, 011001–011008 (2006).
- [19] S. R. White and A. E. Feiguin, Phys. Rev. Lett. 93, 076401 (2004).
- [20] A. E. Feiguin and S. R. White, Phys. Rev. B72, 020404(R) (2005).