

柚木計算物性物理研究室

Computational Condensed Matter Physics Laboratory

准主任研究員 柚木 清司 (工博)

YUNOKI, Seiji (D. Eng)

キーセンテンス：

1. 数値シミュレーションによる固体物質の電子状態理論
2. 量子多体系の基底状態および低エネルギー励起
3. 新しい計算物理的手法の開発

キーワード：

計算物性物理、理論物性物理、計算物理学的手法開発、量子多体系、遷移金属酸化物、ナノ物質科学、生物物質科学、酸化物ヘテロ接合体、界面・表面電子状態、スピントロニクス、物質設計、強相関電子系

研究概要

当研究室では、物質中で起こる多彩な量子現象を、電子状態をもとに理論的に解明するために、様々な数値計算シミュレーションを行っている。特に、我々は、遷移金属酸化物や低次元有機物質などの電子間クーロン相互作用の強い系（強相関電子系）を中心として、そこで現れる新奇な電子状態、集団現象として起こる量子多体現象、および量子輸送現象に興味を持っている。

主な研究対象の一つが **5d** 遷移金属酸化物の電子状態である。**5d** 軌道は、典型的な強相関電子系の舞台である **3d** あるいは **4d** 軌道に比べて、空間的に広がっており、電子間クーロン斥力と電子の運動エネルギーが同程度のスケールとなる。同時に、周りの酸素イオンからのクーロン力の影響を強く受けるため、結晶場効果も **3d** あるいは **4d** 遷移金属酸化物に比べてはるかに大きい。さらに、**5d** 遷移元素は **0.5-1.0eV** 程度の非常に大きなスピン軌道相互作用を持つ。つまり、**5d** 遷移金属酸化物では複数の重要なエネルギースケールが同程度であり、それらの競合・協力から様々なユニークな物性が引き起こされる。我々は、このような **5d** 遷移金属酸化物の多様な物性を理論的に解明し、**5d** 電子相の基礎学理構築を目指している。

また、当研究室では、量子多体効果を正しく理解するために、既存の数値計算手法を用いた様々なシミュレーションを用いるだけでなく、量子多体系一般に対する新しい計算物理学的手法開発にも積極的に取り組んでいる。特に、本年度、我々は密度行列繰り込み群法を用いて磁性不純物模型を解くための一般的な数値計算手法を提案した。また、従来の動的平均場理論（DMFT）を非一様な系を取り扱えるように拡張した **inhomogeneous DMFT (IDMFT)** を開発し、**2次元**または**3次元系**における非整合秩序や不純物問題に適用した。

以下に今年度の具体的な研究成果を記す。

1. 動的平均場理論と連続時間量子モンテカルロ法を用いた 5d 電子系物質の有限温度下での電子状態の解析 (担当研究者: 佐藤、白川、柚木)

近年、5d 遷移金属イリジウム酸化物において多くの新奇な物性が報告され、注目を集めている。中でも、強いスピン軌道相互作用によって誘起される「有効全角運動量」 $j_{\text{eff}}=1+s$ を良い量子数とした特異な状態は、多軌道強相関電子系の新たな舞台として期待されている。我々は、理論的にまだ不明な点が多い j_{eff} 状態の詳細を調べるため、スピン軌道相互作用を取り入れて 3 軌道ハバード模型を構築し、動的平均場理論と連続時間量子モンテカルロ法を用いた解析を行った。量子モンテカルロ法ではその定式化上、負符号問題と呼ばれる計算精度を著しく低下させる問題が存在する。本研究では独自の改良法によって負符号問題を軽減し、フント結合やペアホッピングを取り入れた低温・強相関領域での計算を可能にした。

まずは J_{eff} 基底を用いることで負符号問題が大幅に軽減されることを示し、計算手法の妥当性を確認した。次にクーロン相互作用 U とスピン軌道相互作用 λ をパラメータとして変化させ、これらの働きを系統的に調べた。その結果、 λ が大きい時にはイリジウム酸化物で見られる $j_{\text{eff}}=1/2$ 反強磁性絶縁体が安定化する一方、 λ が小さく U が大きい領域では $j_{\text{eff}}=1/2$ と $3/2$ のバンド間の電子・ホール対に起因する励起子絶縁体が現れることを示した (図 1)。このような特異な状態が現れるのは、クーロン相互作用とスピン軌道相互作用が同程度の大きさを有し、スピンと軌道が複雑に絡み合った状況が実現しているからに他ならない。本研究により、強いスピン軌道相互作用下での多軌道強相関電子系の理解が大きく進展することが期待される。

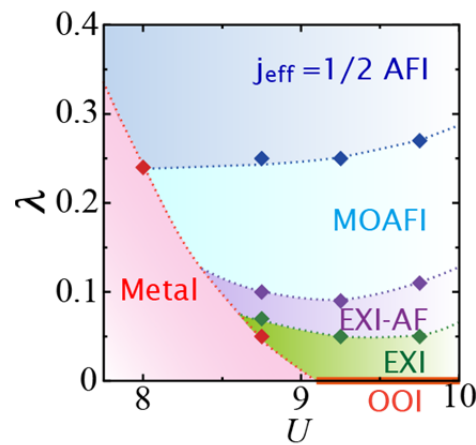


図 1: 3 軌道ハバード模型の基底状態相図。Metal, $j_{\text{eff}}=1/2$ AFI, MOAFI, EXI-AF, EXI, OOI はそれぞれ金属相、 $j_{\text{eff}}=1/2$ 反強磁性絶縁体相、多軌道反強磁性絶縁体相、反強磁性を伴うエキシトン絶縁体相、エキシトン絶縁体相、および、軌道秩序絶縁体相を示す。

2. 密度行列繰り込み群法を用いた不純物模型ソルバーの開発とその応用 (担当研究者: 白川、柚木)

密度行列繰り込み群法は擬 1 次元系に対して良い精度を与えるが、高次元系や一般の有効不純物問題を解く事には向いていなかった。そこで、我々は、任意の磁性不純物模型を、ブロックランチョス法を用いて基底の変換を行うことで準 1 次元系へとマップし、これを密度行列繰り込み群法で解くという方法 (ブ

ブロックランチョス密度行列繰り込み群法、BL-DMRG)を開発した。この方法の開発により、多軌道不純物模型や、磁性不純物と伝導電子間の相関などが高精度に調べる事ができるようになった。(図 2(a), (b))

そこで、本年度はこの方法をグラフェン上の不純物問題へ応用した。特に、(i) 磁性不純物がグラフェンの炭素サイトの上に吸着した場合の模型(吸着型模型)と、(ii) 一つの炭素サイトが磁性不純物で置き換えられた模型(置換型模型)、および (iii) 炭素格子欠陥の有効模型(格子欠陥模型)について、動的帯磁率と局所状態密度を調べた結果、吸着型模型では磁性不純物が周りの伝導電子の遮蔽されずに残る事、および、置換型模型と格子欠陥模型では遮蔽されて一重項状態を形成することがわかった。さらに、これらの模型における磁性不純物と伝導電子間のスピン相関についても調べた。その結果、吸着型模型では距離の3乗に比例して減衰する事、また、置換型模型と格子欠陥模型では距離の4乗に比例して減衰する事がわかった。

我々の開発したブロックランチョス密度行列繰り込み群法は、強電子系物質のための第一原理計算手法として有効とされている多軌道動的平均場計算を高精度に行う手法としても有用であり、今後の応用が大いに期待できる。

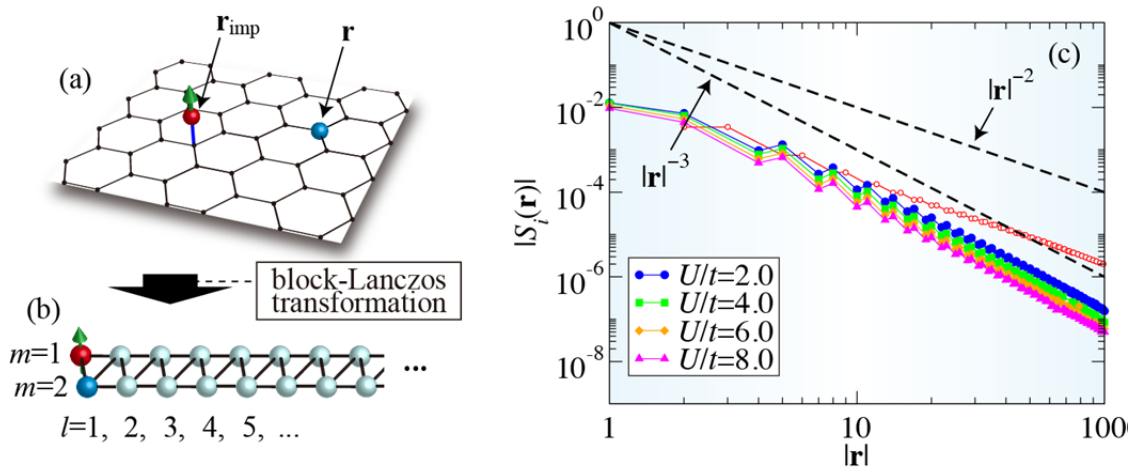


図 2 : (a), (b) ブロックランチョス密度行列繰り込み群法。磁性不純物サイト \mathbf{r}_{imp} と、ある伝導電子サイト \mathbf{r} を初期ベクトルとして、ブロックランチョス変換することで、有効梯子が得られる。(c) グラフェン上の吸着型磁性不純物と伝導電子間のスピン相関の距離依存性。

3. 非一様動的平均場近似による非整合スピン密度波の解析 (担当研究者 : Peters)

ハバード模型は強相関電子系を記述するモデルとして広く用いられ、モット絶縁体、反強磁性秩序、超伝導といった多くの現象を説明するのに成功してきた。ただし、格子の周期と整合しない非整合スピン密度波 (SDW) 状態に関してはその記述が難しく、解決すべき課題の一つとなっている。我々は強相関電子系の解析に有効な動的平均場理論 (DMFT) を、非一様状態を取り扱えるように拡張した inhomogeneous DMFT (IDMFT) という計算手法を開発し、二次元正方格子ハバード模型に適用した。図 3(a)はクーロン相互作用 U/t と電子密度 n をパラメータとした基底状態にお

る相図であるが、空間的に一様な反強磁性相 (homogeneous AF) は $n=1$ 付近のごく狭い領域に限られ、 U/t の増大に伴って縦型の SDW 相 (vertical Spin-Density-Waves) が安定化することが分かった (斜線で示してあるのは縦型と対角型の SDW 相が競合し、計算が困難な領域である)。また、IDMFT を用いて運動量空間におけるスペクトル関数を計算した結果、局所的なゆらぎの効果を正しく取り扱った事によって、単純な一体近似では記述できないような、複雑なスペクトルの形状を得ることが出来た (図 3(b))。本研究で開発した計算手法は、SDW 以外の非整合秩序にも適用し得る汎用性の広いものであり、今後の強相関電子系理論の発展に大きく貢献出来ると期待される。

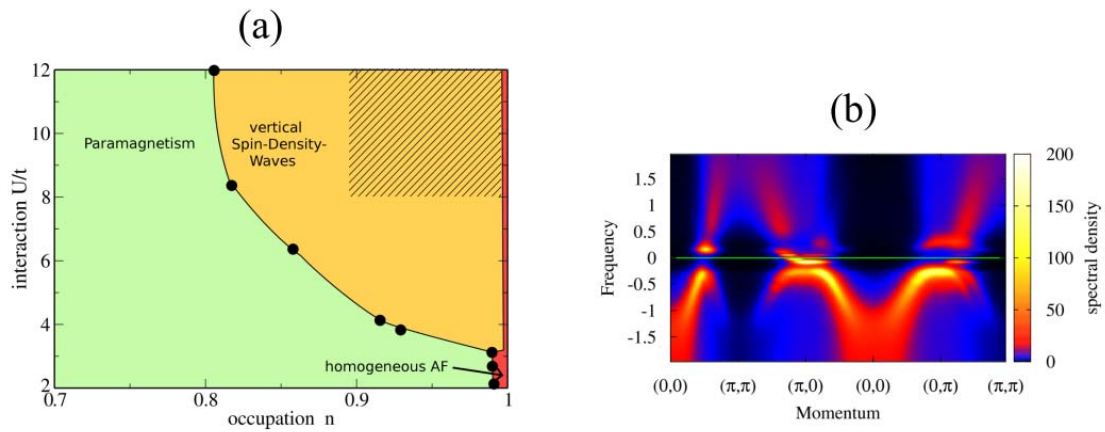


図 3 : (a) 二次元正方格子ハバード模型の基底状態相図。(b) $U/t=8$ 、 $n=0.95$ におけるスペクトル関数

Key Sentence:

1. Numerical simulations for electronic structures of solid state materials
2. Ground state and low-lying excitations of quantum many-body systems
3. Development of new numerical methods

Key Word:

computational condensed matter physics, theoretical condensed matter physics, new numerical methods, quantum many body system, transition metal oxides, nano materials science, biomaterials science, oxide hetero junction, surface, interface electronic structure, spintronics, materials design, strongly correlated electronic systems

Outline

Our aim is to theoretically understand various novel quantum phases and phenomena in a wide range of materials by microscopically studying electronic structures. Our main interests include strongly interacting electronic systems such as different kinds of transition metal oxides (cuprates, manganites, etc.) and low-dimensional organic compounds, where novel ground states, low-lying collective quantum excitations, and quantum transport properties are studied using various state-of-the-art numerical methods.

In this fiscal year, we have focused on a theoretical study of the electronic states of 5d transition metal oxides. Physical properties of 5d transition metal oxides are determined by the behavior of 5d electrons in the 5d transition elements. The electronic wave function of 5d atomic orbital in 5d transition metal is rather extended compared to those in 3d and 4d transition metals. Thereby, the Coulomb interaction between electrons and the electronic kinetic energy are in a similar order in energy. At the same time, because of the wider extension of wave function, 5d electrons are affected by larger crystalline field effect due to the surrounding oxygen. Moreover, 5d transition elements have a large relativistic spin-orbit interaction, which is as large as 0.5-1.0 eV, even larger than f electron systems. Therefore, in 5d transition metal oxides, all the relevant energy scales are approximately the same, which induces a variety of unique features. Our main purpose of this project is to theoretically understand those properties of 5d transition metal oxides, and to reveal the fundamental principles of 5d electron systems.

We are also devoted to develop new numerical methods for quantum many-body systems in general. In this fiscal year, we have introduced a block Lanczos recursive technique, which constructs quasi-one-dimensional (Q1D) models, suitable for DMRG calculations, from single- as well as multiple-impurity Anderson models in any spatial dimensions. Besides, we have also developed an inhomogeneous dynamical mean-field theory (IDMFT) which can treat the inhomogeneous state such

as incommensurate orders and impurity problems in two- or three-dimensional system.

Followings are details of our research achievements in this fiscal year.

1. A dynamical mean-field theory and continuous-time quantum Monte Carlo method study for a 5d electron system in finite temperature (Researchers: Sato, Shirakawa, Yunoki)

Recently, 5d transition metal iridium oxides have attracted much interest due to their novel characters. Especially, the state with effective total angular momentum $j_{\text{eff}}=1+s$, which is induced by a large spin-orbit interaction, is expected to be a novel playground of multiorbital strongly-correlated electron system. To clarify the detailed property of j_{eff} state, we have studied the three-orbital Hubbard model with a spin-orbit interaction using the dynamical mean-field theory and continuous-time quantum Monte Carlo method (DMFT+CTQMC). In the quantum Monte Carlo method, there is inherently a “sign problem” which hinders the accuracy of the calculation and it is one of the most severe problems in this method. We have succeeded in reducing the sign problem with the improved method and made it possible to calculate in low-temperature and strongly correlated region with Hund’s coupling and pair hopping terms.

First, we have confirmed that the sign problem is greatly reduced by using the j_{eff} basis and the calculation method is successfully improved. Next, we have systematically studied the role of the Coulomb interaction U and spin-orbit interaction λ . It is shown that the $j_{\text{eff}}=1/2$ antiferromagnetic insulator is stabilized for large λ , while the excitonic insulator originated from the electron-hole pair in $j_{\text{eff}}=1/2$ and $3/2$ bands is stabilized for small λ and large U (Fig. 1). The reason why such unconventional states appear is that the Coulomb interaction and spin-orbit interaction have the same order of magnitude and thus the spin and orbital degrees of freedom are entangled with each other. Our results will contribute the deeper understanding of the multiorbital system with a large spin-orbit interaction.

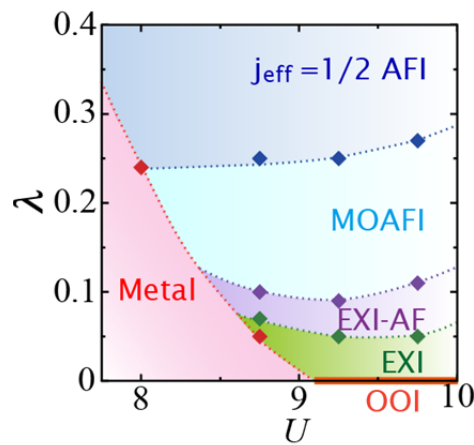


Fig 1: Ground state phase diagram for three-orbital Hubbard model. (MO)AFI, EXI,

OOI stand for (multi-orbital) antiferromagnetic insulating, excitonic insulating, and orbital-ordered insulating phases, respectively.

2. Development of impurity solver using density-matrix renormalization group method and its applications (Researchers: Shirakawa, Yunoki)

While the density-matrix renormalization group method (DMRG) is a powerful tool to study quasi-one-dimensional systems, the application of DMRG encounters difficulties in calculating the systems in higher dimensions. We have developed a technique to construct a suitable quasi-one-dimensional form of a general Anderson impurity model based on the block-Lanczos basis transformation, namely, BL-DMRG method. This method allows us to calculate not only multi-orbital impurity models but also the spatially dependent quantities, such as spin-spin correlation function between the impurity site and the conduction site, in any spatial dimensions.

We have applied this method to the impurity problems on graphene. These models include (i) a single adatom on graphene (adatom model), (ii) a substitutional impurity in graphene (substitutional impurity model), and (iii) an effective model for a single carbon vacancy in graphene (vacancy model). Our analysis of the local dynamical magnetic susceptibility and the local density of states at the impurity site reveals that, the ground state of adatom model behaves as an isolated magnetic impurity with no Kondo screening, while the ground state of the other two models forms a spin-singlet state where the impurity moment is screened by the conduction electrons. Furthermore, we have also studied the spin-spin correlation function between the impurity site and the conduction sites for these models. Our results clearly show that, the spin-spin correlation function decay as r^{-3} for model (i) and r^{-4} for models (ii) and (iii).

The BL-DMRG method has potential as a promising impurity solver of the dynamical mean-field theory for realistic electronic structure calculations of strongly correlated materials. Research along this line is now in progress.

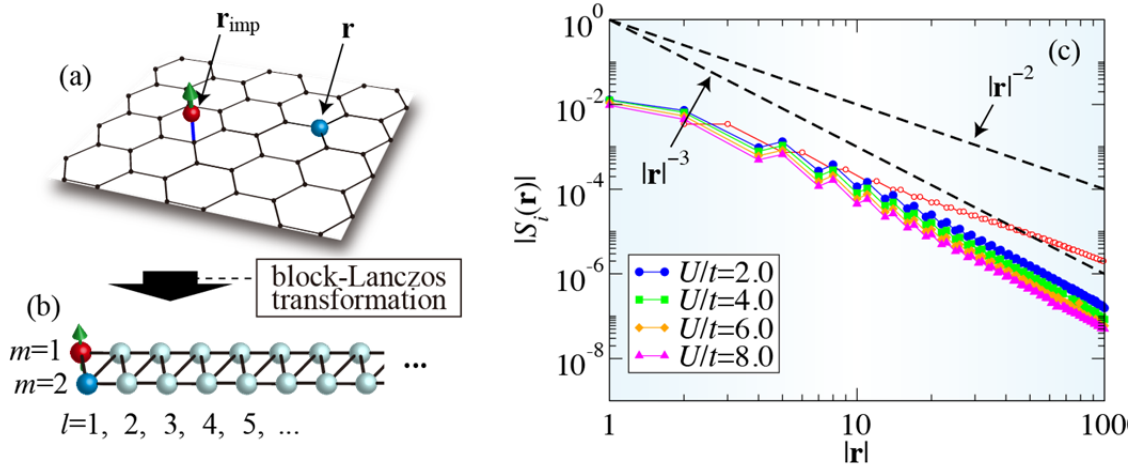


FIG. 2: (a), (b) BL-DMRG method. A quasi-one-dimensional model can be obtained by using the block-Lanczos transformation starting from an impurity site \mathbf{r}_{imp} and a conduction site r as initial bases. (c) Distance dependence of spin correlation between the conduction electrons and the magnetic impurity absorbed on the graphene.

3. Analysis of incommensurate spin-density wave by inhomogeneous dynamical mean-field theory

(Researcher: Peters)

Hubbard model has been widely used as a model for strongly correlated electron systems and succeeded in explaining various quantum phenomena such as a Mott insulator, antiferromagnetic (AF) ordering, and superconductivity. However, an incommensurate spin-density wave (SDW) is difficult to describe and it is one of the important issues in this field. We have developed an inhomogeneous dynamical mean-field theory (IDMFT), which is an extension of usual DMFT, and applied it to a Hubbard model in a two-dimensional square lattice. Figure 3(a) shows the ground state phase diagram in U/t (Coulomb interaction) – n (electron density) plane. We have found that a homogeneous AF phase is limited to a narrow region near $n=1$ and a vertical SDW phase is widely stabilized especially for large U/t (in the shaded region, the vertical and diagonal SDW compete with each other and difficult to calculate). We have also calculated the momentum-resolved spectral function in vertical SDW phase and obtained a dynamical spectral shape, which cannot be described by the static mean-field approximations, due to the effect of local fluctuations (Fig. 3(b)). Our method can be widely used for other incommensurate orders and will be expected to contribute the development of the theory of strongly correlated electron systems.

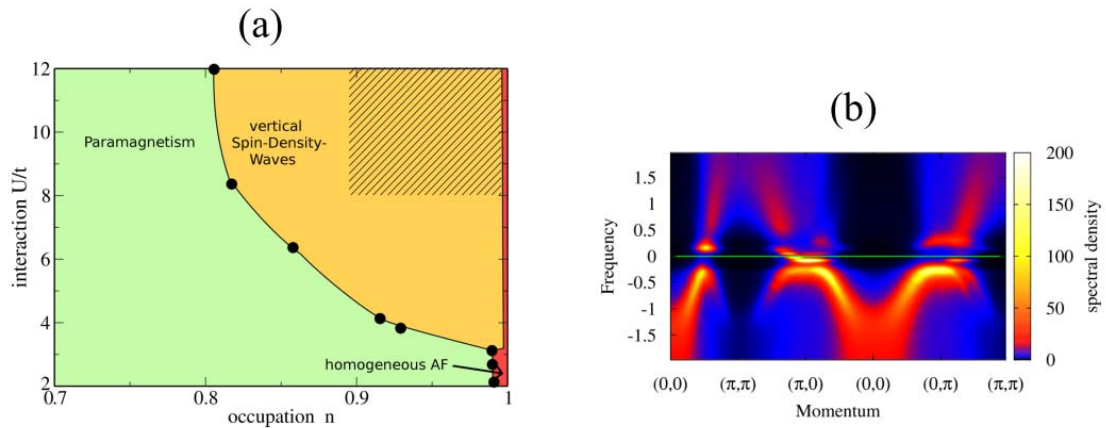


Fig. 3: (a) Ground state phase diagram of a Hubbard model in a two-dimensional square lattice. (b) Spectral function for $U/t=8$, $n=0.95$.

Principal Investigator

柚木 清司 Seiji Yunoki

Research Staff

白川 知功 Tomonori Shirakawa

挽野 真一 Shin-ichi Hikino

佐藤 年裕 Toshihiro Sato

関 和弘 Kazuhiro Seki

西口 和孝 Kazutaka Nishiguchi

榑原 寛文 Hirofumi Sakakibara

新城 一矢 Shinjo Kazuya

Subhra Sen Gupta

Kalpataru Pradhan

Wei Fan

James Anderson

Robert Peters

Xie Qing

Sun Yan

Assistant and Part-timer

網代 雅代 Masayo Ajiro

Visiting Members

Sandro Sorella

Tao Li

Andrivo Rusydi

Shuai Dong

Xingqiu Chen

Qinfang Zhang