

# 多軌道強相関電子系における 光誘起ダイナミクス

---

前島展也 (筑波大 数理物質科学研究科、CCS研究員・量子多体分野)

日野健一 (筑波大 数理物質科学研究科、CCS学内共同研究員・量子多体分野)

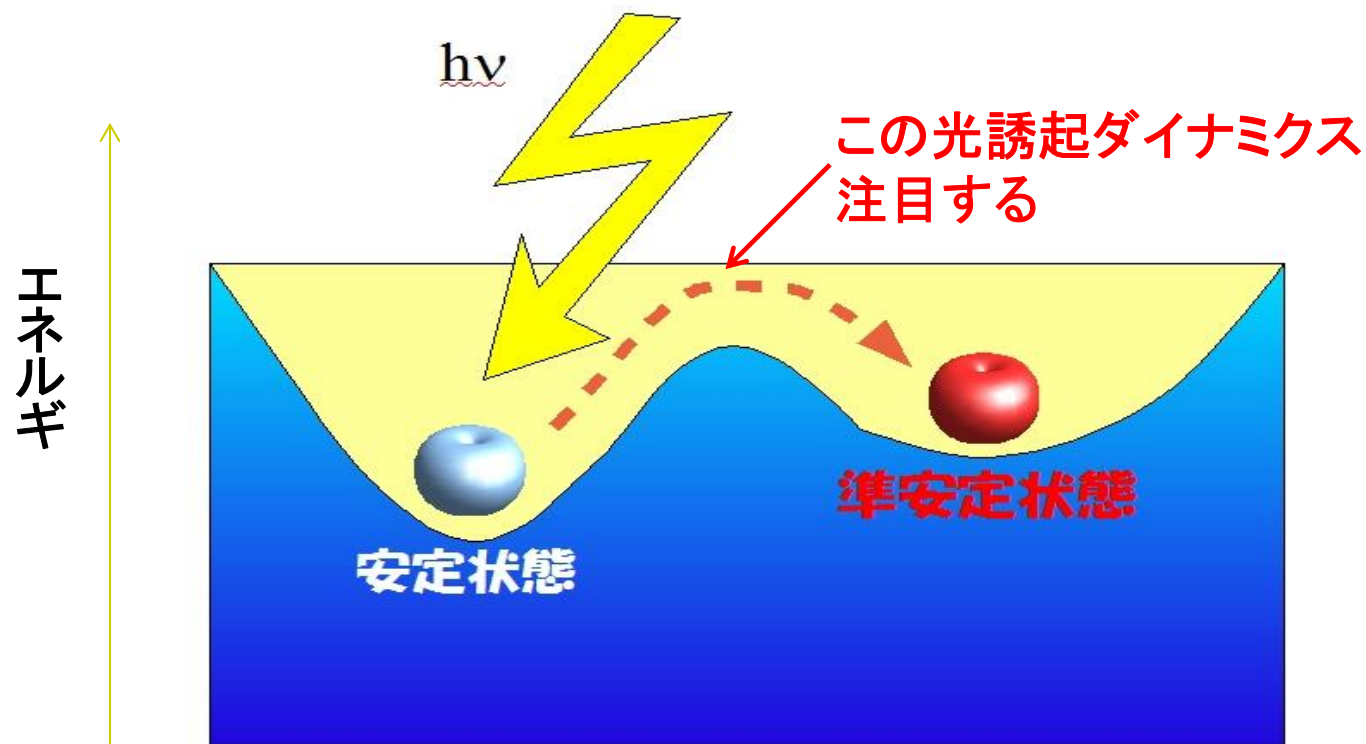
第5回「計算科学による新たな知の発見・統合・創出」シンポジウム

2009年5月14日- 15日

筑波大学計算科学研究センター

# 光誘起相転移現象

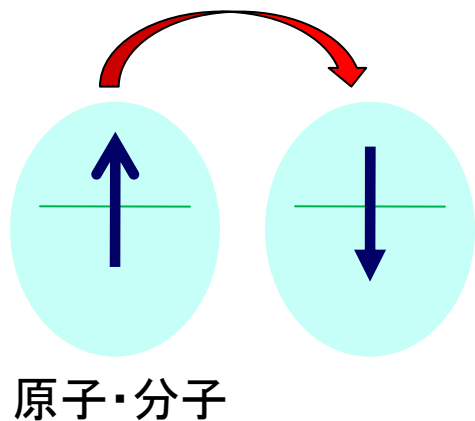
光を当てることで、物質の状態を変化させる



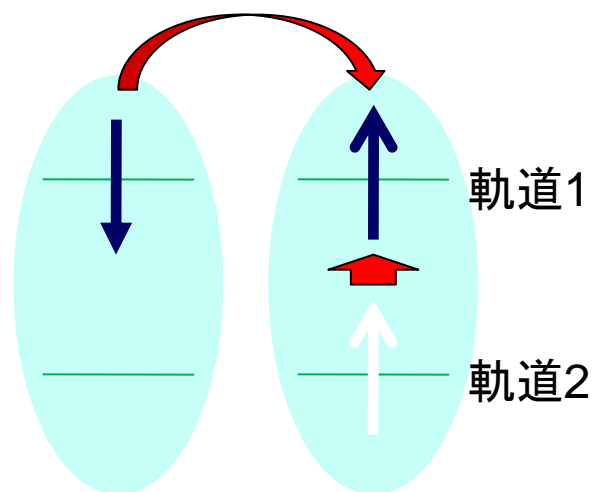
物質の状態(磁性、格子ひずみなど)

# 単一軌道系と多軌道系

単一軌道系



多軌道系



単一軌道系から多軌道系へ

問題の複雑化・計算の大規模化

# LaVO<sub>3</sub>における光誘起現象

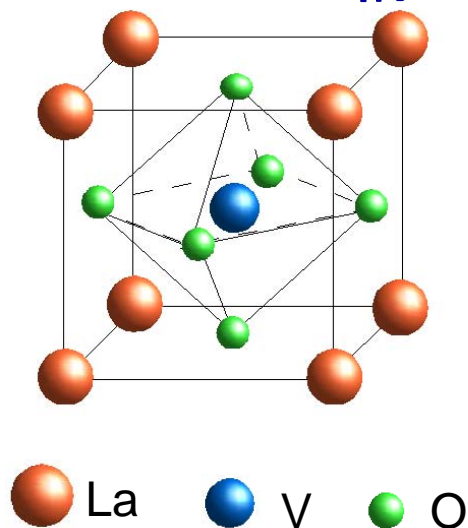
---

# LaVO<sub>3</sub>

## 基礎物性

- モット絶縁体  
光学ギャップ~

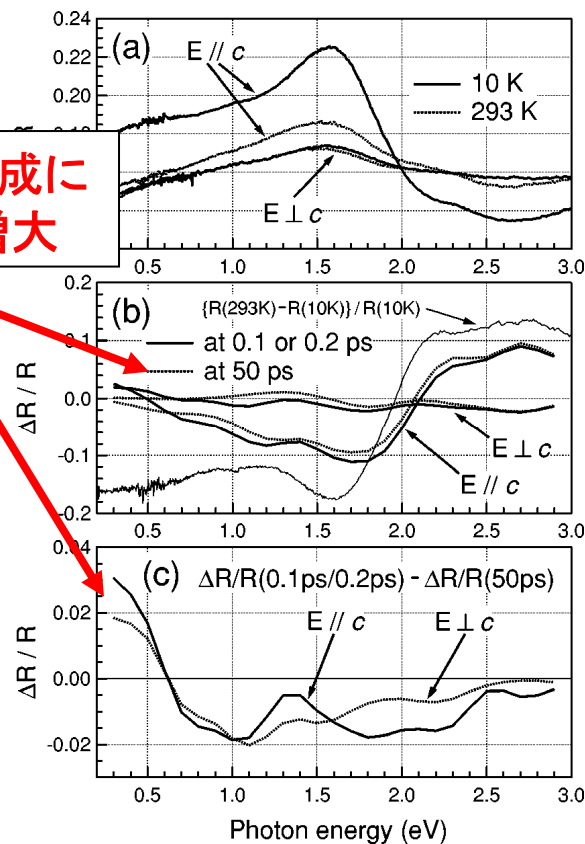
- ペロブスカイト構



- 軌道縮退

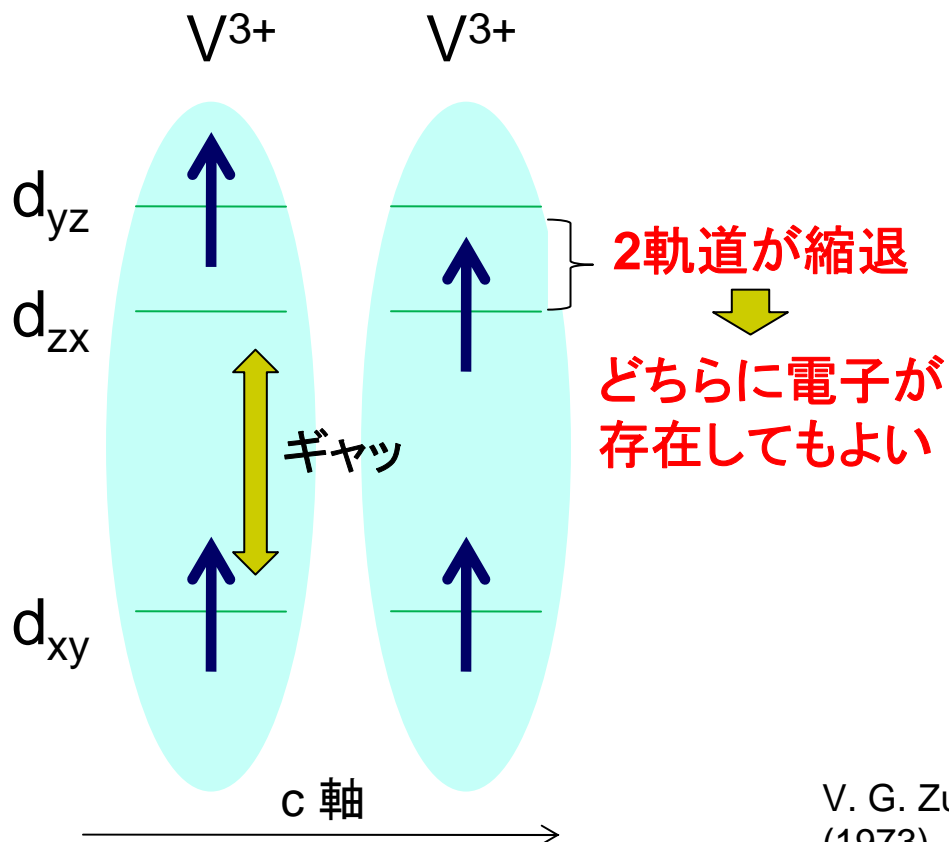
## 光誘起現象

光キャリア生成による反射率増大



# LaVO<sub>3</sub>における軌道縮退

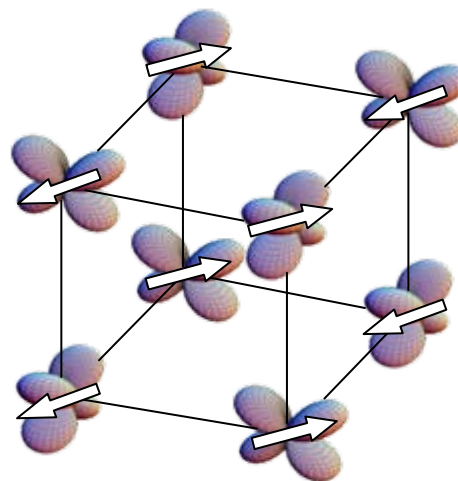
## 電子状態



- スピン
- 軌道



それぞれ  
秩序化



スピン: C型AF( $T_N = 143\text{K}$ )  
軌道: G型AF( $T_O = 141\text{K}$ )

# ハミルトニアン

## 2バンド 軌道縮退ハバード模型

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_t + \mathcal{H}_U + \mathcal{H}_J$$

$$\mathcal{H}_t = - \sum_{\langle ij \rangle} \sum_{m=1,2} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} t_{ij}^m (c_{im\sigma}^\dagger c_{jm\sigma} + c_{jm\sigma}^\dagger c_{im\sigma})$$

$$\mathcal{H}_U = U \sum_{im} n_{im\uparrow} n_{im\downarrow} + U' \sum_i n_{i1} n_{i2}$$

$$\mathcal{H}_J = -J \sum_i n_{i1\uparrow} n_{i2\uparrow} + J \sum_i (c_{i1\uparrow}^\dagger c_{i2\uparrow} c_{i2\downarrow}^\dagger c_{i1\downarrow} + H.c) \\ + J' \sum_i (c_{i1\uparrow}^\dagger c_{i1\downarrow}^\dagger c_{i2\downarrow} c_{i2\uparrow} + H.c)$$

数値対角化(Lanczos法)による解析

# 光学伝導度

## 定義

- $\text{Re}[\sigma(\omega)] \equiv -\frac{1}{N\omega} \text{Im} \left[ \langle \psi_0 | \hat{j} \frac{1}{\omega + i\epsilon + E_0 - \mathcal{H}} \hat{j} | \psi_0 \rangle \right]$

## 数値計算

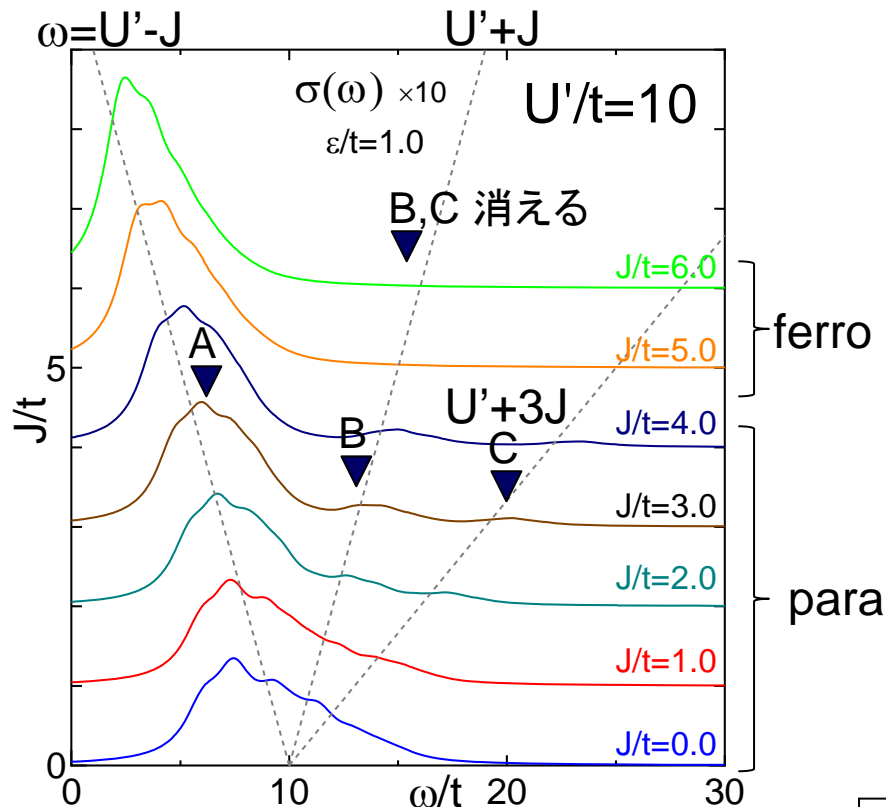
$$\text{Re}[\sigma(\omega)] = \frac{1}{N\omega} \sum_n |\langle \psi_n | \hat{j} | \psi_0 \rangle|^2 \frac{1}{(\omega - E_n + E_0)^2 + \epsilon^2}$$

行列要素  $\langle \psi_n | \hat{j} | \psi_0 \rangle$  エネルギー  $E_n$   
をLanczos法で計算

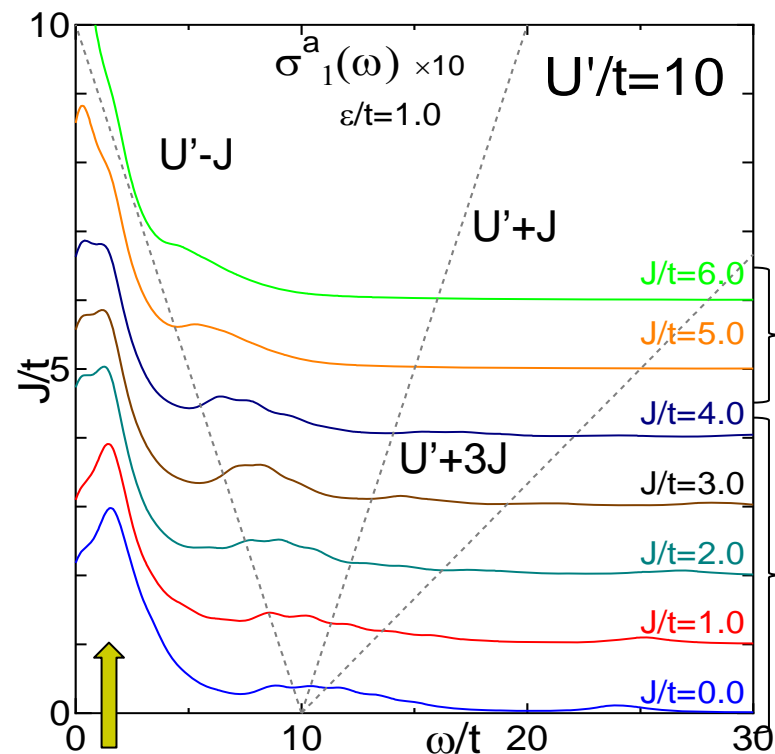


# 1次元系(光学伝導度)

## 基底状態



## 光励起状態



光キャリアによるDrude precursor

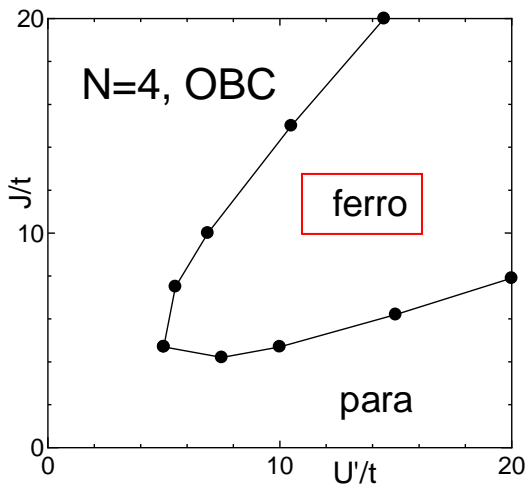
# LaVO<sub>3</sub>との比較

U/t~10, J/t~1 のオーダー

(t=0.1~0.2eV, U=2~5eV, J=0.1~0.7eV)

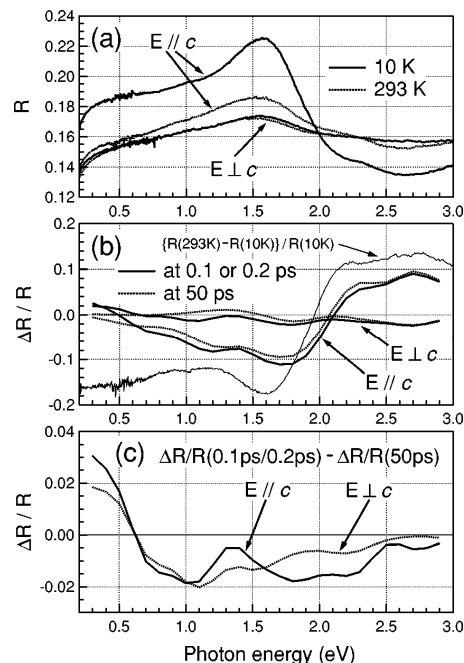
Spin: C型AF (c軸方向には)

## 1次元系U'-J相図



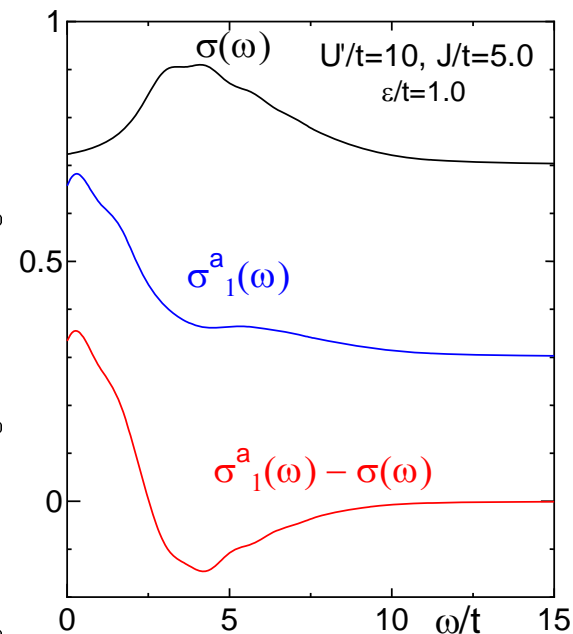
ひとまずferro相と比較

## 実験



低エネルギー領域の増大  
光学ギャップより上の成分の減

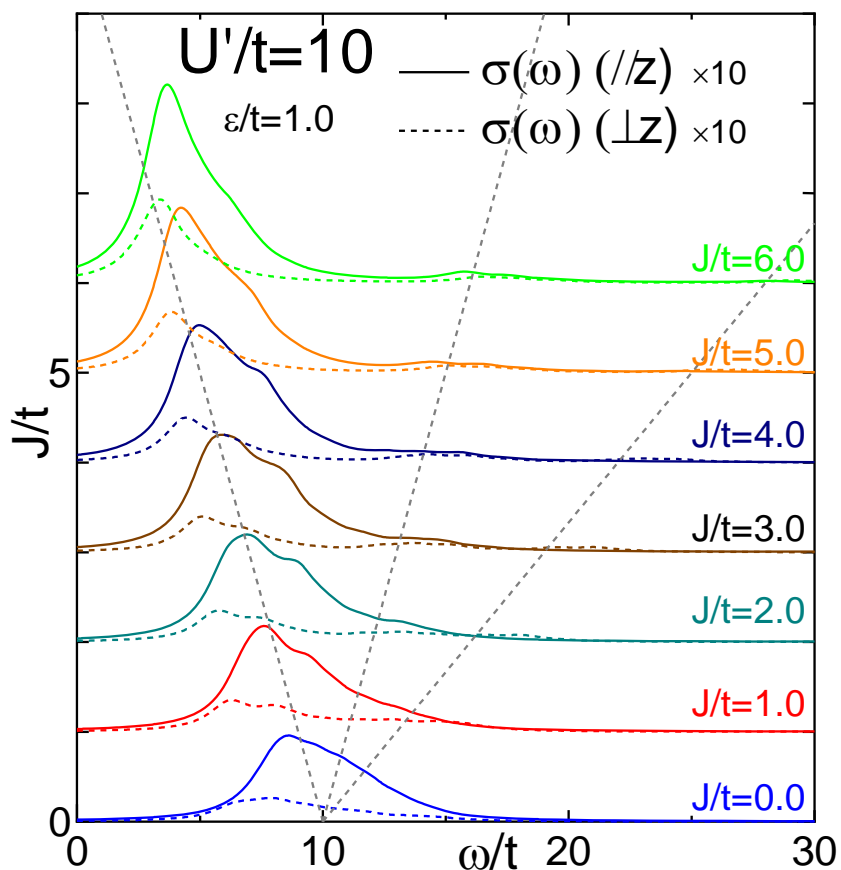
## 理論



再

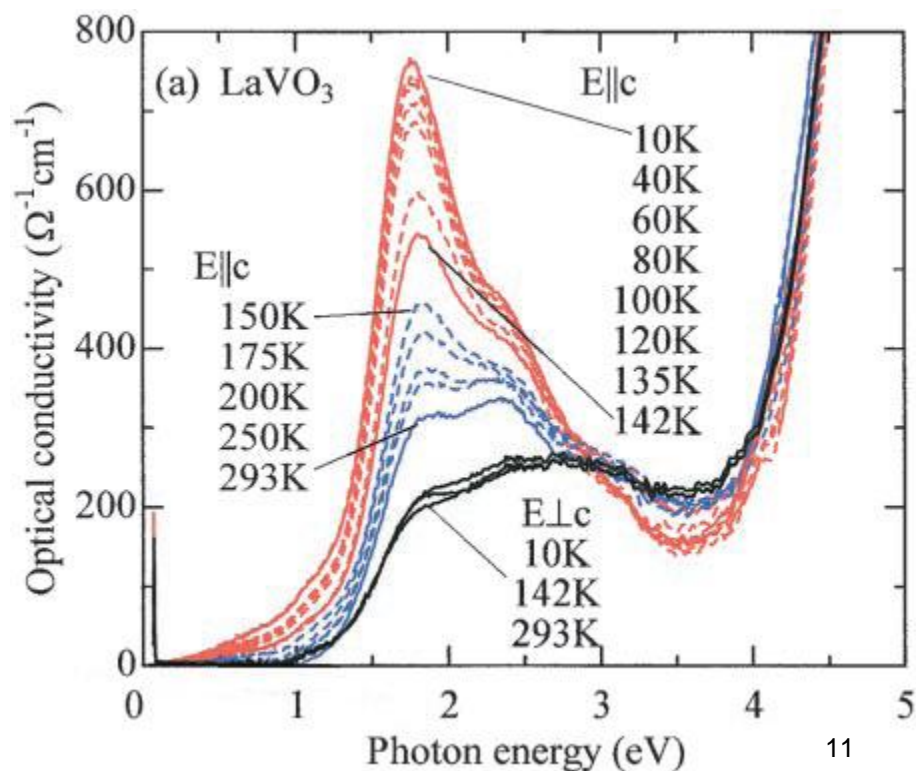
# 3次元系(2x2x2クラスタ-)の計算

$\sigma(\omega)$  (//,  $\perp$  z軸)



実験結果

S. Miyasaka *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 2086 (2002)



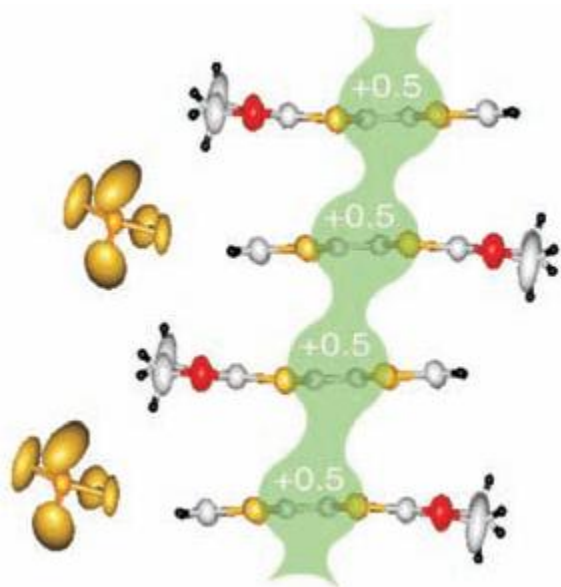
強い異方

# **(EDO-TTF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>における光誘起ダイナミクス**

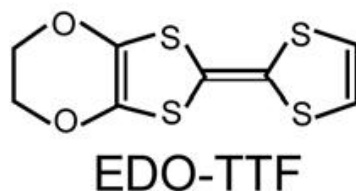
---

# (EDO-TTF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>

## High Temperature Phase

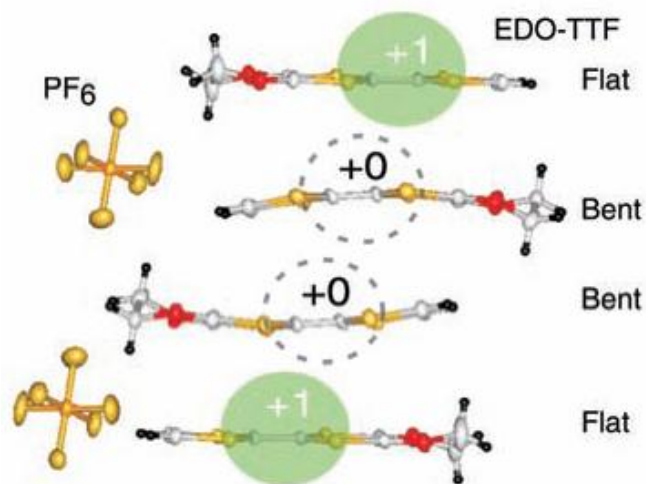


↔  
T<sub>c</sub> = 278 K



- すべての分子が+0.5価
- 金属的

## Low Temperature Phase

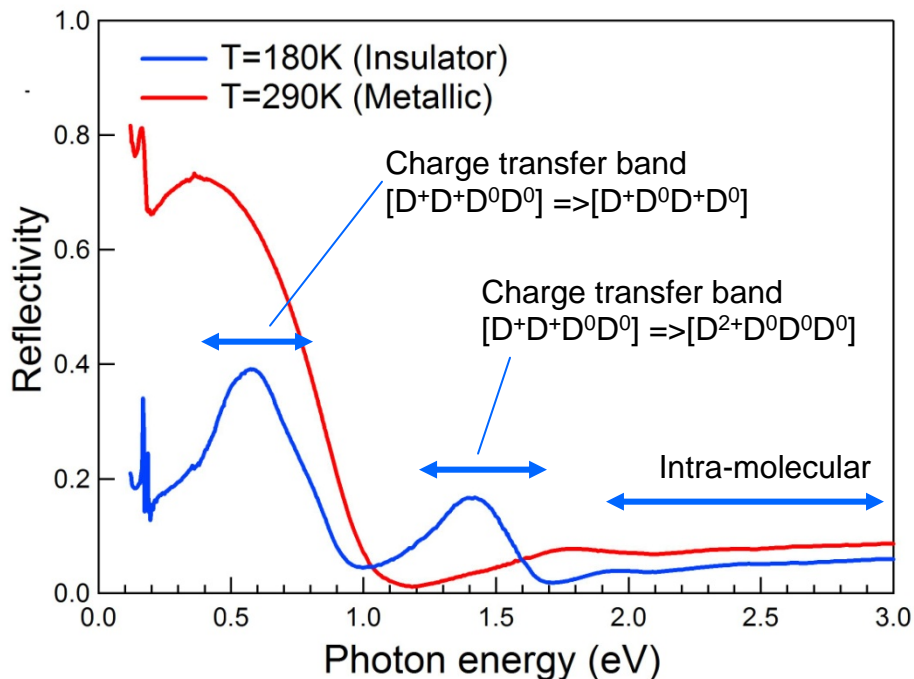


[Chollet *et al.*, Science **307**, 86 (2005).]

- (+1 0 0 +1)の電荷秩序
- 絶縁体

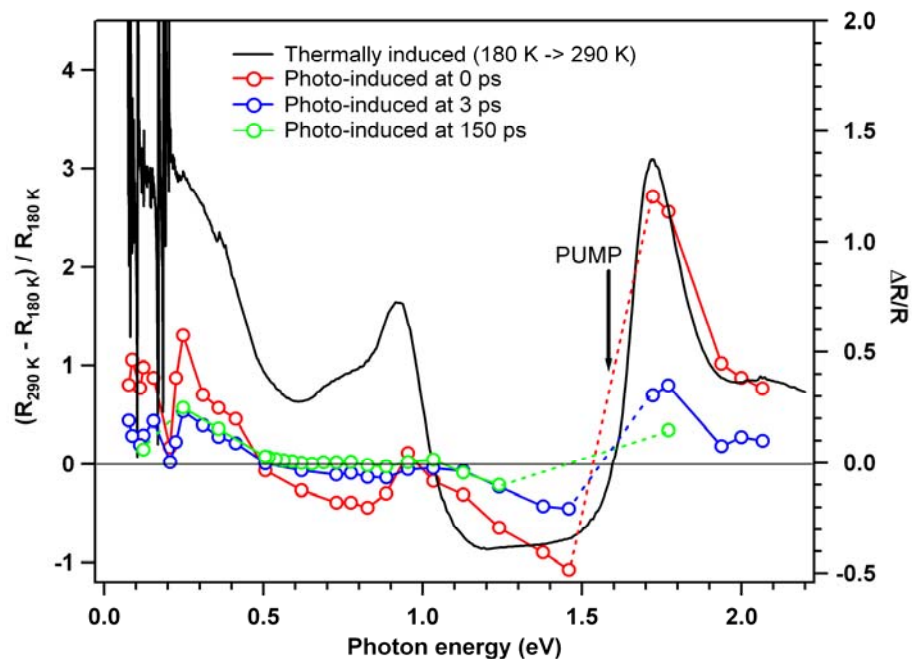
# Reflectivity and $\Delta R/R$

## Static reflectivities

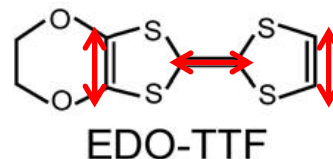


[Drozdova et al., Phys. Rev. B 70,75107 (2004)]

## Reflectivity changes at 0, 3, 150 ps

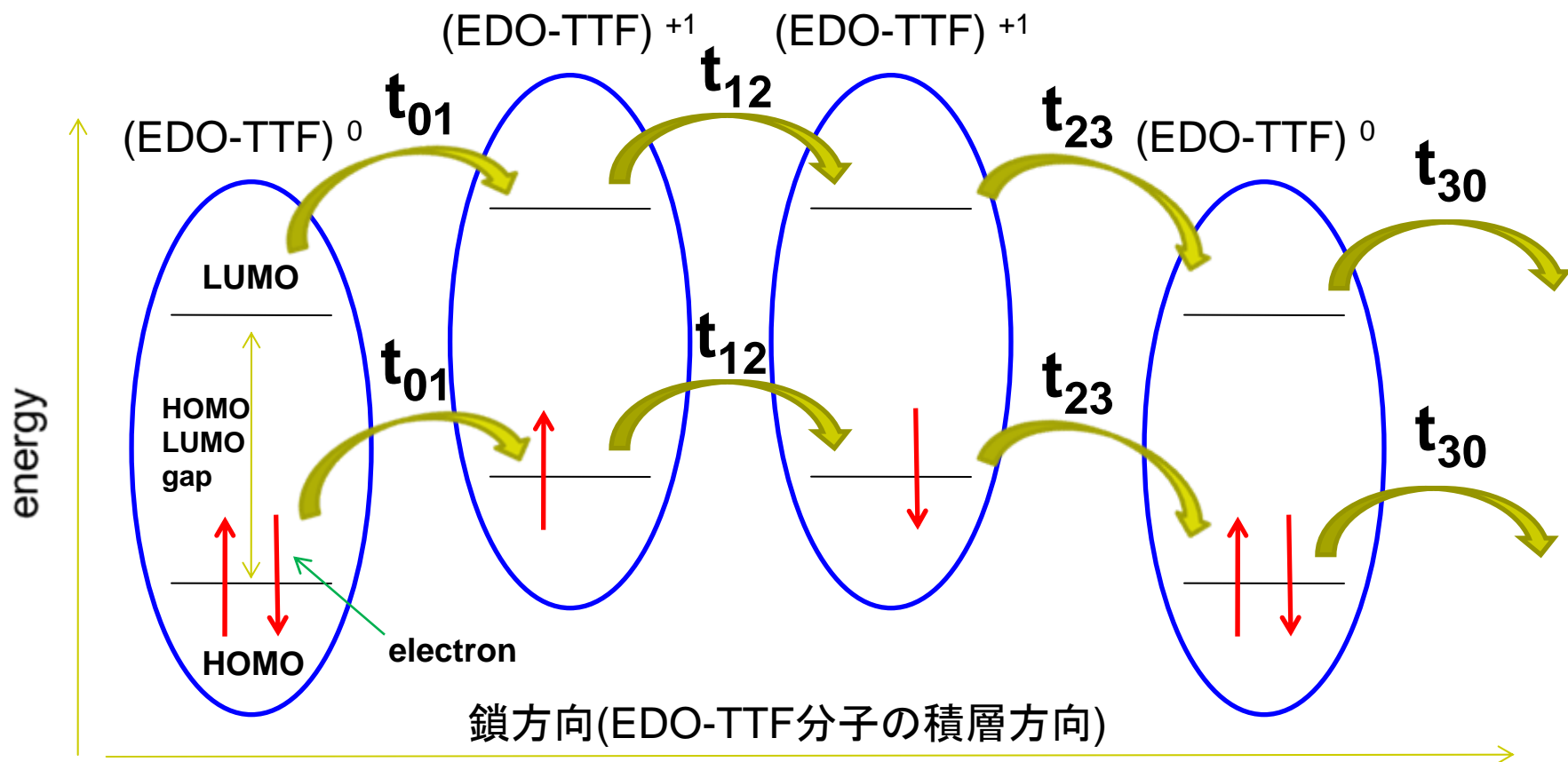


- 光誘起金属絶縁体転移
- コヒーレント振動



C=C 振動モード  
 $\sim 1500\text{cm}^{-1}$

# 2軌道系(HOMO+LUMO)



電子の飛び移りは HOMO-HOMO間, LUMO-LUMO間のみ

# 時間発展

## 2軌道ホルシュタイン・ハバード模型

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_t(t) + \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_U + \mathcal{H}_J + \mathcal{H}_{ep} + \mathcal{H}_p + \mathcal{H}_{\text{intra}}(t)$$

HOMO-LUMO間電荷移動

$$\mathcal{H}_{\text{intra}}(t) = -i\Delta A(t) \sum_i \sum_{\sigma} X_{HL} (c_{iH\sigma}^{\dagger} c_{iL\sigma} - c_{iL\sigma}^{\dagger} c_{iH\sigma})$$

$A(t)$ : pump光を与えるベクトルポテンシャル

$X_{HL}$ : 遷移双極子モーメント  $X_{HL} \equiv \vec{z} \cdot \int dx' (\phi_{iH}^0)^* (\vec{x}' - \vec{R}_i) \phi_{iL}^0$

$\Delta$ =HOMO-LUMO gap  $\sim 1.8\text{eV}$

## 時間発展

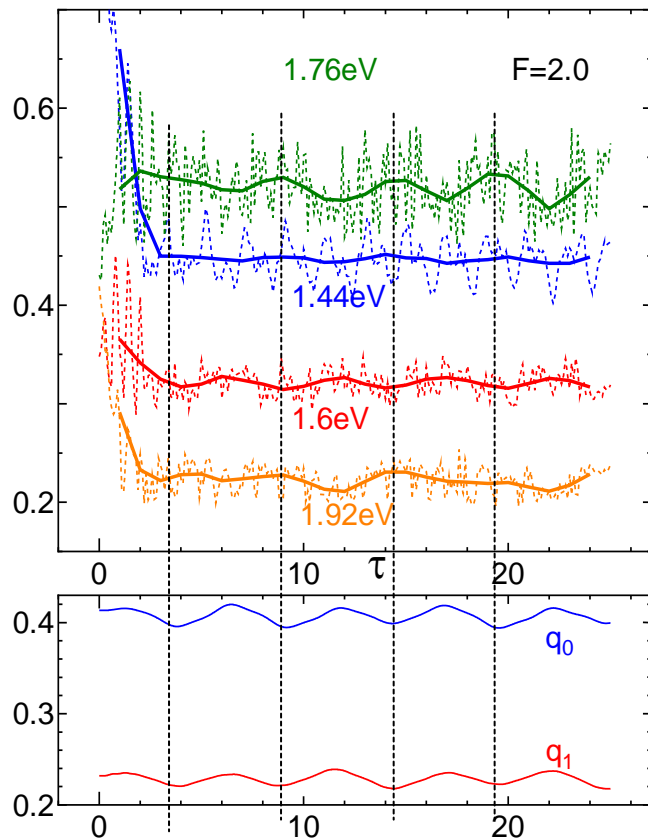
シュレディンガー方程式  $i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \mathcal{H}(t) |\psi(t)\rangle$

テイラー展開による  
数値解法  $\longrightarrow |\psi(t + \Delta t)\rangle = \sum_{k=0}^N \frac{1}{k!} \left[ \frac{\Delta t}{i\hbar} \mathcal{H}(t) \right]^k |\psi(t)\rangle$



# 計算結果(C=C振動と光学応答)

## $\omega$ $\sigma(\omega)$ の時間依存性



- 光学応答における振動(周期~5)が確認できる
- C=C振動と周期等が一致
- HOMO-LUMOギャップに相当するエネルギー領域で顕著な振動

## 電子フォノン相互作用

$$\mathcal{H}_{ep} = -g \sum_i (b_i + b_i^\dagger)(n_{iH} - n_{iL})$$

実効的なHOMO-LUMOギャップがC=C振動による変調を受ける

# まとめ

---

## 強相関電子系の光誘起ダイナミクス

### 単一軌道系から多軌道系へ

- $\text{LaVO}_3$
- $(\text{EDO-TTF})_2\text{PF}_6$

## 今後の発展

- より現実に即した自由度の取り込み  
     $\text{LaVO}_3$  における  $d_{xy}$  軌道, Jahn-Teller フォノン
- 光誘起現象の初期課程から準安定状態にいたる、より長い時間スケールのダイナミクス  
    量子古典ハイブリッド型数値解析