

学位論文

低次元強相関電子系における  
光誘起相転移と超高速ダイナミクス

五味 広喜

奈良先端科学技術大学院大学  
物質創成科学研究科

2005年3月

# 目次

第 1 章	序章	1
第 2 章	モデル	5
2.1	拡張ハバードハミルトニアンと 電子光子相互作用ハミルトニアン	5
2.2	有効ハミルトニアン	6
2.3	対称性	10
2.3.1	対称変換演算子	10
2.3.2	2次元系における対称性	14
2.3.3	1次元系における対称性	17
第 3 章	光誘起相転移： ハバードモデルを用いた解析	20
3.1	解析方法	20
3.1.1	相関関数	21
3.2	有効ハミルトニアンの妥当性	22
3.3	結果と考察	23
3.3.1	第 I 相	24
3.3.2	第 II 相	27
3.3.3	第 III 相	27
3.3.4	第 IV 相	28
3.3.5	2つの $d$ 波超伝導状態の相違	29
第 4 章	光誘起相転移： 拡張ハバードモデルを用いた解析	31
4.1	解析方法	32
4.1.1	相関関数	32
4.1.2	光吸収スペクトル	33
4.2	最近接サイト間クーロン相互作用の値の評価	33
4.3	2次元系の結果と考察	34
4.3.1	1光子励起状態	34
4.3.2	2光子励起状態	37
4.3.3	3光子及び4光子励起状態	41
4.3.4	電荷凝集機構	44
4.3.5	光吸収スペクトル	46
4.3.6	光誘起超伝導状態における $\hat{\nu}$ の影響	47
4.4	1次元系の結果と考察	49

4.4.1	1光子励起状態	50
4.4.2	多光子励起状態	52
4.4.3	電荷凝集機構	54
<b>第5章</b>	<b>超高速ダイナミクス</b>	<b>57</b>
5.1	解析方法	57
5.1.1	密度演算子	57
5.1.2	過渡的四光波混合 (TFWM)	58
5.1.3	自由誘導減衰 (FID)	60
5.1.4	相関関数	61
5.2	結果と考察	63
5.2.1	2次元系における自由誘導減衰	63
5.2.2	1次元系における自由誘導減衰	67
5.2.3	2次元系における電荷及びスピンの相関関数	69
5.2.4	1次元系における電荷及びスピンの相関関数	72
5.2.5	1次元系における過渡的四光波混合	73
5.2.6	2次元系における過渡的四光波混合	75
<b>第6章</b>	<b>結論</b>	<b>78</b>
付録A	システムサイズ	81
付録B	光誘起相転移： 拡張ハバードモデルを用いた解析による2次元系における相図	82
付録C	ハミルトニアンへの導出	83
付録D	電流演算子	86

# 第1章 序章

低次元強相関電子系とは、銅酸化物などの遷移金属酸化物などに代表される、電子間相互作用エネルギーが電子の運動エネルギーに比べて大きい、擬1次元、擬2次元の物質である。この物質は、高温超伝導 [1] などの興味深い性質を持ち、多くの研究がなされてきた [2-4]。しかしながら、その物性の発現機構に関しては、未解明な部分が多く残っている。また、低次元強相関電子系における光励起状態においては、超高速緩和 [5,6] や巨大な光学的非線形性 [5-11] を併せ持つ事、励起前とは異なる物質相へと変化する光誘起相転移現象 [12-24] などが発見され、盛んに研究されている。しかし、これら光学的特性の解析は始まったばかりであり、今後大きな発展が期待される未開拓の分野である。

この系におけるこれら特異な現象は、強い電子相関効果がもたらす電荷とスピンの異常な性質により引き起こされていると考えられているが、その起源については、未だ解決されていない。特に、スピン自由度と電荷自由度の分離 [25] が成立しているのか、更には、この分離がこれらの特異な現象の起源となっているのか、について現在でも盛んに論争されている [2,3]。

ここで、スピン自由度と電荷自由度の分離がこれら特異な現象にどのように関係しているかについて、具体的に言及しておく。

まず、高温超伝導に関して述べる。低次元強相関電子系における高温超伝導の発現機構をはじめとした、異常な物性を説明する完全なコンセンサスは、未だ得られていない。この問題を解明するために大まかに分類すれば、フェルミ流体論と非フェルミ流体論の2つの仮説が提出されている。フェルミ流体論においては、反強磁性的なスピンの揺らぎを媒介にした電子間引力によって、クーパー対が形成されて高温超伝導が起こると考えられている。一方、非フェルミ流体論においては、通常は不可分である電子のスピンと電荷が、強相関効果によって分離し、電荷のみを持つホロンがボーズ凝縮を起こす事によって高温超伝導が発生すると考えられている。両者の仮説の間では、反強磁性的なスピン相互作用が引き金になって超伝導が発生するという点においては接点を持っていると考えられている。しかしながら、これら2つの仮説は、このスピン - 電荷分離を認めるかどうかで対立しており、スピンと電荷が分離しているのか否かを解明する事は、これら異常な物性の解明にとって重要である事がわかる。

次に、低次元強相関電子系における特異な光学的性質に関して述べる。

1次元銅酸化物及びハロゲン架橋ニッケル錯体において、電場変調、第三高調波発生、2光子吸収などの分光法を用いて、非共鳴の領域も含め非常に大きな3次の非線形感受率  $\chi^{(3)}$  が観測されている [5-11]。この  $\chi^{(3)}$  のスペクトルは、基底状態と、ほぼ縮退した1光子許容な奇のパリティを持つ電荷移動励起状態及び1光子禁制な偶のパリティを持つ電荷移動励起状態の3準位モデルによって説明可能であり、大きな  $\chi^{(3)}$  は、2つの電荷移動励起状態がほぼ縮退しており、且つこれら間の遷移モーメン

トが大きい事に由来している [7-9, 26]。これらの特徴は、スピンと電荷の分離に起因すると考えられている。同様の計算が2次元系においても行われており、2次元系ではスピンと電荷の分離が成立していないために、2次元系における  $\chi^{(3)}$  の値は、1次元系ほどには大きくなると予想されている [10]。この事は、低次元強相関電子系における巨大な光学的非線形性を理解するためにも、スピンと電荷の分離の問題について解析を行う事の重要性を指摘しており、非常に興味深い結果である。しかしながら、低次元強相関電子系の遷移モーメントは、膨大な数の状態に分布している事がわかっており、3準位モデルが正しいものとは言えない。そのため、励起2準位を、多くの準位の重ね合わせとして理解できる事が提案されている [26] が、この事はまだ理論的に明らかにされていない。

超高速緩和 [5, 6] に関しても、スピンと電荷の異常な性質により引き起こされていると考えられている。超高速緩和現象を示す物質においては、スピン系が熱浴であり、スピン系の素励起であるマグノン (1次元ではスピノン) のエネルギーは、フォノンなどの多くの物質での熱浴の素励起のエネルギーよりもはるかに大きく、その結果、速い緩和が観測されると考えられている。この事もまた、スピンと電荷の自由度の結合の様相を解析する重要性を示唆していると考えられるが、この超高速緩和の発現機構においても決定的な結論が得られているわけではない。

このように、低次元強相関電子系の様々な興味深い物性を解明する鍵となっているのは、スピンと電荷の自由度の結合の様相を解明する事であり、これは、非常に重要な問題である。

この問題に大きく寄与したのが、角度分解光電子分光 (ARPES) についての研究である。

ARPES に関して述べる。1次元強相関電子物質である  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2$  に対して、2つの分岐が観測されている [27, 28]。この結果から、スピンと電荷の分離が成立しており、電荷及びスピン自由度の励起が観測されていると考えられている。電荷及びスピンの励起は、それぞれ個別のエネルギースケールを持ち、電荷のエネルギースケールがスピンのエネルギースケールよりもはるかに大きいと考えられている [27-29]。

しかしながら、単に2つの分岐が見えているというだけで、他のものが見えている可能性がある事、これら分散の間のエネルギー差は数倍程度である事から、スピンと電荷の分離が成立している直接的な証拠とは言い切れないと考えている。また、2次元系においては、1次元系の結果とは異なる結果が得られている [30] が、スピンと電荷の分離が確定したものかどうかは未だ不明である。

更には、強相関電子系における ARPES では、ホロンとスピノンの個別のバンドの情報を得ることは、ほぼ不可能であるという理論的考察がされている [31]。ARPES の結果を解析する際には、ドーピングされたホールの一體的成分と、多体効果を反映した成分とが区別されているという前提の下で議論されている。しかしながら、現実の強相関物質では、これら成分は不可分で、その結果得られるピークのどの部分が一體的成分で、どの部分が多体効果による成分であるかを明瞭に区別できない。従って、ARPES の結果から、強相関物質の持つバンド内の情報を得る事は、ほぼ不可能であ

ると提案されている [30, 31]。

2次元銅酸化物においては、共鳴2マグノンラマン散乱の共鳴する入射光エネルギーは、吸収スペクトルがピークを持つ入射光エネルギーよりも高エネルギー側で起こる現象が報告されている [32, 33]。この事を数値計算によって解析した理論研究において、吸収スペクトルのピークは主にスピンの自由度、2マグノンラマンスペクトルのピークはスピンの自由度より電荷の自由度の影響を受けやすいという結果が得られている [34]。この結果は、非常に興味深いものであるが、この情報からスピンと電荷の結合の様相を理解する事は難しいと考えている。

以上のように、低次元強相関電子系における特異な現象の起源と考えられている、スピンと電荷の自由度の結合の問題は未解決のままである。そこで、この重要な問題の解析に取り組むために、次の2つの新しく、且つ強力な光学的アプローチを用いて解析を行った。

第一のアプローチは、光誘起相転移相の研究である。光誘起相転移とは、光励起により基底状態とは全く異なる秩序を持つ準安定状態が作り出される現象であり、近年いくつかの物質において現実に観測されている [12–24]。この光誘起相転移によって実現される光誘起相は、基底状態において隠されていた物質の新たな一面が現れてきたと考える事ができ、基底状態とは異なった形でその物質の特色を反映していると考えられる。従って、光誘起相転移相を研究する事は、基底状態や低エネルギー励起状態の研究とは異なった新しい視点からその物質の特性を見直し、基底状態や低エネルギー励起状態の研究からは得られない新しい知見をもたらす事に繋がる。また、超短パルスレーザー光による低次元強相関電子系における光誘起相転移は、通常の相転移よりも遥かに高速な相変化をもたらすので、新たな光学素子の可能性を開くものとして応用面でも期待されている。

低次元強相関電子系は、ドーピングしていないハーフフィリングにおいて、反強磁性的スピン秩序を持った絶縁体となっている。このような低次元強相関電子系に、ドーピングによりキャリアを注入すると、反強磁性的スピン秩序が破壊され、高温超伝導相が出現する。一方、光励起は、電子とホールを同時にドーピングとみなす事も可能であるので、光ドーピングによりキャリアを注入する事により、反強磁性的スピン秩序が破壊されて、低次元強相関電子系の性質が劇的に変化し、多様な興味深い相が光励起状態に出現する光誘起相転移が起きる事が期待される。

実際に、強相関物質である1次元臭素架橋ニッケル錯体においては、光励起による電荷移動バンドからギャップ内へのスペクトル強度の移動と、赤外域における反射率の著しい増大が観測されている。この事は、光励起によって金属相が形成され、光誘起金属転移が起きている事を示している [24]。

この光誘起相転移に関する理論研究に関しては、その性質がよく理解できている物質相間の相転移を扱ったものが多く [35–37]、上に述べた視点から研究が行われてきた、とは言い難い。第一のアプローチの視点に基づいた低次元強相関電子系の光誘起相転移相の研究は、低次元強相関電子系、更には、その性質と密接に関連していると考えられている強い電子相関効果をもたらす電荷とスピンの異常な性質の解明に大き

なインパクトを与える可能性がある。

第二のアプローチは、光励起状態の超高速ダイナミクスの解析である。基底状態は、様々な相互作用が互いに打ち消し合う事により安定している。そのため、基底状態に弱い摂動を与えて反応を見るという手法では、様々な相互作用の相克の様相を見る事は難しい。一方、光子は大きなエネルギーを持っている為、光励起により、このバランスを瞬時に且つ大きく破壊する事ができる。このバランスを破壊した光励起後のダイナミクスを研究する事により、様々な相互作用の相克の様相を見る事が可能になると考えられる。従って、ダイナミクスの観測により、弱い刺激に対する反応からは見る事ができない、その系の本質を見る事が可能になる。

特に低次元強相関電子系においては、光は電荷自由度とのみ直接結合するため、スピンの運動は、電荷とスピン自由度の結合を通じて間接的に誘起される。その結果、光励起状態のダイナミクスは、電荷とスピンの自由度の結合の様相を良く反映すると考えられ、この問題を考察するには最適の舞台であると考えられる。

この光励起状態における、位相緩和のダイナミクスを表わす自由誘導減衰の信号光強度の時間依存性は、良く知られているように、光吸収スペクトルのフーリエ変換から得る事ができる。過去にいくつかの光吸収スペクトルの研究が行われている [2, 38–44]。しかしながら、強相関極限を除いて、巨大なヒルベルト空間において吸収スペクトルを厳密に計算するためには、数値計算を収束させるために人工的な幅  $\epsilon$  を仮定する必要がある [2]。数値計算の収束を保証する最小の  $\epsilon$  を用いた場合でも、光吸収スペクトルのフーリエ変換から得られた自由誘導減衰の長時間の振る舞いに、深刻な影響がもたらされる。従って、緩和現象の研究をする際には、自由誘導減衰を直接求める事は、吸収スペクトルからは得られない重要な情報をもたらす。

そこで、低次元強相関電子系における物性の解明を、上に述べた視点に立ったダイナミクスの研究を通じても取り組んだ。

この論文は、以下のように構成されている。第2章においては、光誘起相転移相及びそのダイナミクスを記述するモデルを説明する。第3章においては、ハバードモデルを用いた光誘起相転移相の解析結果を述べる。第4章においては、拡張ハバードモデルを用いた光誘起相転移相の解析結果を述べる。第5章においては、ハバードモデルを用いた光励起状態の超高速ダイナミクスの解析結果を述べる。第6章においては、第3章から第5章までの解析結果の結論を述べる。

## 第2章 モデル

### 2.1 拡張ハバードハミルトニアンと 電子光子相互作用ハミルトニアン

低次元強相関電子系における、光誘起相転移相及び光励起状態の超高速ダイナミクスを解析するために、以下の古典電磁場と結合した低次元強相関電子系を記述するハミルトニアンを考える。

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_{e-p} . \quad (2.1.1)$$

ここで、電子系のハミルトニアン  $\hat{H}_e$  として、低次元強相関電子系の標準モデルとして広く認められているハバードモデルに、最近接サイト間クーロン相互作用を付加した拡張ハバードモデルを用いる。拡張ハバードハミルトニアンは以下の式で与えられる。

$$\hat{H}_e = \hat{T} + \hat{U} + \hat{V} , \quad (2.1.2a)$$

$$\hat{T} = -t \sum_{n,m} \sum_{\sigma} c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} , \quad (2.1.2b)$$

$$\hat{U} = U \sum_n c_{n\uparrow}^{\dagger} c_{n\uparrow} c_{n\downarrow}^{\dagger} c_{n\downarrow} , \quad (2.1.2c)$$

$$\hat{V} = \frac{V}{2} \sum_{n,m}^{NN} n_n n_m , \quad (2.1.2d)$$

ここで用いた表記は以下の通りである。

$\hat{T}$	: 最近接サイトへのホッピング項
$\hat{U}$	: 同一サイトクーロン相互作用項
$\hat{V}$	: 最近接サイト間クーロン相互作用項
$t$	: 最近接サイト間ホッピングエネルギー
$U$	: 同一サイトクーロン相互作用エネルギー
$V$	: 最近接サイト間クーロン相互作用エネルギー
$c_{m,\sigma}^{\dagger}$	: サイト $m$ におけるスピン $\sigma$ を持った電子の生成演算子
$c_{m,\sigma}$	: サイト $m$ におけるスピン $\sigma$ を持った電子の消滅演算子
$\sum^{NN}$	: 最近接サイトの和を取ることを意味する
$n_m = \sum_{\sigma} c_{m,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma}$	

式 (2.1.2a) において、第 3 項  $V = 0$  とした場合、式 (2.1.2a) はハバードハミルトニアンを表わす。



次に、電子光子相互作用ハミルトニアン  $\hat{H}_{e-p}$  は、外場を古典的に扱い、以下のよう  
に与えられる。

$$\hat{H}_{e-p} = - \mathbf{A}(\tau) \cdot \hat{\mathbf{J}}, \tag{2.1.3a}$$

$$\hat{\mathbf{J}} = it \sum_{n,m} \sum_{\sigma}^{\text{NN}} (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n) c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma}, \tag{2.1.3b}$$

ここで用いた表記は以下の通りである。

- $\hat{\mathbf{J}}$  : 電流演算子
- $\mathbf{A}(\tau)$  : 時刻  $\tau$  におけるベクトルポテンシャル  
(光の波長は、考察する系よりも十分大きいので、  
 $\mathbf{A}(\mathbf{r}, \tau) \approx \mathbf{A}(\tau)$  が成立)
- $\mathbf{Q}_m$  : サイト  $m$  の位置ベクトル
- $c$  : 光速
- $q$  : 電荷  
( $c = q = \hbar = 1$  とする原子単位系を採用する)

## 2.2 有効ハミルトニアン

低次元強相関電子系を記述する  
拡張ハバードハミルトニアンの  
ような多体ハミルトニアンを厳密  
に解く事は、計算時間及びコンピ  
ューターのメモリー容量の制限か  
ら、極めて小さいシステムサイズ  
に限られるため、有限サイズ効果  
の問題が深刻となる。そのため、  
現在までに多くの多体問題のた  
めの計算方法が開発されてきたが  
[2-4]、そのほとんどが、基底状態、  
もしくは低エネルギー励起状態に  
のみ適用できるものである。更  
には、本研究において扱うような、  
多光子励起状態を求める事は非常  
に難しく、光誘起相転移相やその  
ダイナミクスの解析を行う事が可  
能な有効な理論は存在せず、尚且  
つ信頼の置ける計算手法も存在し

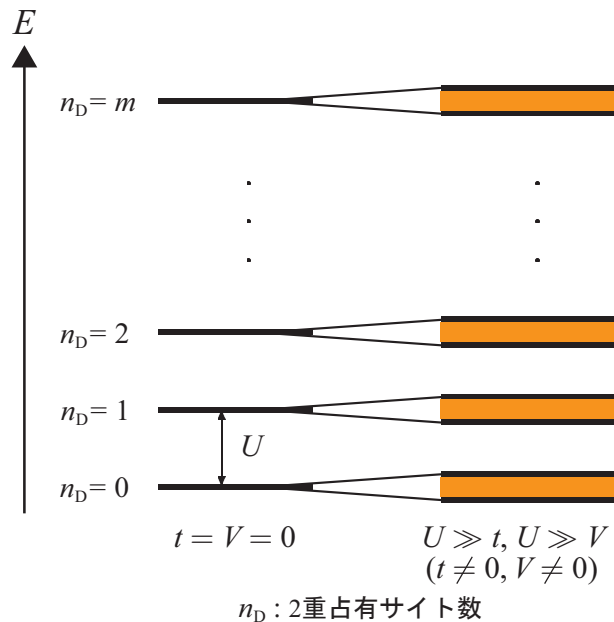


Fig. 2.1. 多体ハミルトニアンにおける励起バンド概念図

ていなかった。そこで、当講座において導出された、低次元強相関電子系の多光子励起状態を記述するための有効ハミルトニアン [45] を用いる事により、より大きなシステムサイズにおける多光子励起状態を求める事が可能となる。この有効ハミルトニアンの詳細は、文献 [45] に記載されている。よって、ここではその概要のみを述べる事にする。

有効ハミルトニアンを導出するために、同一サイトクーロン相互作用エネルギーが、最近接サイト間ホッピングエネルギーと最近接サイト間クーロン相互作用エネルギーよりも大きい強相関領域  $U \gg t, U \gg V$  を仮定をする。

$t=V=0$  の場合、拡張ハバードハミルトニアンは容易に解く事ができる。 $n_D$  を 2 重占有サイト数とすると、多体ハミルトニアンのエネルギー固有値  $E$  は、 $E = Un_D$  となり、多体系のエネルギー準位は 2 重占有サイト数のみで決まる。その結果、エネルギー準位は Fig. 2.1 の左側のような構造になる。エネルギー準位は離散的な値を取り、各準位は間隔  $U$  の等間隔で分布する。各エネルギー準位には、様々なスピン構造を持った膨大な数の状態が縮退している。 $n_D = 0$  のエネルギー準位には、2 重占有サイト数が 0 個の状態がすべて縮退しており、 $n_D = 1$  のエネルギー準位には、2 重占有サイト数が 1 個の状態がすべて縮退している。以下同様である。

$t \neq 0, V \neq 0$ 、且つ  $U \gg (t, V)$  の場合、拡張ハバードハミルトニアンの各エネルギー準位は、運動エネルギー項  $\hat{T}$  と最近接サイト間クーロン相互作用項  $\hat{V}$  によってその縮退を解かれて、Fig. 2.1 の右側のようなエネルギーバンド構造になる。これらのエネルギーバンドの幅は、システムサイズ  $N$  に比例する。よって、大きなシステムサイズに対しては、これらエネルギーバンドが交差する。しかしながら、交差したバンドは、異なる 2 重占有サイト数を持ち、これらバンド同士のスピン配置は大きく異なる。その結果、これらバンド間における様々な物理量の行列要素が無視できるほどに小さくなる。それゆえ、模式的に Fig. 2.1 で示されるエネルギーバンド構造を考えても問題は無い。ただし、ここでのエネルギーバンドは、多粒子系全体のエネルギーバンドであって、独立電子近似に基づく 1 電子エネルギーバンドではない。強相関電子系を扱う場合、1 電子エネルギーバンドの概念自身が正当化できない。

この条件の下で、 $\hat{T}$  の効果を  $t/U$  の 2 次まで考慮する事により、拡張ハバードハミルトニアンから、 $m$  光子励起状態を記述するための有効ハミルトニアンを導出する事ができ、以下のように表される。

$$\hat{H}_e = \sum_m \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.2.1)$$

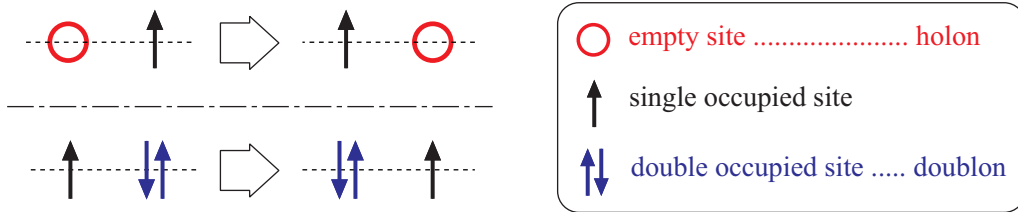
ここで、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、2 重占有サイトが  $m$  個の全ての状態で張られるヒルベルト部分空間  $S_m$  における有効ハミルトニアンであり、以下のように与えられる。

$$\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)} = mUP_m + P_m\hat{T}P_m + \hat{V}P_m - U^{-1}P_m\hat{T}P_{m+1}\hat{T}P_m + U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m, \quad (2.2.2)$$

ここで、 $P_m$  はヒルベルト部分空間  $S_m$  への射影演算子である。式 (2.2.2) における各項の特徴を以下に述べる。

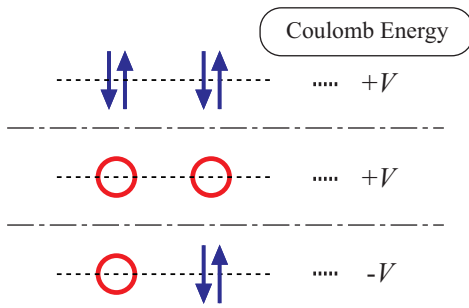
•  $P_m \hat{T} P_m :$

2重占有サイト、もしくは空サイトの最近接サイトへの移動



•  $\hat{V} P_m :$

最近接サイト間におけるクーロン相互作用



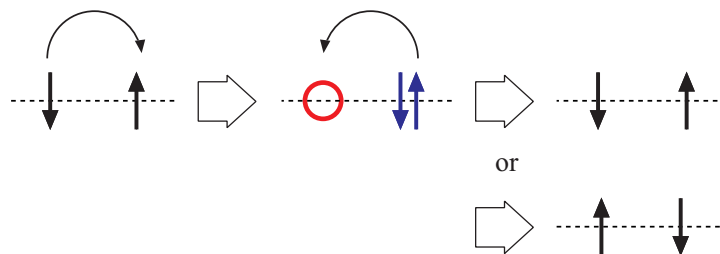
•  $U^{-1} P_m \hat{T} P_{m+1} \hat{T} P_m :$

(i) 最近接サイト間反強磁性ハイゼンベルグスピン間相互作用 (NAFHI)

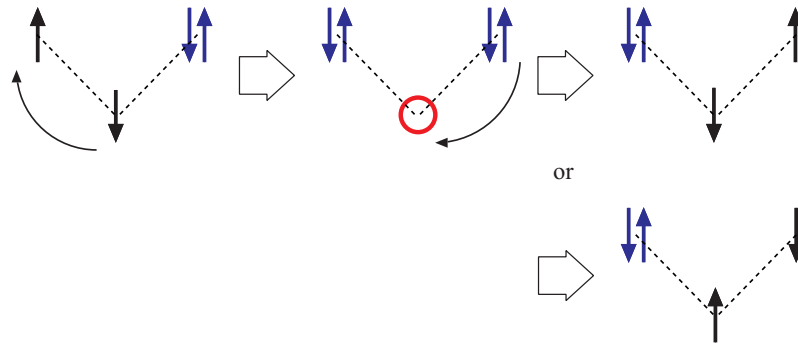
$$J \sum_{\langle l,m \rangle} \left( \hat{S}_l \cdot \hat{S}_m - \frac{1}{4} n_l n_m \right), \quad J = 4t^2/U$$

$\hat{S}_l$  はサイト  $l$  におけるスピン演算子

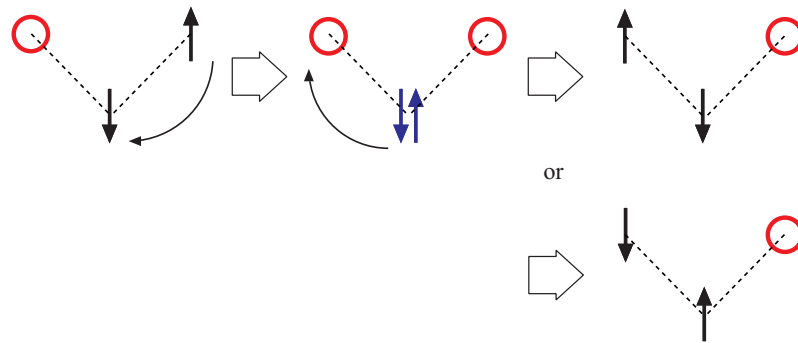
$\sum_{\langle l,m \rangle}$  は、最近接サイト対の和をとる事を意味する



(ii) 2重占有サイトの第2、もしくは第3近接1重占有サイトへの移動

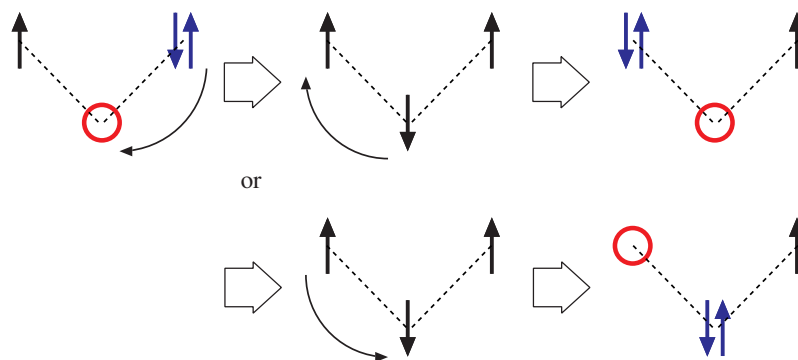


(iii) 空サイトの第2、もしくは第3近接1重占有サイトへの移動

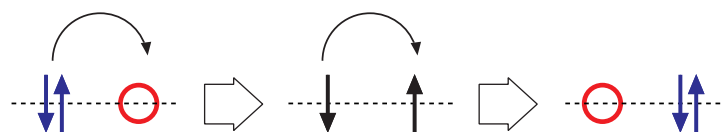


•  $U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m\dots$  光励起状態の有効ハミルトニアンに固有な項 :

(i) 最近接2重占有サイトと空サイト対の移動



(ii) 最近接2重占有サイトと空サイト対の交換



これらの全ての項の中で、重要項として一般的に考えられているのは、 $P_m \hat{T} P_m$ 、 $\hat{V} P_m$  及び NAFHI 項である。 $P_m \hat{T} P_m$  のみが  $t$  に比例し、その他の項の中で、 $\hat{V} P_m$  のみが  $V$  に比例し、それ以外の全ての項は  $t^2/U$  に比例する。従って、強相関領域  $U \gg t$ 、 $U \gg V$  の場合には、 $P_m \hat{T} P_m$  が主要な働きをする項になる。NAFHI 項は、小さいパラメーター  $t^2/U$  に比例するが、1 重占有サイトのペアに対して作用するため、他の項に比べてゼロでない行列要素がはるかに多く、その結果、NAFHI 項も主要な働きをする項となる。これらの重要項のうち、 $P_m \hat{T} P_m$  と NAFHI 項のみを取り入れたのが、以下のハミルトニアンで与えられる  $t$ - $J$  モデルである。

$$\hat{H}_{t-J} = -t \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} P_m (c_{i,\sigma}^{\dagger} c_{j,\sigma} + \text{h.c.}) P_m + J \sum_{\langle i,j \rangle} P_m \left( \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{4} n_i n_j \right) P_m. \quad (2.2.3)$$

この事は、当講座において導出された  $\hat{H}_{\text{eff}}$  は、 $\hat{H}_{t-J}$  を拡張したものである事を表している。

## 2.3 対称性

$\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  及び  $\hat{H}_{e-p}$  の対称性により、 $m$  光子励起状態は以下のように分類することができる。

### 2.3.1 対称変換演算子

サイト数が  $N$  である系の任意の電子配置は、

$$|\nu\rangle = \hat{n}_1^{\dagger} \hat{n}_2^{\dagger} \cdots \hat{n}_N^{\dagger} |\text{vac}\rangle, \quad (2.3.1a)$$

$$\hat{n}_i^{\dagger} = 1, c_{i,\uparrow}^{\dagger}, c_{i,\downarrow}^{\dagger} \text{ or } D_i^{\dagger}, \quad (2.3.1b)$$

$$D_i^{\dagger} = c_{i,\uparrow}^{\dagger} c_{i,\downarrow}^{\dagger}, \quad (2.3.1c)$$

と表わす事ができる。ここで、 $|\text{vac}\rangle$  は電子に対する真空である。(2.3.1) で表わされた電子配置を基底として、これらの線形結合で任意の電子状態を記述する。

### 2次元系における並進演算子

2次元正方格子における  $x, y$  方向の並進演算子  $T_x, T_y$  は、

$$T_x : x \text{ 方向への } 1 \text{ サイト並進 } T_x(l, m) = (l+1, m),$$

$$T_y : y \text{ 方向への } 1 \text{ サイト並進 } T_y(l, m) = (l, m+1),$$

と定義される、ここで  $(l, m)$  は2次元座標による表示である。これらの演算子は

$$X[c_{i,\sigma(i)}^{\dagger}] = X c_{i,\sigma(i)}^{\dagger} X^{-1} = c_{X(i),\sigma(i)}^{\dagger} = c_{j,\sigma(i)}^{\dagger}, \quad (2.3.2a)$$

$$X|\text{vac}\rangle = |\text{vac}\rangle, \quad (2.3.2b)$$

$$X = T_x, T_y, R_{\pi/2}, R_{\pi}, \quad (2.3.2c)$$

のように、電子の生成演算子のサイトインデックスを変換する。電子の消滅演算子の場合も同様である。

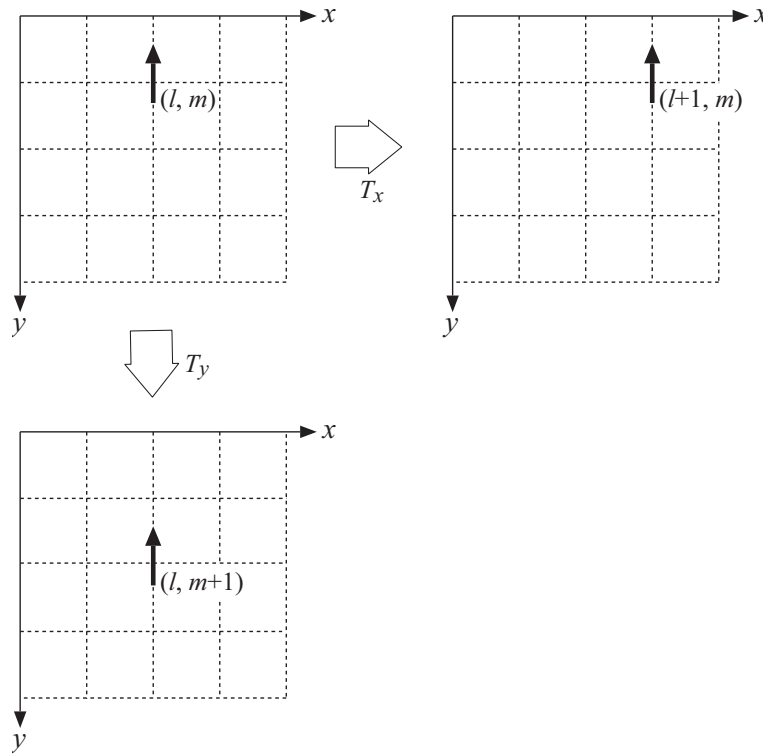


Fig. 2.2.  $T_x, T_y$  並進演算子が作用した場合のサイトの移動の模式図。 $y$  軸方向は計算プログラム上における便宜性からこの図に示される軸方向とする

2次元系における回転演算子

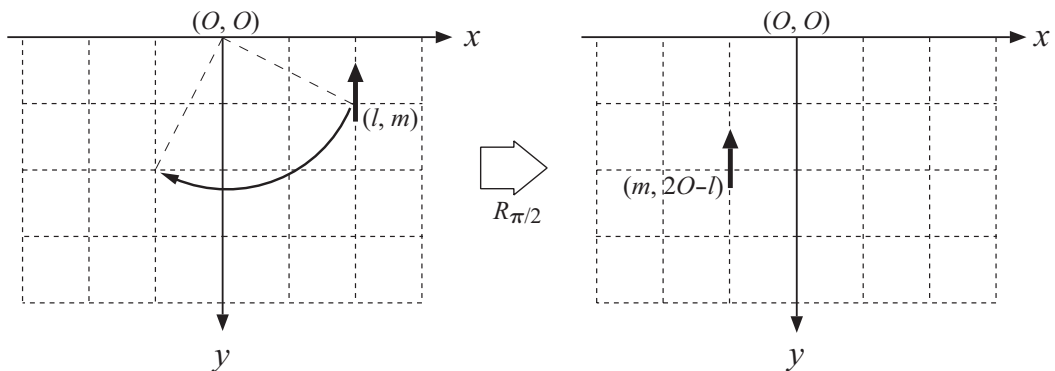


Fig. 2.3.  $R_{\pi/2}$  回転演算子が作用した場合のサイトの回転の模式図。 $R_{\pi/2}$  の回転方向は計算プログラムの便宜上、図に示す方向とする

2次元正方格子における  $(O, O)$  を中心とした  $\pi/2$  回転 (90度回転) 演算子  $R_{\pi/2}$  は、

$$R_{\pi/2} : \text{点 } (O, O) \text{ を中心とする } \pi/2 \text{ 回転 } R_{\pi/2}(l, m) = (m, 2O - l),$$

と定義される。回転演算子  $R_{\pi/2}$  は、

$$[R_{\pi/2}]^4 = 1, \quad (2.3.3)$$

を満たすので、 $R_{\pi/2}$  の固有値  $r_{\pi/2}$  は、 $r_{\pi/2}^4 = 1$  を満たし、

$$r_{\pi/2} = 1, i, -i, \text{ or } -1, \quad (2.3.4)$$

となる。このとき、 $r_{\pi/2} = 1, \pm i, -1$  の状態をそれぞれ、 $s, p, d$  波回転対称状態と呼ぶ。

### 2次元系における電荷共役変換演算子

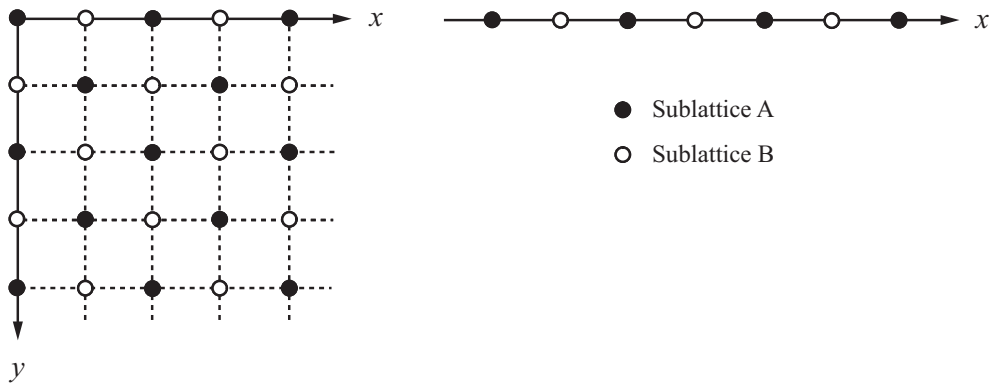


Fig. 2.4. 2次元及び1次元における bipartite sublattice

電荷共役変換演算子 [46] は以下のように定義される。

$$Q[c_{i,\sigma}^\dagger] = Qc_{i,\sigma}^\dagger Q^{-1} = s(i)c_{i,-\sigma}, \quad (2.3.5a)$$

$$Q[c_{i,\sigma}] = s(i)c_{i,-\sigma}^\dagger, \quad (2.3.5b)$$

$$Q|\text{vac}\rangle = D_1^\dagger D_2^\dagger \cdots D_N^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad (2.3.5c)$$

$$s(i) = \begin{cases} 1 & \text{if } i \in A \\ -1 & \text{if } i \in B \end{cases}$$

ここで、 $i \in A(B)$  は、サイト  $i$  が Fig. 2.4 に示された副格子 A(B) に属している事を示し、2次元表現による座標  $(l, m)$  は、

$$(l, m) \in A \quad \text{if} \quad \text{mod}(l + m, 2) = 0$$

$$(l, m) \in B \quad \text{if} \quad \text{mod}(l + m, 2) = 1$$

と定義する。 $s(i) = \pm 1$  であり、隣接サイトでは異なる符号をとる事から、 $Q$  を式 (2.3.1) で表わされる基底状態ベクトル  $|\nu\rangle$  に作用させた時、 $Q|\nu\rangle$  は  $|\nu\rangle$  に対し、

$$1) \quad \text{2重占有サイトと空サイトを交換} \quad (2.3.6)$$

$$2) \quad \text{sign} = \prod_i^{n_i=\pm 1} \{-s(i)n_i\} \text{ を乗じた} \quad (2.3.7)$$

状態ベクトルとなる。

電荷共役変換は

$$Q^2 = 1, \tag{2.3.8}$$

を満たすので、 $Q$  の固有値  $q$  は、 $q^2 = 1$  となる。従って、 $q = 1, -1$  となる。これらの状態をそれぞれ、 $-$ ,  $+$  対称状態と呼ぶ。

1次元系における並進演算子

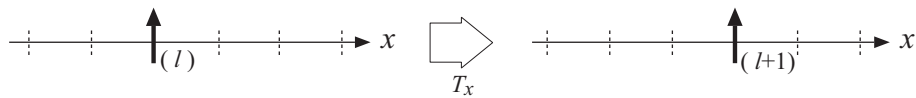


Fig. 2.5.  $T_x$  並進演算子が作用した場合のサイトの移動の模式図

1次元系における  $x$  方向の並進演算子  $T_x$  は、

$$T_x : x \text{ 方向への } 1 \text{ サイト並進 } T_x(l) = (l + 1),$$

と定義される。

1次元系における回転演算子

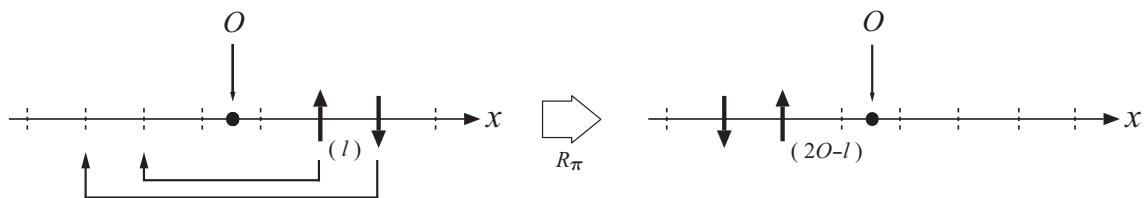


Fig. 2.6.  $R_\pi$  回転演算子が作用した場合のサイトの回転の模式図

1次元系における点  $O$  を中心とする  $\pi$  回転 (180度回転) 演算子  $R_\pi$  は、

$$R_\pi : \text{点 } O \text{ を中心とする } \pi \text{ 回転 } R_\pi(l) = (2O - l),$$

と定義される。回転演算子  $R_\pi$  は、

$$[R_\pi]^2 = 1, \tag{2.3.9}$$

を満たすので、 $R_\pi$  の固有値  $r_\pi$  は、 $r_\pi^2 = 1$  を満たし、

$$r_\pi = 1, \text{ or } -1, \tag{2.3.10}$$

となる。このときの状態をそれぞれ、 $A, B$  波回転対称状態と呼ぶ。



## 1次元系における電荷共役変換演算子

1次元系における電荷共役変換演算子  $Q$  は、

$$Q[c_{i,\sigma}^\dagger] = s(i)c_{i,-\sigma}, \quad Q[c_{i,\sigma}] = s(i)c_{i,-\sigma}^\dagger, \quad (2.3.11a)$$

$$s(i) = (-1)^i, \quad (2.3.11b)$$

$$Q|\text{vac}\rangle = D_1^\dagger D_2^\dagger \cdots D_N^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad (2.3.11c)$$

で定義される。

## 2.3.2 2次元系における対称性

有効ハミルトニアンの対称性

並進対称性

2次元系における  $x$  方向及び  $y$  方向への並進演算子： $T_x$  及び  $T_y$  は、2重占有サイト数を変化させないので、

$$[T_x, P_m] = 0, \quad (2.3.12)$$

$$[T_y, P_m] = 0, \quad (2.3.13)$$

の交換関係が成り立つ。よって、

$$\begin{aligned} T_x[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] &= T_x[P_m(\hat{T} + \hat{V})P_m - U^{-1}P_m\hat{T}P_{m+1}\hat{T}P_m + U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m] \\ &= \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \end{aligned} \quad (2.3.14)$$

同様にして、

$$T_y[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] = \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.3.15)$$

を得る。従って、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は並進対称性を持つ事が示される。

回転対称性

$\pi/2$  回転演算子： $R_{\pi/2}$  は2重占有サイト数を変化させないので、

$$[R_{\pi/2}, P_m] = 0, \quad (2.3.16)$$

の関係が成り立つ。従って、

$$\begin{aligned} R_{\pi/2}[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] &= R_{\pi/2}[P_m(\hat{T} + \hat{V})P_m - U^{-1}P_m\hat{T}P_{m+1}\hat{T}P_m + U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m] \\ &= \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \end{aligned} \quad (2.3.17)$$

である事から、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は  $\pi/2$  回転対称性を持つ事が示される。

## 電荷共役対称性

電荷共役変換演算子： $Q$  は、サイト数と電子数が等しいハーフフィリングの場合のみ、2重占有サイト数  $n_D$  を変化させない。従って、この場合のみ

$$[Q, P_m] = 0, \quad (2.3.18)$$

が成立する。よって、

$$\begin{aligned} Q[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] &= Q[P_m(\hat{T} + \hat{V})P_m - U^{-1}P_m\hat{T}P_{m+1}\hat{T}P_m + U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m] \\ &= \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \end{aligned} \quad (2.3.19)$$

を得る。従って、ハーフフィリングの場合の  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、電荷共役対称性を持つ事が示される。

## スピン対称性

$\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  にスピントリップ演算子： $\Theta$  を作用させると、

$$\Theta[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] = \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.3.20)$$

となり、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、 $\Theta$  と交換する。

## 電子光子相互作用ハミルトニアン対称性

## 並進対称性

$\hat{\mathcal{H}}_{e-p}$  に並進演算子： $T_x, T_y$  を作用させると、

$$T_x[\hat{H}_{e-p}] = \hat{H}_{e-p}, \quad (2.3.21)$$

$$T_y[\hat{H}_{e-p}] = \hat{H}_{e-p}, \quad (2.3.22)$$

が得られる。従って、 $\hat{H}_{e-p}$  は並進対称性を持つ事が示される。これは、 $A(\tau)$  が  $r$  に依存しない事によりもたらされる性質である。

## 回転対称性

$\hat{H}_{e-p}$  に  $\pi/2$  回転演算子： $R_{\pi/2}$  を作用させると、

$$R_{\pi/2}[\hat{H}_{e-p}] \neq \pm \hat{H}_{e-p}, \quad (2.3.23)$$

となり、交換及び反交換、共にしない。

これに対し、 $\hat{H}_{e-p}$  に  $\pi$  回転演算子： $R_\pi$  を作用させると、

$$R_\pi[\hat{H}_{e-p}] = -\hat{H}_{e-p}, \quad (2.3.24)$$

が得られ、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $R_\pi$  と反交換する。これは、 $A(\tau)$  に偏光方向が存在する事によりもたらされる性質である。

電荷共役対称性

$\hat{H}_{e-p}$  に電荷共役変換演算子 :  $Q$  を作用させると、

$$Q[\hat{H}_{e-p}] = -\hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.25)$$

が得られ、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $Q$  と反交換する。

スピン対称性

$\hat{H}_{e-p}$  にスピントリップ演算子 :  $\Theta$  を作用させると、

$$\Theta[\hat{H}_{e-p}] = \hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.26)$$

となり、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $\Theta$  と交換する。

$m$ 光子励起状態の対称性

数値計算から、この論文において考察する全ての場合の基底状態は、全運動量  $P = 0$ 、全スピン  $S = 0$  であった。従って、 $H_{e-p}$  の持つ対称性から、全運動量  $P = 0$ 、全スピン  $S = 0$  を持った状態のみが、多光子励起過程によって励起される。一般に、エネルギー固有状態は、系の対称群の既約表現によって特徴付けられる。しかしながら、 $P = 0$  と  $S = 0$  を持った部分空間にのみ解析を制限する事ができるので、エネルギー固有状態は、 $Q$  の固有値  $q$  と、 $R_{\pi/2}$  の固有値  $r_{\pi/2}$  によって分類する事ができる。固有値  $q = \mp 1$  を持った状態を  $|\pm\rangle$  と表わし、固有値  $r_{\pi/2} = 1, \pm i, -1$  を持った状態は  $s, p, d$  波回転対称状態であるから、その状態を  $|s\rangle, |p\rangle, |d\rangle$  とする。 $H_{e-p}$  の持つ対称性は、式 (2.3.25) より

$$\begin{aligned} \langle \pm | \hat{H}_{e-p} | \pm \rangle &= \mp \langle \pm | \hat{H}_{e-p} Q | \pm \rangle \\ &= \pm \langle \pm | Q \hat{H}_{e-p} | \pm \rangle \\ &= -\langle \pm | \hat{H}_{e-p} | \pm \rangle , \end{aligned}$$

$$\langle \pm | \hat{H}_{e-p} | \pm \rangle = 0 ,$$

及び式 (2.3.24) から

$$\begin{aligned} \langle s | \hat{H}_{e-p} | s \rangle &= 0 , \\ \langle d | \hat{H}_{e-p} | d \rangle &= 0 , \\ \langle p | \hat{H}_{e-p} | p \rangle &= 0 , \\ \langle s | \hat{H}_{e-p} | d \rangle &= 0 , \end{aligned}$$

である。例えば、サイト数  $N = 18$  の場合の基底状態は  $q = +1, r_{\pi/2} = 1$  である事から、 $-s$  対称性を持った状態  $|-s\rangle$  である。従って、 $H_{e-p}$  の対称性より、この基底状態から多光子励起過程によって実現される励起状態は、1光子及び3光子励起状態は、 $+p$  対称性を持った状態  $|+p\rangle$ 、2光子及び4光子励起状態は、 $-s$  もしくは  $-d$  対称性を持った状態  $|-s\rangle$  もしくは  $|-d\rangle$  となる。

### 2.3.3 1次元系における対称性

有効ハミルトニアンの対称性

並進対称性

1次元系における  $x$  方向への並進演算子  $T_x$  は2次元の場合と同様に、

$$[T_x, P_m] = 0, \quad (2.3.27)$$

の交換関係が成り立つ。よって、

$$T_x[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] = \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.3.28)$$

を得る。従って、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は並進対称性を持つ事が示される。

回転対称性

$\pi$  回転演算子  $R_\pi$  は2重占有サイト数を変化させないので、

$$[R_\pi, P_m] = 0, \quad (2.3.29)$$

の関係が成り立つ。従って、

$$\begin{aligned} R_\pi[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] &= R_\pi[P_m(\hat{T} + \hat{V})P_m - U^{-1}P_m\hat{T}P_{m+1}\hat{T}P_m + U^{-1}P_m\hat{T}P_{m-1}\hat{T}P_m] \\ &= \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \end{aligned} \quad (2.3.30)$$

である事から、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は  $\pi$  回転対称性を持つ事が示される。

電荷共役対称性

電荷共役変換演算子  $Q$  は、ハーフフィリングの場合のみ、2重占有サイト数  $n_D$  を変化させない事から、この場合のみ、

$$Q[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] = \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.3.31)$$

を得る。従って、ハーフフィリングの場合の  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、電荷共役対称性を持つ事が示される。

スピン対称性

$\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  とスピントリフ演算子  $\Theta$  は、

$$\Theta[\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}] = \hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}, \quad (2.3.32)$$

となり、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、 $\Theta$  と交換する。

## 電子光子相互作用ハミルトニアンの特称性

## 並進対称性

$\hat{H}_{e-p}$  に並進演算子 :  $T_x$  を作用させると、

$$T_x[\hat{H}_{e-p}] = \hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.33)$$

が得られる。従って、 $\hat{H}_{e-p}$  は並進対称性を持つ事が示される。

## 回転対称性

$\hat{H}_{e-p}$  に  $\pi$  回転演算子 :  $R_\pi$  を作用させると、

$$R_\pi[\hat{H}_{e-p}] = -\hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.34)$$

が得られ、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $R_\pi$  と反交換する。

## 電荷共役対称性

$\hat{H}_{e-p}$  に電荷共役変換演算子 :  $Q$  を作用させると、

$$Q[\hat{H}_{e-p}] = -\hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.35)$$

が得られ、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $Q$  と反交換する。

## スピン対称性

$\hat{H}_{e-p}$  とスピントリップ演算子 :  $\Theta$  は、

$$\Theta[\hat{H}_{e-p}] = \hat{H}_{e-p} , \quad (2.3.36)$$

となり、 $\hat{H}_{e-p}$  は、 $\Theta$  と交換する。

 $m$ 光子励起状態の特称性

数値計算から、この論文において考察する全ての場合の基底状態は、2次元系と同様に、全運動量  $P = 0$ 、全スピン  $S = 0$  であった。従って、 $H_{e-p}$  の持つ対称性から、全運動量  $P = 0$ 、全スピン  $S = 0$  を持った状態のみが、多光子励起過程によって励起される。既約表現に関して、2次元と同様の議論により、固有値  $q = \mp 1$  を持った状態を  $|\pm\rangle$  と表わし、固有値  $r_\pi = 1, -1$  を持った状態を  $A, B$  状態と定義し、 $|A\rangle, |B\rangle$  とする。 $H_{e-p}$  の持つ対称性は、式 (2.3.35) より

$$\langle \pm | \hat{H}_{e-p} | \pm \rangle = 0 ,$$

及び式 (2.3.34) から

$$\langle A | \hat{H}_{e-p} | A \rangle = 0 ,$$

$$\langle B | \hat{H}_{e-p} | B \rangle = 0 ,$$

である。例えば、サイト数  $N = 18$  の場合の基底状態は、 $q = +1, r_\pi = 1$  である事から  $-A$  対称性を持った状態  $|-A\rangle$  である。従って、 $H_{e-p}$  の対称性より、この基底状態から多光子励起過程によって実現される励起状態は、1光子及び3光子励起状態は、 $+B$  対称性を持った状態  $|+B\rangle$ 、2光子及び4光子励起状態は、 $-A$  対称性を持った状態  $|-A\rangle$  となる。

## 第3章 光誘起相転移： ハバードモデルを用いた解析

この章では、第一のアプローチである低次元強相関電子系における光誘起相転移相に関し、ハバードモデルを用いた解析結果を述べる。このモデルは、2つの電子が同一サイトに来た場合のみ、電子間クーロン相互作用を考えるとという大幅な単純化を取り入れているが、強相関電子系の本質を記述する事ができる代表的なモデルである。

本章では、高温超伝導などで特に強い注目を集めている2次元強相関電子系における多光子励起状態の理論解析を行なう。特に、応用面からも基礎理論面からも強い興味を持たれている光誘起高温超伝導相については、集中的に議論をする。最近、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  において、光誘起高温超伝導相が観測されている [47–51]。この物質においては、光励起によって格子の緩和が起き、その結果、間接的に2次元  $\text{CuO}$  面におけるホール濃度の増大がもたらされ、超伝導相が誘起される事が分かっている。従って、この光誘起高温超伝導相は、ホールドーピングにより誘起されたものと同じ超伝導相として理解する事ができる。しかしながら、本章で考察するのは、光励起に固有な超伝導相である。

この章の詳細は、既に文献 [52–55] において発表されている。

### 3.1 解析方法

低次元強相関電子系において、励起エネルギーバンド内におけるバンド内最低エネルギー状態への緩和速度は、光励起によって生成された電荷が再結合して消滅する速度よりもはるかに速い [3]。従って、光励起状態は、各励起バンド内最低エネルギー状態へ非常に速く緩和し、この最低エネルギー状態が重要な役割を果たすと考えられる。そこで、 $m$  光子励起バンド内に存在する膨大な光励起状態のうち、第 2.3 節で議論した対称性を持ったバンド内の最低エネルギー状態の物理的性質を主に調査した。今後、 $\pm x$  の対称性を持った  $m$  光子励起バンド内最低エネルギー状態を  $|\psi_0^{(m\pm x)}\rangle$  と記す事にし、単に  $m$  光子励起状態と呼ぶ事にする。ここで、 $\pm$  は電荷共役対称性、 $x$  は回転対称性に関する記号であり、 $x = s, p, d$  (2次元系) 及び  $x = A, B$  (1次元系) である。しかしながら、この状態も、最終的には基底状態へと緩和していくが、本章ではこの緩和過程については考察しない。

本章において扱った系は、周期的境界条件を用いた2次元正方格子の付録 A で示されているサイト数  $N = 20$  のクラスターで、ハーフフィリングの場合のみを考察する。 $\omega \sim U$  の光子による2光子励起状態の  $V = 0$  の場合における有効ハミルトニアン (2.2.2) を数値厳密対角化する事により、この2光子励起状態を求めた。

有限サイズ効果を調べるために、付録 A で示されているサイト数  $N = 18$  の系についても同様の計算を行なったが、定性的に同じ結果が得られている。更に、比較のた

めに荷電粒子数が等しい4 ホールドーピング (電子数 =  $N - 4$ ) の場合の基底状態についても同様の計算を行なっている。

### 3.1.1 相関関数

ハバードモデルを用いた光誘起相転移相の物理的な特性を解析するために、以下で定義される相関関数を用いる。

スピン相関関数 :  $\eta$

$$\eta(r) = \langle \psi_0^{(m\pm x)} | \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \quad (3.1.1)$$

ここで、 $r$  はサイト  $i, j$  間の距離、 $\mathbf{S}_i$  はサイト  $i$  におけるスピン演算子である。

スタaggerドスピン相関関数 :  $\eta'$

反強磁性的スピン秩序を持った状態においては、スピン相関関数がサイト間距離に応じて、正と負の値をとる。そこで、以下のようにスタaggerドスピン相関関数を定義する。

$$\eta'(r) = \kappa \eta(r), \quad (3.1.2)$$

$$\kappa = \begin{cases} 1 & \text{if the sites } i \text{ and } j \text{ belong to the same bipartite sublattice.} \\ -1 & \text{if the sites } i \text{ and } j \text{ belong to the different bipartite sublattice.} \end{cases}$$

ここで、bipartite sublattice は、Fig. 2.4 に示す sublattice である。反強磁性的スピン秩序を持った状態に対する  $\eta'$  は、任意のサイト間距離に対して、正の有限値をとる。

$d$ 波超伝導相関関数 :  $p$

反強磁性的スピン秩序を媒介とした引力によるクーパー対は、 $d$ 波回転対称となる。そこで、低次元強相関電子系における超伝導状態を調べるために、シングレット  $d$ 波超伝導相関関数 :

$$p(r) = \langle \psi_0^{(m\pm x)} | \Delta_i^\dagger \Delta_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \quad (3.1.3)$$

を考察する。 $\Delta_i$  は以下で定義されるサイト  $i$  における  $d$ 波対演算子である。

$$\Delta_i = \sum_{\sigma} \sigma c_{i,\sigma} (c_{i+x,-\sigma} + c_{i-x,-\sigma} - c_{i+y,-\sigma} - c_{i-y,-\sigma}). \quad (3.1.4)$$

ここで、 $i \pm x$  ( $i \pm y$ ) は、サイト  $i$  の  $\pm x$  ( $\pm y$ ) 方向の最近接サイトを表わし、 $\uparrow$  ( $\downarrow$ ) スピンに対して  $\sigma = 1$  ( $-1$ ) を表わす [2]。粒子数の揺らぎを取り入れた巨視的な系を考えた場合、 $\langle \psi_0^{(m\pm x)} | \Delta_i | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle$  が0になるかどうかで、 $d$ 波超伝導状態の出現の有無を知る事ができるが、本研究においては、粒子数の揺らぎの効果を取り入れていない少数サイト系を扱っているため、 $d$ 波超伝導相関関数を式 (3.1.3) と定義し、この長距離成分が0になるかどうかを調べる事により、 $d$ 波超伝導秩序が出現しているかどうかを解析する。



逆(同)符号電荷相関関数： $\zeta(\xi)$

$$\zeta(r) = \langle \psi_0^{(m\pm x)} | d_i h_j + h_i d_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \quad (3.1.5)$$

$$\xi(r) = \langle \psi_0^{(m\pm x)} | h_i h_j + h_i h_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle. \quad (3.1.6)$$

ここで、 $h_i$  ( $d_i$ ) は、クロネッカーのデルタを用いて以下で定義されるサイト  $n$  における正符号(負符号)電荷密度演算子である。

$$h_i = \delta(n_i), \quad (3.1.7)$$

$$d_i = \delta(2 - n_i). \quad (3.1.8)$$

ハーフフィリングの場合、電荷共役対称性を持つ事から、

$$\begin{aligned} \langle \psi_0^{(m\pm x)} | d_i h_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle &= \langle \psi_0^{(m\pm x)} | h_i d_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \\ \langle \psi_0^{(m\pm x)} | h_i h_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle &= \langle \psi_0^{(m\pm x)} | d_i d_j | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \end{aligned}$$

が成立する。

## 3.2 有効ハミルトニアン の妥当性

結果を述べる前に、式(2.2.2)において  $V = 0$  とした場合のハバードモデルにおける有効ハミルトニアン  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  の妥当性について、ここで議論する。 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  を導出する際に、 $t/U \ll 1$  を仮定して、 $t/U$  に関して2次の項まで取り入れる摂動近似を行なったが、これはスピン揺らぎに対して摂動近似を行なっているわけではない。2重占有サイト数  $n_D$  一定の制限の下での全てのスピン配置の寄与を取り入れており、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、低次元強相関電子系において本質的な役割を果たす非線型スピン揺らぎを記述する事ができる。この事は、同様の近似の下で導出された  $t$ - $J$  モデルにおける様々な成果 [2,3] からも明らかであろう。

電荷揺らぎに関しては、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  の導出過程から明らかなように、 $n_D$  を2以上変化させる揺らぎの寄与は取り入れられていない。このような揺らぎの効果は、 $t/U$  が大きくなるにつれて重要になってくると考えられる。そこで、電荷揺らぎに最も敏感に影響されると考えられる電荷相関関数について、サイト数  $N = 16$  の2ホールドーピング(電子数 =  $N - 2$ )において、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  を用いて計算したものと、ハバードハミルトニアンに対して計算されたもの [56] を比較した。

$\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  とハバードハミルトニアンにおいて得られた電荷相関関数の値は、 $t/U \leq 0.025$  に対してはほぼ一致し、 $t/U < 0.0625$  に対しては相対偏差の最大値は16%であり、且つ定性的に同じ結果が得られている。

次に、自由誘導減衰の信号光強度  $I_{\text{FID}}$  も計算し、有効ハミルトニアン  $\hat{H}_{\text{eff}}$  の妥当性の評価を行った。サイト数  $N = 16$  のハーフフィリングの場合において、 $\hat{H}_{\text{eff}}$  とハバードハミルトニアンに対して  $I_{\text{FID}}$  を求め、得られた値の比較を行った。

$t/U \leq 0.03$  に対してはほぼ同じ結果が得られ、偏差は、 $t/U = 0.05$  の付近で見られるようになる。第5章で示されるように、有限サイズ効果による振動が  $I_{\text{FID}}$  に現われ

る。  $0.05 \leq t/U \leq 0.1$  に対しては、これらの重要では無い振動は、 $\hat{H}_{\text{eff}}$  によって再現されないが、全体的な振る舞いは、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  によってよく再現される。

更には、次章において扱う、式 (2.2.2) において  $V > 0$  とした場合の、拡張ハバードモデルにおける有効ハミルトニアン<sup>(m)</sup>の妥当性も検証した。サイト数  $N = 16$  のハーフフィリングの場合において、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  と拡張ハバードハミルトニアン、それぞれに対して吸収スペクトルを求め、 $t/U$  だけでなく  $V$  のパラメーター領域も含めて評価を行った。

$t/U \leq 0.04$  及び  $V/U \leq 0.2$  のパラメーター領域に対しては、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  及び拡張ハバードハミルトニアンからほぼ同じ光吸収スペクトルが得られる。 $t/U$  が 0.1 まで増加した場合は、光吸収スペクトルの差は明白になるが、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、拡張ハバードハミルトニアンと定性的に同じ光吸収スペクトルを再現する。

電荷相関関数における妥当性の評価を見ると、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  の妥当なパラメーター領域としては、 $t/U = 0.1$  までを含める事は適切では無いように考えられる。しかしながら、自由誘導減衰の信号光強度、及び光吸収スペクトルにおいては、 $t/U \leq 0.1$  のパラメーター領域に対して、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  とハバードハミルトニアンは、定性的に同じ結果を再現している事から、 $t/U \leq 0.1$  の領域に対して、 $\hat{H}_{\text{eff}}$  はハバードハミルトニアン<sup>(m)</sup>の有効ハミルトニアンとして妥当であると結論付ける事が可能である。また、 $V > 0$  の場合においては、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、 $t/U \leq 0.1$  及び  $V/U \leq 0.2$  のパラメーター領域に対しては、拡張ハバードモデルの有効ハミルトニアンとして妥当であると結論付けられる。電荷相関関数は、電荷揺らぎに対して極めて敏感に反応するために、非常に厳しい評価となっていると考えられる。

本章では、比較的  $t/U$  が大きい領域における性質も議論するが、これは  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  が妥当である領域における性質を、より  $t/U$  が大きい領域における性質を見る事により、分析するためである。

### 3.3 結果と考察

初めに、2光子励起バンド内最低エネルギー状態、すなわち2光子励起状態における全てのサイト間距離 ( $r = 1, \sqrt{2}, 2, \sqrt{5}, \sqrt{10}$ ) での、スピン相関関数  $\eta(r)$  の  $t/U$  依存性を Fig. 3.1、 $d$ 波超伝導相関関数  $p(r)$  の  $t/U$  依存性を Fig. 3.2、逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  の  $t/U$  依存性を Fig. 3.3、同逆符号電荷相関関数  $\xi(r)$  の  $t/U$  依存性を Fig. 3.4 に表わす。これらの図から、 $t/U = 0.017, 0.032, 0.049$  において、各相関関数が急激に変化している事がわかる。相変化点付近では  $t/U$  依存性を  $10^{-4}$  刻みで計算した。この小さな刻みを用いても、 $t/U = 0.032, 0.049$  における相変化は不連続であった。 $t/U = 0.017$  においては、 $2 \times 10^{-4}$  程度の幅で連続的に変化した。この事から、2光子励起状態には、4つの相が存在する事がわかる。 $t/U \leq 0.017$ 、 $0.017 < t/U < 0.032$ 、 $0.032 \leq t/U \leq 0.049$ 、及び  $0.049 < t/U$  における相をそれぞれ、第I相、第II相、第III相、及び第IV相と呼ぶ事にする。

第I相と第II相においては、全運動量  $P = 0$ 、全スピン  $S = 0$  で、 $Q$  と  $R_{\pi/2}$  の固有値は、それぞれ  $q = +1$  と  $r_{\pi/2} = 1$  である事から、 $-s$  対称性を持った状態である。第III相と第IV相においては、 $P = 0$ 、 $S = 0$  で、 $Q$  と  $R_{\pi/2}$  の固有値は、それぞれ  $q = +1$

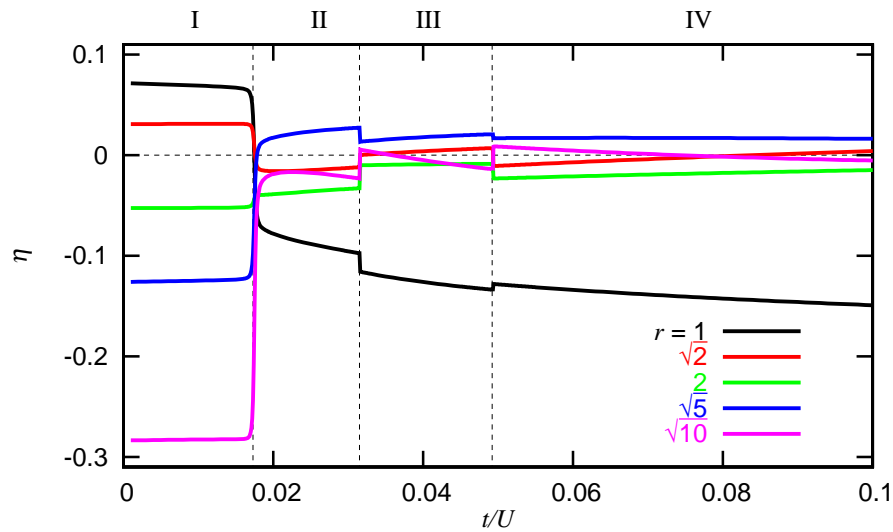


Fig. 3.1. 2光子励起状態におけるスピン相関関数  $\eta(r)$  の  $t/U$  依存性

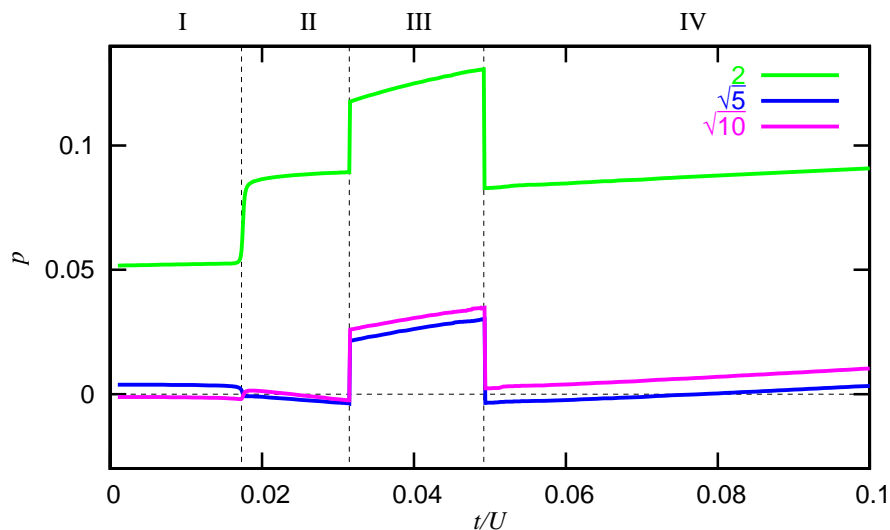


Fig. 3.2. 2光子励起状態におけるd波超伝導相関関数  $p(r)$  の  $t/U$  依存性

と  $r_{\pi/2} = -1$  であったことから、 $-d$ 対称性を持った状態である。このことから、 $t/U = 0.032$  における第II相と第III相の相変化は、異なる  $R_{\pi/2}$  の対称性を持った状態間の交差により引き起こされている事がわかる。

### 3.3.1 第I相

この小節では、第I相について議論する。Fig. 3.1より、 $r \leq \sqrt{2}$ の短距離スピン相関関数は正の値、サイト間距離  $r \geq \sqrt{5}$ の長距離スピン相関関数は負の値となっており、 $\eta(r)$ を波数ベクトル  $k$  でフーリエ変換したものは、 $|k| = 2\pi/\sqrt{20}$  にピークを持つ。この特徴的なスピン構造を模式的に合わせたのが Fig. 3.5である。強磁性的に

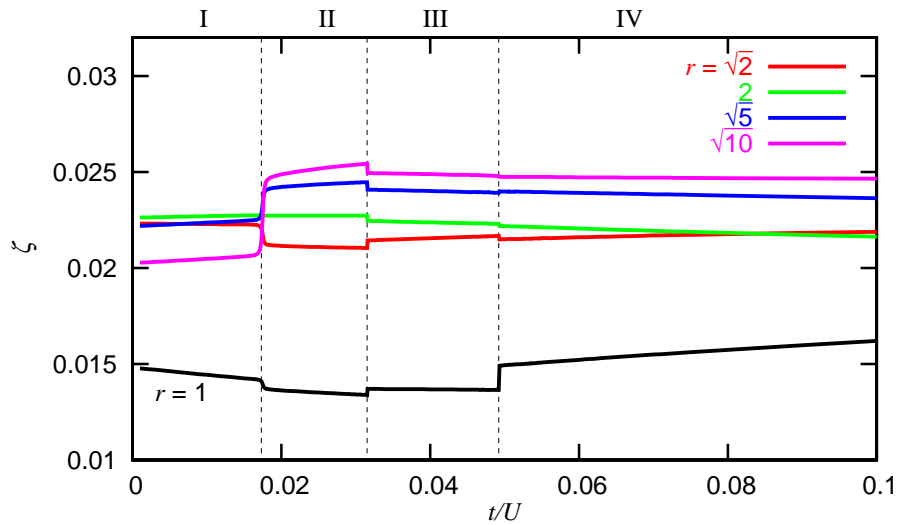


Fig. 3.3. 2光子励起状態における逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  の  $t/U$  依存性

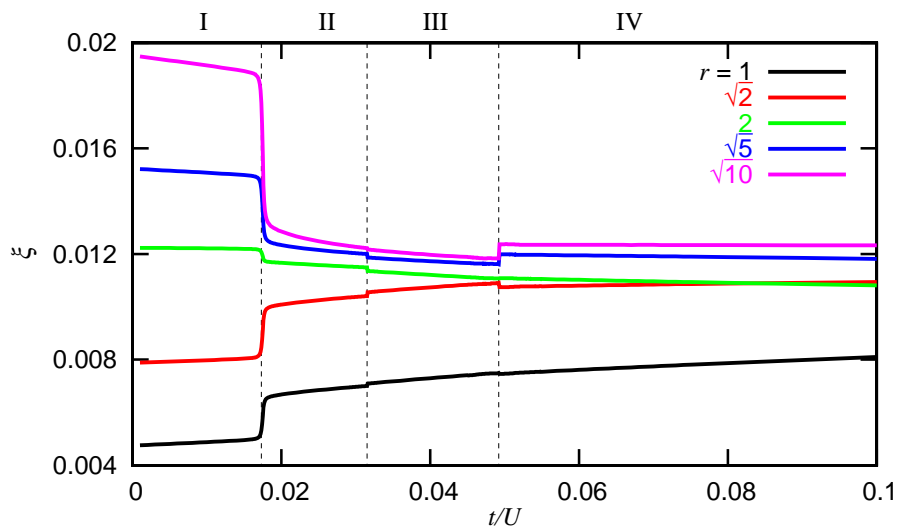


Fig. 3.4. 2光子励起状態における同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  の  $t/U$  依存性

揃ったスピンの構造がこの相が持っている事が分かる。更に、数値計算よりこの相は、スピンシングレット状態である事が示される。これらの特徴は、スピンスパイラル状態 [57] 特有のものであり、第I相は、スピンスパイラル状態であると結論づける事ができる。

逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  を、それぞれ Fig. 3.6 及び Fig. 3.7 に表わす。これらの図から分かるように、第I相においては、 $\zeta(r)$  は、 $r \geq \sqrt{2}$  に対してほぼ一定であり、 $\zeta(1)$  は、 $r \neq 1$  での  $\zeta(r)$  に比べて小さい。 $\xi(r)$  は、 $r$  の増加と共に増えている事がわかる。以上より、逆符号電荷間には到達距離  $\sqrt{2}$  以下の短距離の斥力が働いており、同符号電荷間には斥力が働いている事が分かる。更には、Fig.



Fig. 3.5. スピンスパイラル状態のスピンの構造概念図

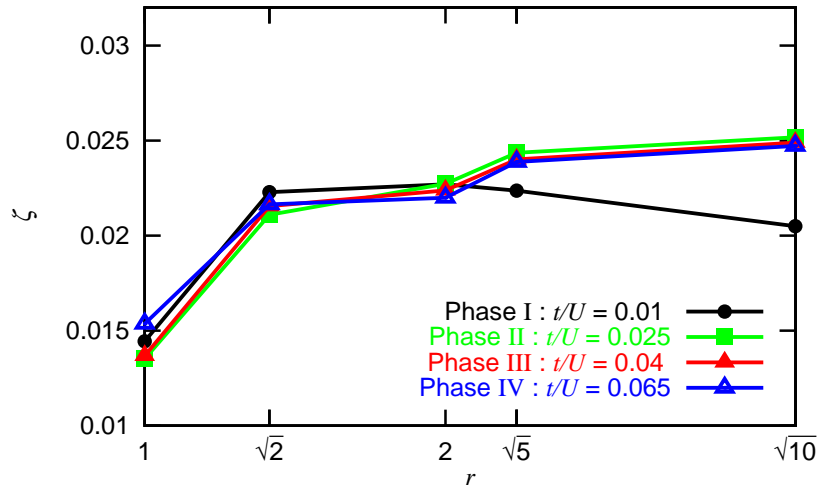


Fig. 3.6. 2光子励起状態における逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$

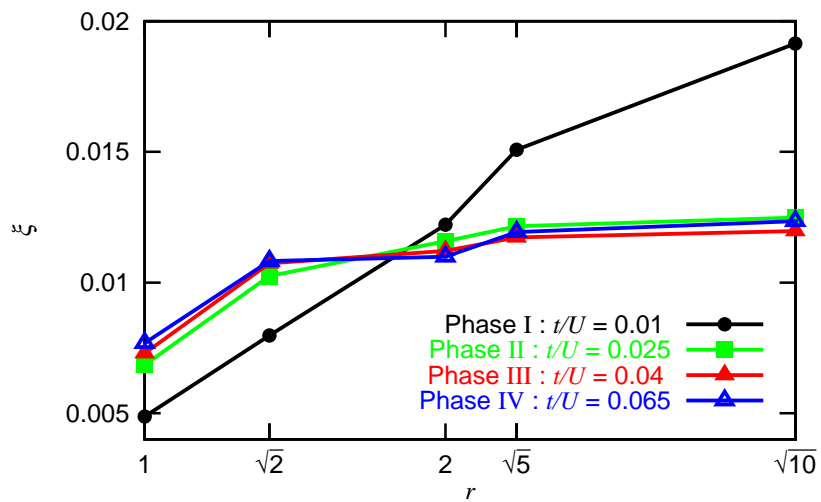


Fig. 3.7. 2光子励起状態における同符号電荷相関関数  $\xi(r)$

3.6 及び Fig. 3.7 から分かるように、第II相、第III相、第IV相における  $\zeta(r)$  及び  $\xi(r)$  は共に、第I相における  $\zeta(r)$  と、全てのサイト間距離に対して同様の振る舞いを示している事がわかる。即ち、第II相、第III相、第IV相においては、光注入された電荷間に短距離の斥力が働いており、1光子励起状態 [45] の場合とは対照的に、光注入され

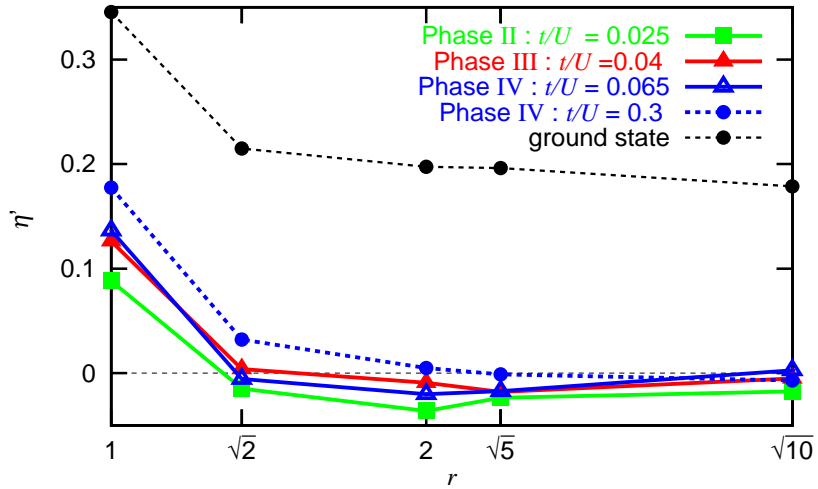


Fig. 3.8. 2光子励起状態におけるスタaggerドスピン相関関数  $\eta'(r)$

た電荷間に引力的な相互作用が働き、それらが束縛する  $t/U$  の領域は存在しない。これは、電荷間に引力的な相互作用を引き起こす反強磁性的スピン秩序が、ここで考えている2光子励起状態の全ての  $t/U$  領域において存在しないためである。

### 3.3.2 第II相

Fig. 3.8 に、2光子励起状態におけるスタaggerドスピン相関関数  $\eta'(r)$  を示す。Fig. 3.8 から、第II相における  $\eta'(r)$  は、 $r \geq \sqrt{2}$  において負となり、 $r \geq \sqrt{5}$  の長距離成分において非常に小さい負の値となっている事が分かる。以上より、第II相においては、基底状態において特徴的な長距離成分の反強磁性的スピン秩序が破壊されている事が分かる。1光子励起状態 [45] においては、同じ  $t/U$  の領域において、反強磁性的スピン秩序が保たれており、この第II相の結果は、1光子励起状態とは著しく異なっている。更に、 $\eta'(r)$  の絶対値は、サイト間距離  $r$  が増加するにしたがって減少し、0 に近づいている事から、長距離スピン秩序を持たない状態である事が分かる。

最近接サイト間のスピン相関関数  $\eta(1)$  のみは、反強磁性的スピン秩序に特徴的な負の値をとり、その絶対値は反強磁性基底状態のそれに比べて  $1/3$  程度になっているものの、比較的大きな値となっている。この事は、この相において反強磁性的スピン秩序は破壊されているが、反強磁性的スピンゆらぎは大きい事を示している。

この相における、 $r \geq \sqrt{5}$  における  $d$ 波超伝導相関関数  $p(r)$  の長距離成分は、Fig.3.2 からわかるように、ほぼ0の値をとる。この事は、この相は  $d$ 波超伝導状態ではない事を示している。

### 3.3.3 第III相

Fig. 3.8 より、第III相におけるスタaggerドスピン相関関数  $\eta'(r)$  は、第II相と同様

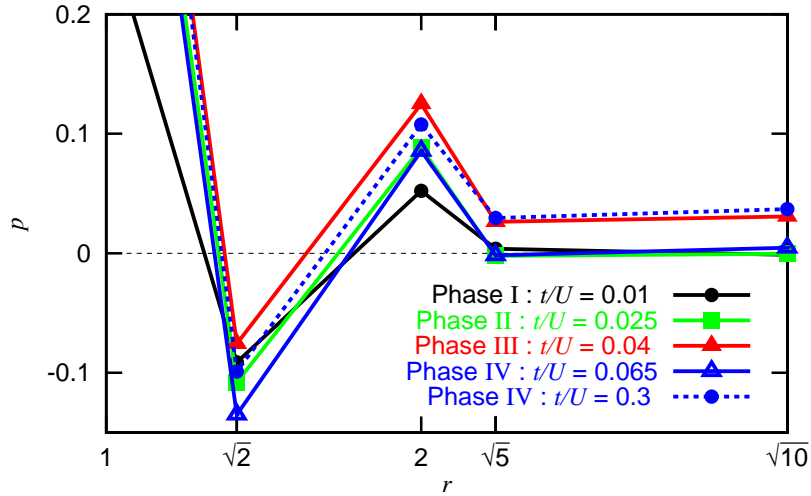


Fig. 3.9. 2光子励起状態における  $d$  波超伝導相関関数  $p(r)$

に、サイト間距離  $r \geq \sqrt{2}$  において負となり、 $r \geq \sqrt{5}$  の長距離成分において非常に小さい負の値となっている事が分かる。従って、第Ⅲ相においても、反強磁性的スピン秩序が破壊されている事が分かる。

Fig. 3.2 から分かるように、第Ⅰ相、第Ⅱ相、及び第Ⅳ相において、 $d$  波超伝導相関関数  $p(r)$  の  $r \geq \sqrt{5}$  の長距離成分がほとんど0であるのに対し、第Ⅲ相においては、その長距離成分が他の相よりもはるかに大きい値をとっている事が分かる。 $d$  波超伝導相関関数  $p(r)$  の長距離成分の振る舞いを詳しく調べるために、Fig. 3.9 に  $p(r)$  を表わす。この図から、第Ⅲ相においては、 $p(r)$  が  $r \geq \sqrt{5}$  においてほぼ一定な有限値をとっている事が分かる。扱っている系が小さいために、断定する事はできないが、これは第Ⅲ相が、 $d$  波超伝導の長距離秩序を持ち、 $d$  波超伝導状態であることを示唆している。

多光子励起状態における電荷ストライプ構造のような電荷凝集パターンを調べるためには、2体の電荷相関のみだけでは不十分であり、多体の相関も考慮する必要がある。そこで、4体の電荷相関について調べるため、全ての電荷配置の量子力学的重みを計算した。その結果、飛び抜けて大きな重みを持つ電荷配置は存在せず、この相においては特徴的な電荷の秩序を見る事はできなかった。この結果は、前述した逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  共にサイト間距離  $r \geq \sqrt{2}$  において、ほぼ一定であるという結果に一致している。

### 3.3.4 第Ⅳ相

Fig. 3.6、Fig. 3.7、及び Fig. 3.8 から、第Ⅳ相における電荷及びスピン構造は、第Ⅲ相の場合と同様である事がわかる。従って、この相においても、2光子励起によって反強磁性的スピン秩序は破壊され、長距離スピン秩序が存在しない。また、特徴的な電荷の秩序も持っていない事がわかる。

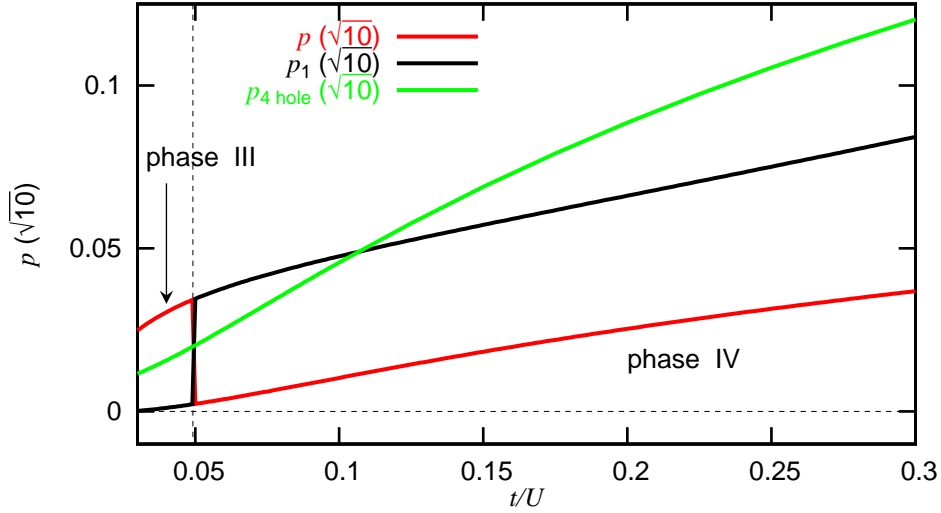


Fig. 3.10. 2光子励起バンド内の最低エネルギー状態と第一励起エネルギー状態の  $d$  波超伝導相関関数  $p(\sqrt{10}), p_1(\sqrt{10})$  の交差、及び4ホールドーピング基底状態における  $d$  波超伝導相関関数  $p_{4\text{hole}}(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性

$d$  波超伝導秩序に関しては、Fig. 3.2 に示された  $t/U$  の範囲内における  $d$  波超伝導相関関数  $p(r)$  のサイト間距離  $r \geq \sqrt{5}$  の長距離成分はほぼ0であるが、 $t/U$  の増加に伴い長距離成分も増大し、 $t/U = 0.3$  付近で第III相におけるそれとほぼ同じ大きさになる。Fig. 3.9 に示した  $t/U = 0.3$  での  $p(r)$  より、第IV相においても、 $t/U$  が大きい領域では、 $p(r)$  が  $r \geq \sqrt{5}$  において、ほぼ一定な有限の値を持っている事が分かる。また、この相における全ての相関関数は、 $t/U = 0.5$  まで連続的に変化する。以上より、第III相における同様の議論から、第IV相も  $d$  波超伝導状態であると結論付ける事ができる。

### 3.3.5 2つの $d$ 波超伝導状態の相違

ドーピングされた2次元  $t$ - $J$  モデル、もしくは強結合ハバードモデルの基底状態は、 $d$  波超伝導状態であり、高温超伝導がこの  $d$  波超伝導状態によって説明できる事が広く認められている [2-4]。この超伝導状態と、第III相、及び第IV相において現れた超伝導状態の違い、更にはこれら2つの相の間の違いについて議論する。

第IV相における2光子励起状態と、同じ  $t/U$  における4ホールドーピング基底状態のエネルギー固有値、スピン相関関数  $\eta(r)$ 、逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  は、数値誤差の範囲内で一致している。これは、第IV相における  $d$  波超伝導状態と4ホールドーピング基底状態における  $d$  波超伝導状態とが、同じ起源を持つ事を示している。また、この事は光誘起高温超伝導の可能性を示している。

第III相と第IV相の転移点  $t/U = 0.049$  において、第III(IV)相における2光子励起バンド内最低エネルギー状態のエネルギー固有値と計算を行なった全ての相関関数は、



第IV(III)相における第一励起エネルギー状態におけるこれらの量に、連続的に変化していく。それゆえ、この点における相変化は、2つの異なる  $d$  波超伝導状態の交差によるものである事が分かる。

長距離での  $d$  波超伝導相関について考察するために、Fig. 3.10 に、2光子励起バンド内の最低エネルギー状態における  $d$  波超伝導相関関数  $p(\sqrt{10})$ 、第一励起エネルギー状態における  $p_1(\sqrt{10})$ 、及び4ホールドーピング基底状態における  $p_{4\text{hole}}(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性を示す。これにより、第III相における超伝導状態の大きな  $t/U$  領域での性質を見る事ができる。

$t/U > 0.049$  において、第III相に対応する2光子励起バンド内の第一励起状態の  $p_1(\sqrt{10})$  は、 $t/U$  を増加させるにつれて連続的に増加している。この事は、この状態、即ち第III相が  $d$  波超伝導状態であるという、第3.3.3節の結論を裏付けている。第IV相の  $d$  波超伝導状態と、4ホールドーピング基底状態の  $d$  波超伝導状態は、類似した  $p(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性を示し、これらが同じ起源を持つという第3.3.4節の結論と矛盾しない。しかし、Fig. 3.10 から分かるように、第IV相における  $p(\sqrt{10})$  の値そのものは、4ホールドーピング基底状態の方が3倍程度大きい。

第III相の  $d$  波超伝導状態は、Fig. 3.10 より、第IV相もしくは4ホールドーピング基底状態の  $d$  波超伝導状態とは異なる  $p(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性を示している事が分かる。第III相の  $t/U$  領域においては、 $p(\sqrt{10})$  は、4ホールドーピング基底状態の  $p_{4\text{hole}}(\sqrt{10})$  よりも、倍程度大きい値であるが、 $t/U$  が大きい領域では、逆に第III相の  $p(\sqrt{10})$  の方が小さくなる。この事からも、第III相の  $d$  波超伝導状態は、ホールドーピングした時の基底状態の  $d$  波超伝導状態、即ち高温超伝導状態とは異なる起源を持ち、光励起状態に固有のものである事が分かる。しかし、(i) 第3.3.2節で示したように、この  $d$  波超伝導状態においては反強磁性的スピンゆらぎが大きい事、(ii)  $t/U = J/4t$  が大きくなるにつれて、 $p(\sqrt{10})$  も増加する事、から高温超伝導と同様に反強磁性的スピンを媒介とする電子間引力が、第III相の  $d$  波超伝導状態においても重要な役割を果たしていると考えられる事ができる。

## 第4章 光誘起相転移： 拡張ハバードモデルを用いた 解析

この章では、第一のアプローチに関して、拡張ハバードモデルを用いた解析結果を述べる。第3章において、同様のアプローチに対してハバードモデルを用いた解析結果を述べたが、次の理由により、拡張ハバードモデルを用いて更なる解析を行う。

ハバードモデルでは、同一サイトクーロン相互作用のみが取り入れられているが、現実の物質では、同一サイトクーロン相互作用だけではなく、異なるサイト間のクーロン相互作用が存在し、この相互作用は、正符号と負符号の電荷を束縛する効果を持っている。光励起によって、正符号と負符号の電荷が同時に生成されるため、光励起状態においては、この相互作用の寄与が重要になってくると考えられる。現に、通常の半導体におけるエキシトン状態は、特に低次元系においては、その光物性に重要な役割を果たしている [58,59]。従って、この相互作用に起因する電荷束縛効果は、低次元強相関電子系の多光子励起状態においても重要になってくると考えられる。

低次元強相関電子系における電荷束縛効果についての理論的研究から、以下の事が明らかになっている。

まず1光子励起状態における、励起電子 - ホール対に対する束縛効果について述べる。通常の半導体や、共役ポリマーなどの、弱相関もしくは中間相関系における束縛効果は、強く次元性に依存する事が知られている。次元が低くなるほど、束縛効果は強くなり、特に1次元系においては、極めて弱い異なるサイト間クーロン相互作用によっても、励起電子 - ホール対は強く束縛され、且つこの束縛状態（エキシトン状態）が基底状態からの遷移モーメントのほとんどを独占する [60–63]。これに対して、1次元強相関電子系においては、有限の値  $V/t = 2$  において、非束縛状態から束縛状態への転移が起きる事が報告されている [40–42,64]。しかし、このような1次元強相関電子系の特徴が、何に由来するのかはまだ明らかになっていない。

次に、多光子励起状態における電荷凝集状態に関してであるが、弱相関系である通常の半導体においては、2つのエキシトンが結合したバイエキシトン、及び巨視的な数の励起電子とホールが凝集した電子正孔液滴のみが安定であり、3個以上の有限個数のエキシトンが凝集した状態は不安定である事が明らかにされている [58,59]。一方、1次元有機電荷移動固体などの1次元中間相関系においては、バイエキシトン [65–68] に加え、3個以上の有限個数のエキシトンが凝集したエキシトンストリング状態が安定である事が、理論的にも実験的にも明らかになっている [69–74]。エキシトンストリング状態が安定であるためには、エキシトンにおいて、励起電子 - ホール対が強く束縛されている事が本質的であり、この事には、1次元性及びクーロン相互作用が強い事が重要である。

以上のように、低次元強相関電子系における電荷凝集状態に関しては、1次元系における1光子励起状態（1ダブルロンーホロン対）に関してのみ、理論研究がなされているが [40–42, 64]、その特徴の物理的理解は十分なものとは言えない。また、2次元系における1光子励起状態、1次元及び2次元系の多光子励起状態（多ダブルロンーホロン対）における電荷凝集状態に関しては、未だに何の結果も得られていない。そこで、本章においては、1次元及び2次元強相関電子系における多光子励起による電荷凝集状態を考察する。

この結果の詳細は後述するが、1次元及び2次元強相関電子系において、今までに得られている、エキシトン、パイエキシトン、エキシトンストリングとは、電荷の凝集の仕方、電荷の凝集機構が全く異なった状態が見出された。更に、1次元と2次元における計算結果を解析したところ、1次元及び2次元における電荷とスピンの結合の様相の違いが明らかになった。

ここで述べる解析結果は、文献 [75] で発表されている。

## 4.1 解析方法

第3.1節において述べた同様の理由により、 $m$ 光子励起バンド内に存在する膨大な光励起状態のうち、第2.3節で議論した対称性を持ったバンド内最低エネルギー状態の物理的性質を主に調査した。 $\omega \sim U$ の光子による4光子励起状態までの有効ハミルトニアン (2.2.2) を数値厳密対角化する事により、 $m \leq 4$ の $m$ 光子励起状態を求めた。本章においても、基底状態へと緩和していく緩和過程については考察しない。

### 4.1.1 相関関数

拡張ハバードモデルを用いた光誘起相転移相の物理的な特性を解析するために、第3.1.1節で与えられた相関関数に加えて、1次元の場合には、以下で定義される射影スピン相関関数も用いる。

射影スピン相関関数： $\tilde{\eta}$  [76]

$$\tilde{\eta}(r) = \langle \psi_0^{(m\pm x)} | \sum_{l=0}^{2m} \tilde{P}_l \mathbf{S}_0 \cdot \mathbf{S}_{r+l} \tilde{P}_l | \psi_0^{(m\pm x)} \rangle, \quad (4.1.1)$$

ここで、 $\tilde{P}_l$ はサイト $0, r+l$ の間に $l$ 個の2重占有サイト、もしくは空サイトがある状態からなるヒルベルト部分空間への射影演算子である。この相関関数は、相関を取るサイトの間に電荷が存在する場合に、その電荷を除外したスピン相関関数である。もし、スピン-電荷分離が成立している場合、 $\tilde{\eta}$ は分離されたスピン波動関数におけるスピン相関関数となる。

### 4.1.2 光吸収スペクトル

光誘起相転移相の物理的な特性の解析を、実験と比較可能な形で進めるために、以下で定義される光吸収スペクトルの解析も行った。

基底状態からの光吸収スペクトル： $\alpha(\omega)$

基底状態  $|\psi_0\rangle$  からの光吸収スペクトルは、 $\hat{J}|\psi_0\rangle \in S_1$  より

$$\alpha(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \left[ \langle \psi_0 | \hat{J}^\dagger \frac{1}{\omega + E_0 + i\epsilon - \hat{H}_{\text{eff}}^{(1)}} \hat{J} | \psi_0 \rangle \right], \quad (4.1.2)$$

で与えられる。ここで、 $S_1$  は2重占有サイト数が1個の全ての空間で張られるヒルベルト部分空間であり、 $E_0$  は基底状態のエネルギー固有値、 $\epsilon$  は数値計算を収束させるために導入された人工的な幅である。また、 $\hat{J} = \hat{J} \cdot e$  であり、 $e$  は光の偏光方向を表わす。古典電磁場の偏光方向は、2次元系では正方格子の一片に、1次元系では1次元鎖に平行な方向に偏光している場合を考える。

1光子励起状態  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  からの誘導光吸収スペクトル： $\alpha'(\omega)$

1光子励起状態  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  からの  $\omega \sim U$  近傍の誘導光吸収スペクトルは、

$$\alpha'(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \left[ \langle \psi_0^{(1+p)} | \hat{J}^\dagger \frac{1}{\omega + E_0^{(1+p)} + i\epsilon - \hat{H}_{\text{eff}}^{(2)}} \hat{J} | \psi_0^{(1+p)} \rangle \right], \quad (4.1.3)$$

で与えられる。ここで、 $E_0^{(1+p)}$  は  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  のエネルギー固有値である。式 (4.1.2) と (4.1.3) はランチョス法を用いた数値計算により得られる [2]。

## 4.2 最近接サイト間クーロン相互作用の値の評価

本研究において対象とする物質は、銅酸化物及び分子性結晶などである。そこで、この節では、これら物質の  $V/t$  の値に関して議論する。

近年、これらの物質の様々な物理的特性に関する長距離クーロン相互作用の効果が調査されてきており [77, 78]、最近接サイト間クーロン相互作用までを考慮したモデルにより、これら物質の電子状態を正しく記述できる事が明らかにされている。特に、1次元モデルにおいては、長距離クーロン相互作用が、エキシトンのような光励起状態の特性に、本質的な変化を与えない事が理論的に示されている [41]。これは、サイト間隔が1以外のクーロン相互作用の主要な効果を、 $V$  に繰り込む事ができるからである。

銅酸化物に対しては、比較的大きな  $V/t \sim 1.5 - 2$  と見積もられ [77, 79]、いくつかの分子性結晶に対しては、かなり大きな  $V/t \sim 4 - 5$  と見積もられる [78]。後者の値は、以降で示すように、ホロン・ダブロン・クラスター (HDC) が安定している範囲内にある。

### 4.3 2次元系の結果と考察

本節では、2次元系の結果について述べる。

本章において扱った2次元系は、周期的境界条件を用いた2次元正方格子を考え、ハーフフィリングの場合のみを考察する。 $\omega \sim U$ の光子による $m = 1 \sim 4$ 光子励起状態を記述する有効ハミルトニアン (2.2.2) を数値厳密対角化し、第2.3節で議論した対称性を持った各バンド内の最低エネルギー状態の物理的性質を主に調査した。

主に、付録Aで示されているサイト数 $N = 18$ を考察する。これは、このサイト数が、3光子励起及び4光子励起状態を、数値厳密対角化を用いて求める事が可能な最大のサイト数だからである。

有限サイズ効果をチェックするために、1光子励起状態に対しては $N = 20, 26$ 、2光子励起状態に対しては $N = 20$ で同様の計算を行った。

第3.2節における議論から、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$ は、 $t/U \leq 0.1$ 及び $V/U \leq 0.2$ のパラメーター領域において、拡張ハバードモデルの有効ハミルトニアンとして妥当であると結論付けられる。従って、本章においては、このパラメーター領域のみを考える。また、本節では非常に強い相関領域 $t/U \lesssim 0.01$ の結果は省略する。なぜなら、2次元の場合に、スピンスパイラル状態が小さな $V/t$ 領域に現われるという点を除いて、 $t/U \lesssim 0.01$ の領域と本節で述べる他の領域の間で得られた結果から、その物性の本質的な差が無いためである。

低次元強相関電子系の基底状態においては、空サイト及び2重占有サイトは存在せず、これらの対は光励起によって生成される。よって、光生成された電荷をホール及び励起電子として表現する事は適切ではなく、ホロン及びダブロンとして、より適切に表現する事ができる [2, 3]。従って、本論文における光生成された電荷を記述する際に、ホロン及びダブロンを用いて表現する。これらの表現を用いてはいるが、低次元強相関電子系において、スピン-電荷分離が完全に成立している事を主張しているのではない。

#### 4.3.1 1光子励起状態

まず初めに、1光子励起状態 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$ から議論する。Fig. 4.1 (a) 及び (b) に $t/U = 0.04$ における $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$ の逆符号電荷相関関数 $\zeta(r)$ 及びスピン相関関数 $\eta(r)$ の $V/t$ 依存性を示す。Fig. 4.1 (a) より、 $\zeta(r)$ は、サイト間距離 $r$ に対して $V/t \gtrsim 2.5$ の領域で減少関数であり、 $V/t \lesssim 1.5$ の領域で増加関数である事がわかる。これは、 $V/t \gtrsim 2.5$ においては、ホロンとダブロン間には引力的な相互作用があり、 $V/t \lesssim 1.5$ においては、ホロンとダブロンの間には斥力的な相互作用がある事を示している。このように、 $V/t$ の変化と共に、 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$ の電荷構造は、徐々にであるが著しく変化している。

$V/t \gtrsim 2.5$ の領域に注目する。なぜなら、ホロンとダブロンが引力的な相互作用をしている事から、この領域においてエキシトンの電荷束縛状態を期待できるためである。比較のために、最近接サイトに完全に束縛された電荷揺らぎの無いリジッド・ホロン・ダブロン・ペア (RHDP) の逆符号電荷相関関数 $\zeta_{\text{RHDP}}(r)$ を考え、 $t/U = 0.04, V/t = 4$ における $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$ の $\zeta(r)$ 及び $\zeta_{\text{RHDP}}(r)$ をFig. 4.2 (a) に図示する。この図から、 $r \gtrsim \sqrt{5}$

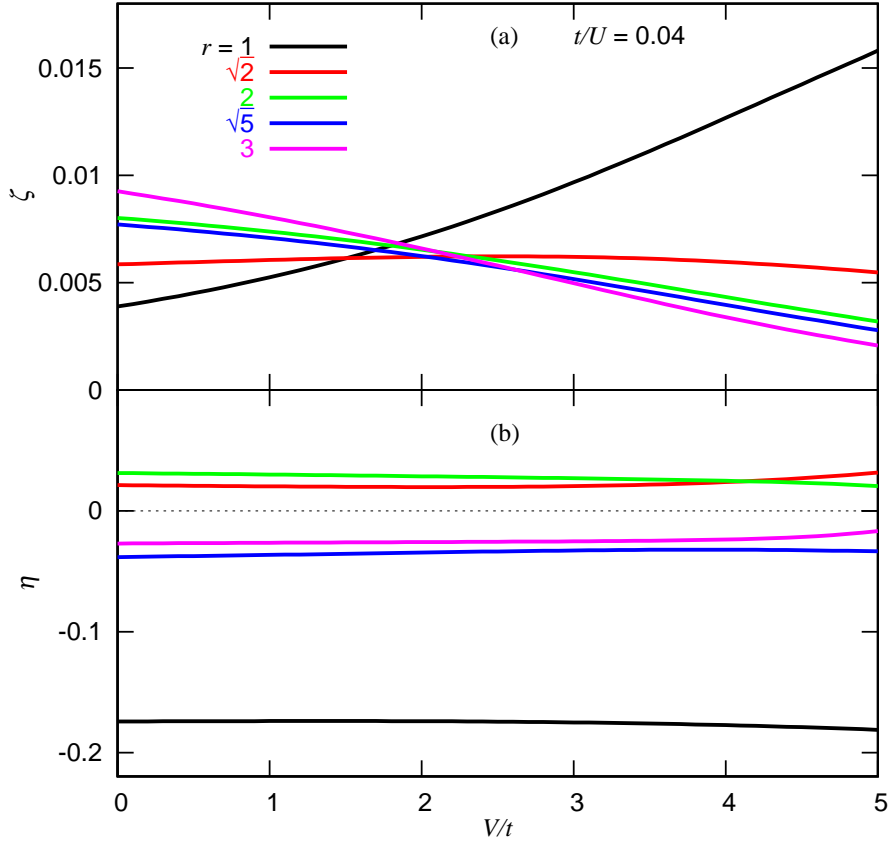


Fig. 4.1.  $t/U = 0.04$ における  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、(b) スピン相関関数  $\eta(r)$  の  $V/t$  依存性

において、 $\zeta(r)$  はほぼ一定の有限値であり、 $\zeta(1)$  は  $\zeta_{\text{RHDP}}(1)$  よりも小さい事がわかる。この  $r \gtrsim \sqrt{5}$  における長距離成分の振る舞いは、Fig. 4.1 (a) からわかるように、 $V/t = 5$  まで増加させた場合でも保たれる。これは、ホロン・ダブロン・ペア (HDP) が  $V/t \leq 5$  において束縛されていない、もしくは弱く束縛されている事を示している。サイト数  $N = 26$  においても、同様の結果が得られている。この場合、HDP が束縛される傾向がより強いが、HDP 中のホロン・ダブロン間の平均距離は、最大のサイト間距離  $\sqrt{13}$  より大きく、 $N = 26$  に対しても  $\zeta(r)$  のこの長距離的振る舞いを確認する事ができる。従って、 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  において、ホロンとダブロン相対運動に起因する電荷揺らぎは重要である事がわかる。

次に、スピン構造の詳細を調べるために、 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  のスタaggerドスピン相関関数  $\eta'(r)$  と基底状態のスタaggerドスピン相関関数  $\eta_0$  を Fig. 4.2 (b) に示す。この図から、特にサイト間距離  $r \geq \sqrt{2}$  において、 $\eta'(r)$  は  $\eta_0'$  に対して、最大でも 16% 程度の大きさであった。しかしながら、 $\eta'(r)$  の減少は、スピン構造の変化のみで引き起こされるものではない。光生成された電荷の増加に伴い、中性サイト対の数が減少し、これによっても  $\eta'(r)$  における減少が引き起こされる。これら 2 つの異なる起源により引き起こされる  $\eta'(r)$  における減少を区別し、このスピン構造の変化によらない減少を除去

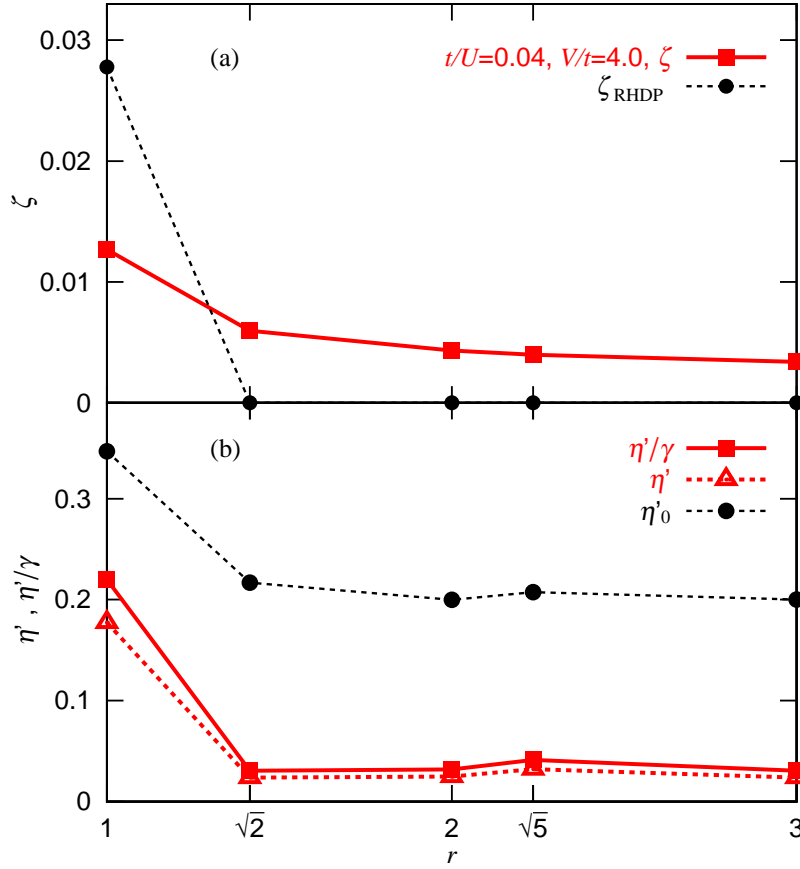


Fig. 4.2.  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  と電荷揺らぎの無い束縛されたリジッド・ホロン・ダブロン・ペア (RHDP) の逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDP}}(r)$ 、(b) スタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)$  と補正されたスタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)/\gamma$ 、及び基底状態におけるスタッガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

するために、

$$\gamma(r) = \frac{K(r)}{K_0(r)}, \quad (4.3.1)$$

を導入する。ここで、 $K(r)$  は、RHDP が形成された場合のサイト間距離  $r$  の中性サイト対数であり、 $K_0(r)$  は、基底状態における距離  $r$  の中性サイト対数である。従って、 $\eta'(r)/\gamma(r)$  は、中性サイト対数の変化に起因した  $\eta'(r)$  の減少が除去された正味のスタッガードスピン相関関数であり、これが反強磁性的スピン秩序の有無を示す事ができる。本章における 2 次元系においては、 $\eta'(r)$  の代わりに  $\eta'(r)/\gamma(r)$  による解析を行っている。Fig. 4.2 (b) に  $\eta'(r)/\gamma(r)$  も示す。この図より、 $\eta'(r)/\gamma(r)$  は、特に  $r \geq \sqrt{2}$  において、 $\eta'_0(r)$  の最大でも 20% 程度の大きさであった。これは、1 光子励起により反強磁性的スピン秩序が著しく弱められている事を示している。Fig. 4.1 (b) を見ると、 $\eta(r)$

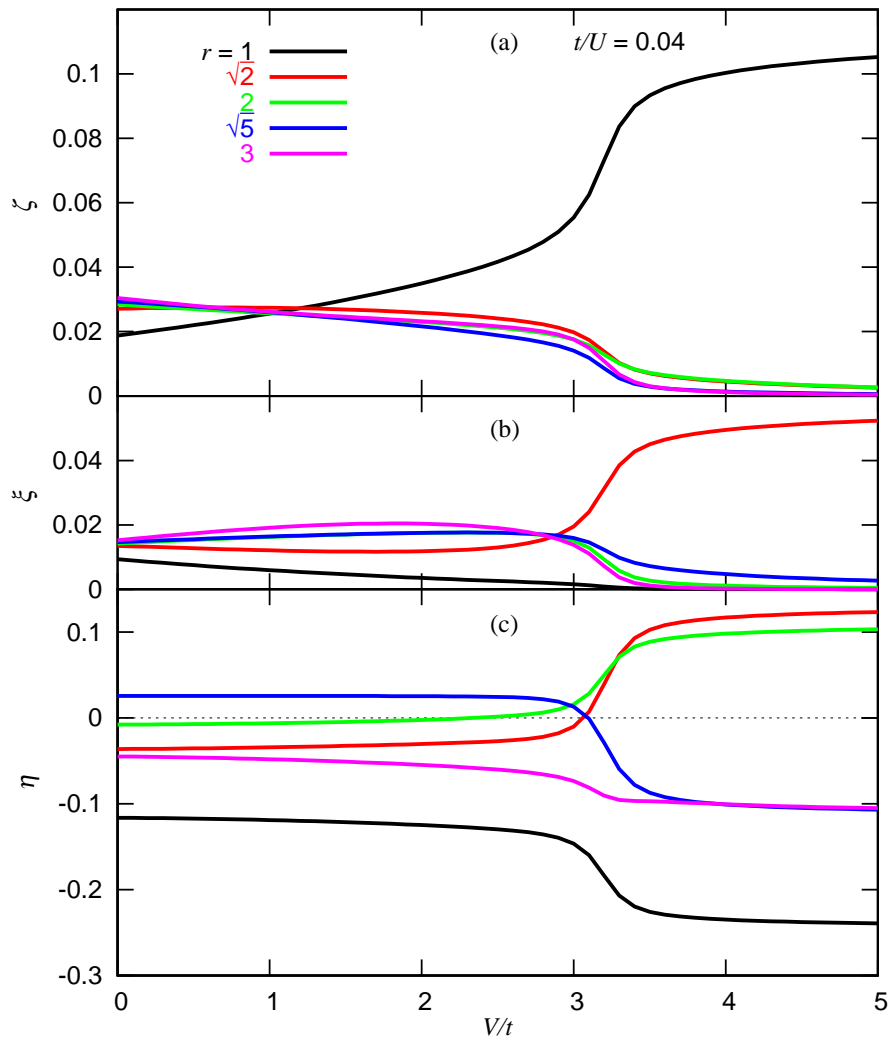


Fig. 4.3.  $t/U = 0.04$  における  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、(b) 同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、(c) スピン相関関数  $\eta(r)$  の  $V/t$  依存性

の  $V/t$  依存性は弱い事から、反強磁性的スピン秩序は、 $t/U = 0.04$  において、考察している全ての  $V/t$  領域内において、著しく弱められている事が分かる。

これらの  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  の電荷及びスピン構造に関する特徴的な振る舞いは、 $0.01 \leq t/U \leq 0.1$  の強相関領域の全てで観測される。

#### 4.3.2 2光子励起状態

この小節では、2次元2光子励起状態の結果を述べる。2光子励起状態は、 $-d$  もしくは  $-s$  の光励起可能な対称性を持っている。この  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  と  $|\psi_0^{(2-s)}\rangle$  とのエネルギーレベルの交差は、 $V/t = 2.5 \sim 3.5$  で起こっており、 $V/t$  の大きい領域においては、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の方が、より低いエネルギー固有値を持っている。

最初に、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  を考える。Fig. 4.3 (a)、(b)、及び (c) に  $t/U = 0.04$  における逆符



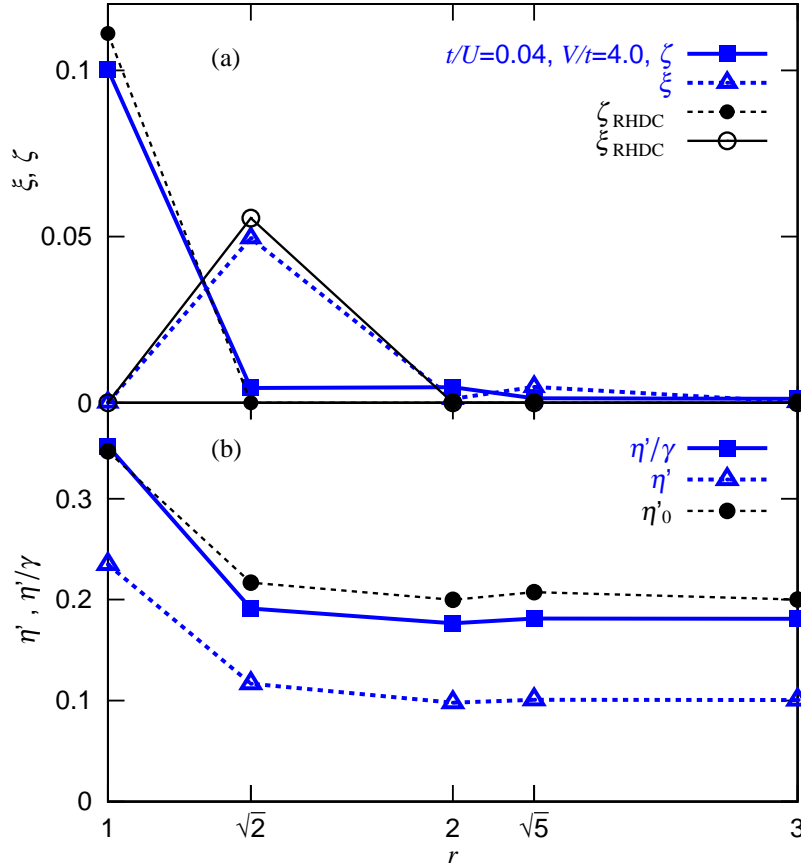


Fig. 4.4.  $t/U = 0.04, V/t = 4$ における  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  及び Fig. 4.5 (a) に示されている電荷揺らぎの無い束縛されたりジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) の逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$ 、(b) スタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)$  と補正されたスタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)/\gamma$  及び基底状態におけるスタッガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及びスピン相関関数  $\eta(r)$  の  $V/t$  依存性を示す。これらの図より、 $3 \lesssim V/t \lesssim 3.5$  の領域において、各相関関数共に急激に変化をしており、他の  $V/t$  領域における  $V/t$  の依存性は弱い事がわかる。この事から、 $V/t \lesssim 3$  に対する電子構造と  $V/t \gtrsim 3.5$  に対する電子構造とが大きく異なっており、この2つの状態間でクロスオーバー的な変化が起こっている事がわかる。

まず、 $V/t \gtrsim 3.5$  の領域を考察する。この領域における電子構造の詳細を調査するために、Fig. 4.4 (a) に  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  を図示する。比較のために、Fig. 4.5 (a) に示す2光子ホロン・ダブロン・クラスター (HDC) が形成され、電荷の相対運動に起因した電荷揺らぎの無いリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  及び同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  を併せて Fig. 4.4 (a) に示

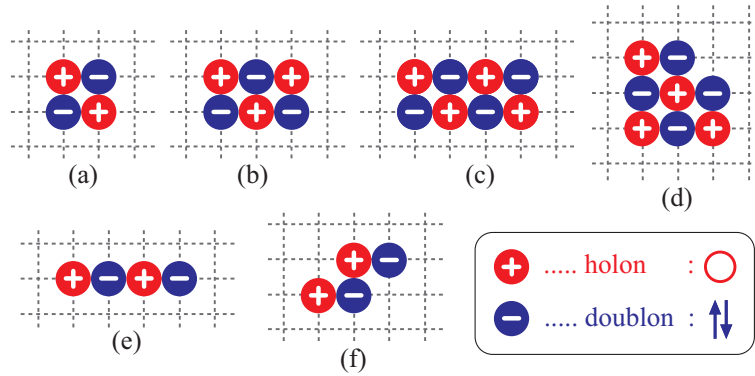


Fig. 4.5. 2次元系における、(a) ~ (d) 電荷揺らぎの無いリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) と (e), (f) 弱く束縛したホロン・ダブロン・クラスター (WHDC) の構造概念図

す。この図より、 $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  からの  $\zeta(r)$  の偏差、及び  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  からの  $\xi(r)$  の偏差は共に小さく、 $\zeta(\sqrt{5})$  と  $\zeta(3)$ ,  $\xi(2)$  と  $\xi(3)$  はほぼ 0 に等しい事がわかる。これらの結果は、RHDC の電荷配置が支配的な重みを持っており、RHDC におけるホロンもしくはダブロンが、最近接サイトに移動した場合の電荷配置だけが電荷揺らぎとして重要であり、それ以外の電荷配置の重みはほとんど 0 であることを示している。従って、ホロン・ダブロン・ペア (HDP) の場合とは対照的に、HDC においては、ホロンとダブロンが強く束縛されている。

次にスピン構造について考察する。スピン構造の詳細を調べるために、 $\eta'(r)/\gamma(r)$  及び  $\eta_0(r)$  を Fig. 4.4 (b) に図示する。ここで、 $\gamma(r)$  は 2 光子 RHDC に対する  $K(r)$  を用いた式 (4.3.1) によって与えられる。この図から、 $\eta'(r)/\gamma(r)$  が、 $r \geq \sqrt{2}$  においてほぼ一定な正の有限値をとっている事がわかる。更には、 $\eta'(1)/\gamma(1)$  は  $\eta'_0(1)$  にほぼ等しく、 $r \geq \sqrt{2}$  における  $\eta'(r)/\gamma(r)$  は、約 10% 程度  $\eta'_0(r)$  より小さいだけであった。従って、これらの結果から、HDC は反強磁性的スピン秩序と共存している事がわかる。

正味のスピン相関関数は、全ての中性サイト対に関して平均したスピン相関関数となっている。スピン構造が、HDC の形成によってどのように変更されるのかを確かめるために、支配的な電荷配置である RHDC 近傍の局所的なスピン構造を調査する。このために、 $P_{\text{RHDC}}|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  によるスピン相関関数を計算した。ここで、 $P_{\text{RHDC}}$  は Fig. 4.6 で示されるような、空間のある特定の場所に RHDC の電荷配置を持ったヒルベルト空間への射影演算子である。Fig. 4.7 からわかるように、RHDC に相関を取るサイト対が隣接する  $r = 1, \sqrt{2}$  のサイト対でのみ、スピン相関関数における重要な変化が得られた。これら距離のサイト対での基底状態におけるスピン相関関数と比較して、 $P_{\text{RHDC}}$  で射影したスピン相関関数の大きさは、 $r = 1$  では約 30% 大きく、 $r = \sqrt{2}$  では約 15% 小さい。他のサイト対での偏差は 5% 未満であった。これらの結果から、HDC が反強磁性的スピン秩序と共存する事を確認できる。スピン相関関数の重要な減少は、サイト対のごく一部でのみ観察される事から、 $\eta'(r)/\gamma(r)$  における約 10% の減少は、RHDC の生成の結果として説明する事はできない。従って、反強磁性的スピン相関の

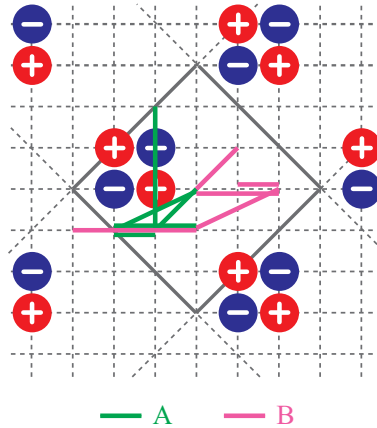


Fig. 4.6.  $P_{\text{RHDC}}|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  における RHDC の電荷配置、及び相関を取るサイト対

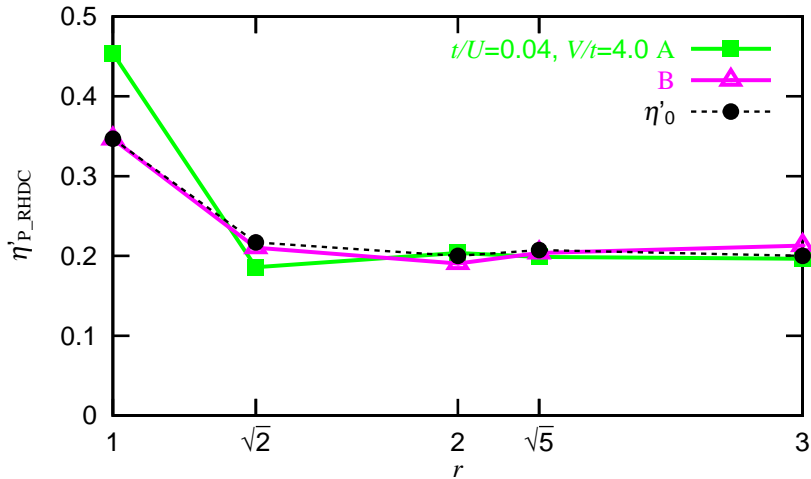


Fig. 4.7.  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $P_{\text{RHDC}}|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  による、Fig. 4.6 に示されている A のサイト対群及び B のサイト対群でのスタaggerドスピン相関関数  $\eta'_P(r)$  と基底状態におけるスタaggerドスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

微小な減少は、主としてホロン・ダブロン・クラスター (HDC) 中のホロンとダブロンの相対運動に起因した電荷揺らぎによると考えられる。

ここで、HDC の有限サイズ効果を考える。HDC の形成によって電子構造が変化する空間領域が、周期的境界条件を通じて重ならない場合には、有限サイズ効果はそれほど重要ではない。上で述べたように、HDC においては、ホロンとダブロンの最近接サイト間への相対運動のみが電荷揺らぎとして重要であり、また、スピン相関関数における重要な変化は、相関を求めるサイトが、両方ともリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) に隣接している場合のサイト対でのみ観測される。従って、前述の空間領域は、RHDC に近隣したサイトと RHDC 上のサイトであり、その空間領域は、周期的境界条件を通じても重なり合わない事がわかる。従って、有限サイズ効

果は、 $N = 18$  のクラスタ中の2光子 HDC 状態にとって重要とはならない。現実には、ほとんど同じ結果が  $N = 20$  に対しても得られている。

次に、 $V/t \leq 3$  の領域を考える。この領域においては、Fig. 4.3 (a) 及び (b) より  $\zeta(r)$  及び  $\xi(r)$  はほぼ定数である。これは、ホロンとダブロンがほとんど自由に運動している事を示しており、束縛 HDP のような電荷凝集は生じていない事がわかる。スピン構造に関しては、Fig. 4.3 (c) からわかるように、スピン相関関数  $\eta(r)$  が、反強磁性状態に特有な  $r$  依存性を示しておらず、この領域では、反強磁性的スピン秩序が破壊されている事を示している。

これら  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の電荷とスピン構造における特徴的な振る舞いは、ここで考察している強相関領域全てで観測される。また、クロスオーバー的变化をする  $V/t$  領域は、 $t/U$  にほとんど依存しない。

次に、状態  $|\psi_0^{(2-s)}\rangle$  について言及する。この状態においては、スピンシングレット HDC 状態は見出されなかったが、より大きな  $V/t$  領域においては、 $S = 1$  を持った反強磁性的スピン秩序と、Fig. 4.5 (a) で示されている2光子 HDC が共存した HDC 状態に類似した状態が見出される。その状態は、 $\hat{H}_{e-p}$  の持つ対称性により、2光子励起過程で直接励起する事はできないが、多光子励起状態の減衰過程の重要な役割を果たしているであろうと推測される。更に、 $|\psi_0^{(2-s)}\rangle$  における小さい  $V/t$  領域においては、超伝導秩序が、 $\hat{V}$  による弱いホロン-ダブロン間の引力的相互作用に打ち勝ち、強い  $d$  波超伝導秩序を持った状態が現れる。この光誘起超伝導状態に対する  $\hat{V}$  の効果については、第 4.3.6 節で述べる。

### 4.3.3 3光子及び4光子励起状態

この小節においては、 $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$ 、 $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$ 、及び  $|\psi_0^{(4-s)}\rangle$  を考える。これらの3つの状態において、考察している強相関領域全体を通して、 $V/t$  の大きい領域と小さい領域における状態間でクロスオーバーが起きている。このクロスオーバーの起きる  $V/t$  の領域は、 $t/U = 0.04$  において  $2 \lesssim V/t \lesssim 3$  である。 $t/U$  の増加に伴い、このクロスオーバーの起こる  $V/t$  の領域は、より小さな  $V/t$  の方へシフトする。これら3つの状態における  $V/t$  の小さい領域に対する電子構造は、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の電子構造に非常に似ている。

$|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  に対して、 $V/t \geq 3$  の大きい領域においては、Fig. 4.5 (b) に示されている3光子ホロン・ダブロン・クラスター (HDC) が形成される。Fig. 4.8 (a)、及び (b) に  $t/U = 0.04$ 、 $V/t = 4$  における  $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及び補正されたスタグガードスピン相関関数  $\zeta(r)/\gamma(r)$  を示す。また、Fig. 4.5 (b) に示されている電荷揺らぎの無い束縛された3光子リジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  も併せて図示する。これら相関関数は、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  において観測された HDC 状態における特徴的な振る舞いを示している。従って、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  における同様の議論から、強相関領域における大きい  $V/t$  領域においては、ホロンとダブロンは強く束縛され、電荷揺らぎの小さい3光子 HDC が形成され、この HDC は反強磁性的スピン秩序と共存している事がわかる。更には、HDC 近傍の局所的な反強磁性的スピン構

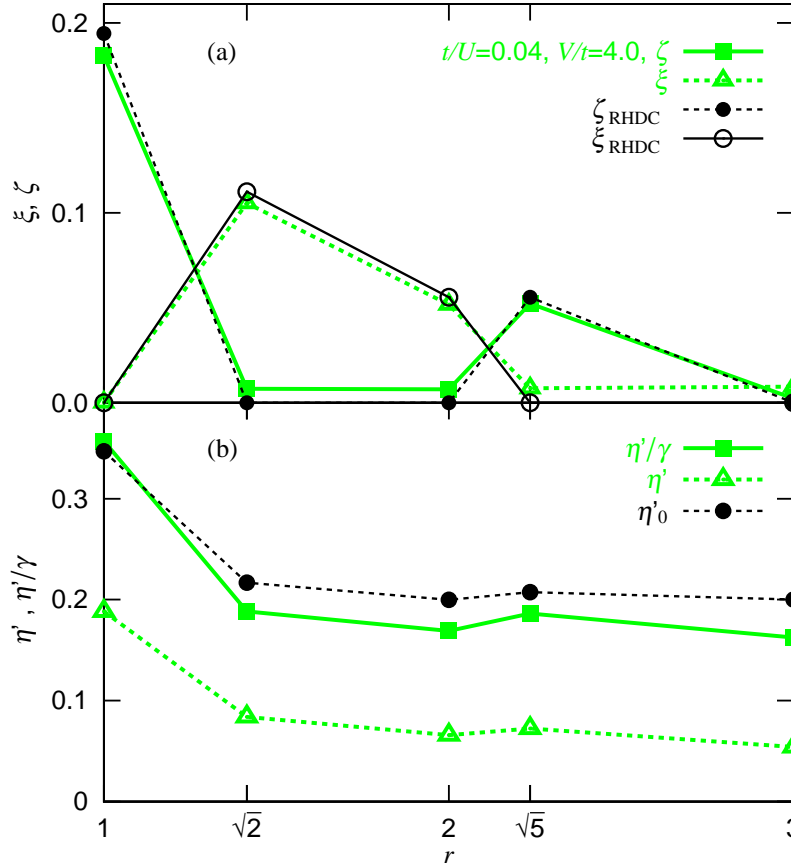


Fig. 4.8.  $t/U = 0.04, V/t = 4$ における  $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  及び Fig. 4.5 (b) に示されている電荷揺らぎの無い束縛されたりジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) の逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$ 、(b) スタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)$  と補正されたスタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)/\gamma$  及び基底状態におけるスタッガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

造は、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の場合と非常に似ている事がわかった。

4光子励起状態においては、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  及び  $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  の場合とは異なり、 $V/t$  の大きい領域において、 $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  及び  $|\psi_0^{(4-s)}\rangle$  共に、Fig. 4.5 (c) 及び (d) で示されている2つの4光子HDCが同時に形成される。これら2つの4光子励起状態に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及びスピン相関関数  $\eta(r)$  はほとんど見分けがつかない事から、以下では、 $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  の結果のみを示す。まず、2つの4光子リジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合、及び同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合を考える。 $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  及び  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  に対して同じ係数を用いる。この線形結合の係数は、線形結合からの  $\zeta(r)$  及び  $\xi(r)$  の偏差の合計を最小限にするように、最小二乗法により決定した。Fig. 4.9 (a) に  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  の  $\zeta(r)$  及び  $\xi(r)$ 、また上で求めた係数を用

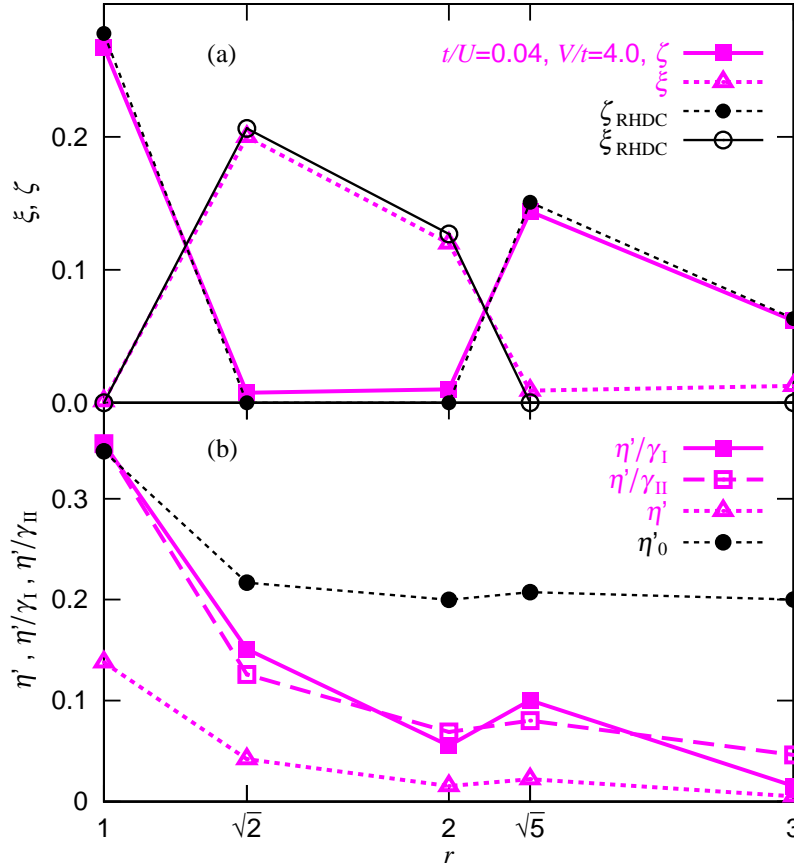


Fig. 4.9.  $t/U = 0.04, V/t = 4$ における  $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及び Fig. 4.5 (c) と (d) に示されている 2 つの電荷揺らぎの無い束縛されたリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合と同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合、(b) スタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)$  と Fig. 4.5 (c) と (d) に示されている RHDC に対するそれぞれの  $K(r)$  を用いて補正されたスタッガードスピン相関関数  $\eta'(r)/\gamma_I$  と  $\eta'(r)/\gamma_{II}$  及び基底状態におけるスタッガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

いた  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  及び  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合を図示する。Fig. 4.5 (c) 及び (d) で示されている 2 つの RHDC に対する線形結合における係数は、それぞれ 0.28 及び 0.72 である。Fig. 4.9 (a) からわかるように、 $\zeta(r)$  及び  $\xi(r)$  は、 $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  及び  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  の線形結合とそれぞれ良く一致している事から、2 つの 4 光子 HDC が同時に形成される事がわかる。

2 つの HDC が共存する事から、正味のスタッガードスピン相関関数は、この場合単純には定義する事はできない。そのため、Fig. 4.9 (b) に  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  の  $\eta'(r)/\gamma_I(r)$  及び  $\eta'(r)/\gamma_{II}(r)$  を示す。ここで、 $\gamma_I(r)$  及び  $\gamma_{II}(r)$  は、Fig. 4.5 (c) 及び (d) で示されている 2 つの RHDC に対する  $K(r)$  を用いて、それぞれ式

(4.3.1) によって与えられる。この図から、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  や  $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  とは異なり、長距離反強磁性的スピン秩序が、基底状態のそれに比べて非常に弱くなっている事がわかる。更に、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  及び  $|\psi_0^{(3+p)}\rangle$  の場合とは異なり、HDC 近傍の局所的な反強磁性的スピン秩序は、いずれの4光子HDCにおいても複雑になっている。

これらの  $|\psi_0^{(4-d)}\rangle$  における振る舞いは、有限サイズ効果によって引き起こされると考えられる。HDC の形成による電子構造が変化する領域が、 $m \leq 3$  においては重ならないが、 $m = 4$  においては重なり合う。従って、近接するHDCからの干渉効果の結果、スピン相関関数は複雑になり、この効果によって、正味のスタッガードスピン相関関数は減少すると考えられる。

### 4.3.4 電荷凝集機構

この小節においては、ホロン・ダブロン・クラスター (HDC) の電荷凝集機構について考察する。従来の半導体 [58,59]、及びエキシトンストリングが観測される1次元有機電荷移動固体 [69-72] におけるエキシトンの凝集は、エキシトン間に働く直接的クーロン相互作用に起因している。エキシトンが凝集した場合、クーロン相互作用エネルギーは減少し、光生成された電荷の運動エネルギーは増加する。正味のエネルギー変化が負である場合、凝集したエキシトン状態は安定となる。しかしながら、以下に述べるように、HDC 状態はこのように良く知られたものとは異なる新しい凝集機構によって安定化されている。

前述したように、ホロン・ダブロン・ペア (HDP) が光生成された場合、反強磁性的スピン秩序は著しく弱められる。HDP 同士が束縛してHDCを形成した場合、その弱められていた反強磁性的スピン秩序は回復する。従って、HDC 状態は、直接的クーロン相互作用と同様に、反強磁性的バックグラウンドスピンにおけるハイゼンベルグスピン間相互作用によっても安定化される事になる。

このユニークなHDC状態の安定化機構は、HDC状態におけるHDPの束縛エネルギーを解析する事で確認できる。 $m$ 光子励起状態におけるHDPの束縛エネルギーは以下のように定義される。

$$E_B^{(m)} = E^{(m-1)} + E^{(1)} - E^{(m)}, \quad (4.3.2)$$

ここで、 $E^{(m)}$  は、Fig. 4.10 に示されているように、基底状態から  $m$  光子励起最低エネルギー状態までの励起エネルギーである。 $0.02 \leq t/U \leq 0.1$  及び  $3.6 \leq V/t \leq 5$  の

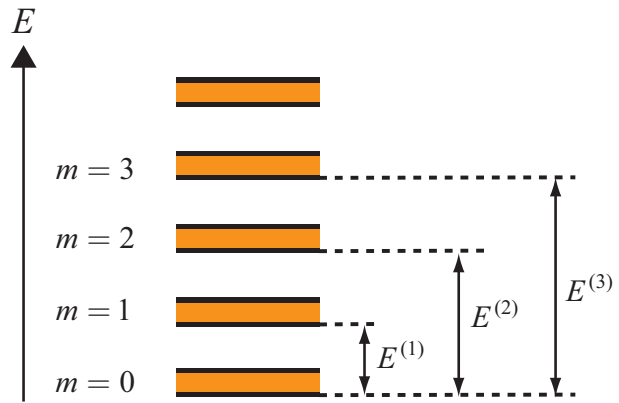


Fig. 4.10. 基底状態から  $m$  光子励起最低エネルギー状態までの励起エネルギー  $E^{(m)}$  の概念図

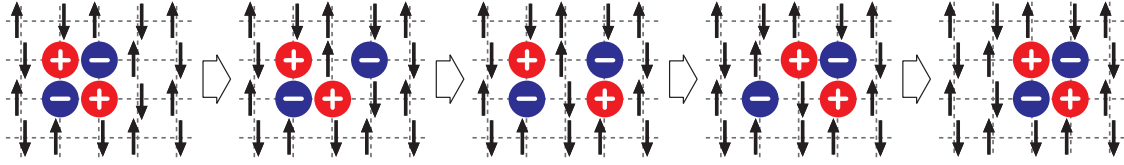


Fig. 4.11. 2光子励起状態におけるリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) の  $2m - 1$  個の異なる電荷配置を持った高エネルギー中間状態の例、及びこれに含まれる並進運動の概念図。  $m$  は光子数である。

パラメータ領域において、 $E_B^{(m)}$  は、以下の式で誤差 3% の範囲内で近似できる。

$$\begin{aligned} E_B^{(2)} &\simeq 2.65V + 3.13J - 7.59t, \\ E_B^{(3)} &\simeq 2.52V + 1.45J - 5.01t, \\ E_B^{(4)} &\simeq 2.52V + 2.30J - 4.83t. \end{aligned}$$

束縛エネルギー  $E_B^{(m)}$  は、 $V$  だけでなく  $J$  に関しても増加関数であり、 $t$  に関しては減少関数である。これは、上で述べた安定化機構と一致する。

ここで、このユニークな凝集機構を引き起こしている、反強磁性的スピン秩序の HDP 状態と HDC 状態の間での違いの起源について考察する。この問題を考察するために、ホロンとダブロンの並進運動が、2次元の場合において、局所的に反強磁性的スピン秩序を破壊する事は注意を留めておくべきである [2, 3]。

まず、HDP 状態と HDC 状態におけるホロンとダブロンの相対運動に注目する。HDP 状態においては、ホロンとダブロンが束縛していない、もしくは弱く束縛している。これに対して、全ての HDC 状態においては、ホロンとダブロンは強く束縛し、ホロンとダブロンの相対運動から生じる電荷揺らぎは小さい。これらの結果は、2つエキシトン間の結合エネルギーが、エキシトンにおける電子及びホールの結合エネルギーよりはるかに小さい従来の半導体におけるバイエキシトン [58, 59]、及び有機電荷移動固体におけるエキシトンストリング [69–72] の場合と対照的である。この HDC 状態に特徴的な振る舞いは、最近接サイト間クーロン相互作用項  $\hat{V}P_m$  から生じるホロンもしくはダブロンの束縛エネルギーを考える事によって理解する事ができる。2次元正方格子におけるホロンもしくはダブロンの束縛エネルギーは、HDP 状態では  $V$  のみであるが、HDC 状態では最低でも  $2V$  となる。この束縛エネルギーの違いにより、HDC 状態においては、ホロンとダブロンの相対運動が強く抑制される。

次に、HDP と HDC の並進運動を考える。電荷移動項により、RHDP もしくは RHDC が直接並進する事は不可能であり、Fig. 4.11 で示されるような、少なくとも  $2m - 1$  個の異なる電荷配置を持った高エネルギー中間状態を介して並進運動がなされる事になる。その結果、RHDC の並進運動は事実上禁止されているに等しい。ホロンとダブロンの相対運動に起因した電荷揺らぎは、HDC 状態においては小さいので、HDC の並進運動も著しく制限される事になる。その結果、スピン構造に対する並進運動の影響も小さくなる。一方、この電荷揺らぎは、HDP において重要であるので、HDP の



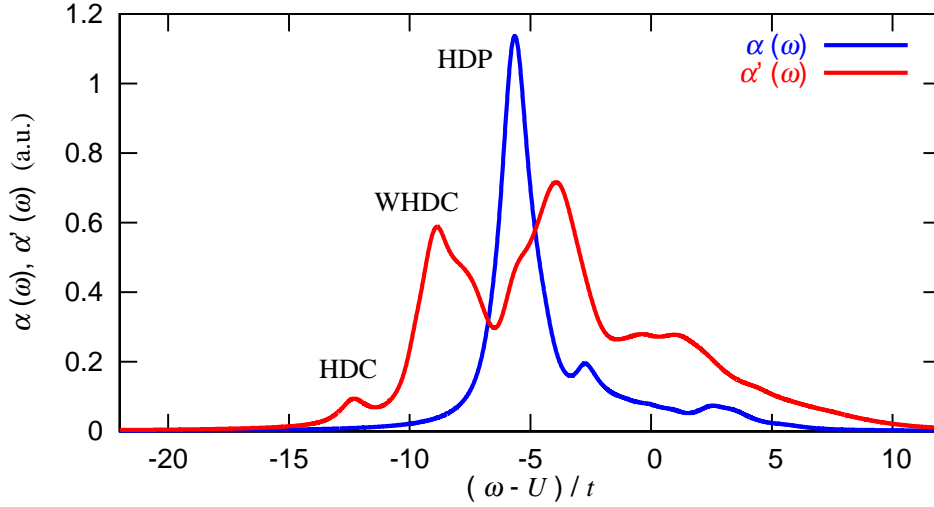


Fig. 4.12.  $t/U = 0.04, V/t = 5$  における光吸収スペクトル  $\alpha(\omega)$  と  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  からの誘導光吸収スペクトル  $\alpha'(\omega)$ 。ここで  $\epsilon = 0.5t$  としている

直接の並進は、量子電荷揺らぎとして HDP 状態において含まれる様々な電荷配置を通じて可能となる。

以上より、スピン構造に対するホロンとダブロン の並進運動の効果は、HDC 状態においては極めて小さく、HDP 状態においてははるかに重要となる事がわかる。その結果、HDP 状態よりも HDC 状態がはるかに強い反強磁性的スピン秩序を持つ事になる。

この HDC 状態のユニークな電荷凝集機構は、ホロンとダブロンがサイトに局在した電荷である事と、ホロンとダブロン自身はスピン密度を持っていないが、バックグラウンドスピンと相互作用するという事実からもたらされる。従って、この機構は、2次元強相関電子系において光生成された電荷のエキゾティックな性質の現れであるという事ができる。

#### 4.3.5 光吸収スペクトル

Fig. 4.12 に、基底状態からの光吸収スペクトル  $\alpha(\omega)$ 、及び  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  からの誘導光吸収スペクトル  $\alpha'(\omega)$  を示す。ここで、用いたパラメーターは  $t/U = 0.04, V/t = 5$  である。ここで  $V/t = 5$  としているのは、以下で述べる特徴が、より大きな  $V/t$  領域を見る事によって明確となるためである。

この図から、 $\alpha(\omega)$  において、周波数  $\omega_{\text{HDP}}$  に、HDP と表示されている大きなピークがある事がわかる。このピーク位置付近のエネルギー固有値を持ついくつかのエネルギー固有状態に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、及びスピン相関関数  $\eta(r)$  を計算したところ、このピークには、 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  を含む多くのエネルギー固有状態が寄与しているホロン・ダブロン・ペア (HDP) 状態への励起によるものである事がわかった。更には、これらのエネルギー固有状態の電荷及びスピン構造が、 $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  に非常に似ている事がわかった。従って、この主要なピークは、束縛されていない HDP の生成により

生じたピークである。

これとは対照的に、 $\alpha'(\omega)$  においては、3つの主要な構造：振動数  $\omega_{\text{HDP}}$  近傍の最大のピーク、振動数  $\omega_{\text{HDP}} - E_{\text{B}}^{(2)}$  近傍の HDC と記された最も低いピーク、振動数  $\omega_{\text{HDP}} - E_{\text{B}}^{(2)}/2$  近傍の WHDC と記されたピーク、を持っている。これらのピーク位置近傍に対応する固有状態に対する  $\zeta(r)$ 、 $\xi(r)$  及び  $\eta(r)$  を計算した。これら相関関数とピーク位置を解析したところ、振動数  $\omega_{\text{HDP}}$  近傍の  $\alpha'(\omega)$  において最大のピークは、さらなる自由な HDP 生成によるピークであり、HDC と記されているピークは、ホロン・ダブロン・クラスター (HDC) 状態への遷移によるピーク、WHDC と記されているピークは、Fig. 4.5 (e) 及び (f) に示されている弱く束縛した HDC 状態への遷移によるピークである事がわかった。

$|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  に非常に良く似た励起状態が、基底状態からの遷移モーメントをほとんど独占しているので、HDC の光生成から生じる  $\alpha'(\omega)$  における特徴的な振る舞いは、ポンプ-プローブスペクトルや多光子吸収スペクトルにより観測可能である事が期待できる。また、ポンプ光強度をより大きくする事で、3光子以上の多光子 HDC 状態の検証も可能であると考えられる。

#### 4.3.6 光誘起超伝導状態における $\hat{V}$ の影響

本小節では、第 4.3.2 節の最後に述べた光誘起超伝導状態に対する  $\hat{V}$  の効果について述べる。ここで述べる結果に関しては、 $V = 0$  とした場合のハバードモデルとの比較検討を行うために、付録 A で示されているサイト数  $N = 20$  の周期的境界条件を課した 2次元正方格子を用いる。

本小節の内容の一部は、文献 [80, 81] で既に発表されている。

第 3 章において、ハバードモデルを用いた解析から、2光子励起バンド内最低エネルギー状態においては、4つの異なる相が存在し、第 III 相と第 IV 相は2つの異なる起源を持った  $d$  波超伝導状態である事を明らかにした。本小節では、第 III 相と第 IV 相の  $t/U$  領域を考える。Fig. 4.13 において、 $N = 20$  における最大のサイト間距離  $r = \sqrt{10}$  における  $V/t = 0, 0.05$  での  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  の  $d$  波超伝導相関関数  $p(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性を示す。この図からわかるように、 $\hat{V}$  の導入により、 $p(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性は連続的になり、相変化は見られなくなる。また、 $V/t$  をわずかに入れただけで、相転移付近で  $p(\sqrt{10}) < 0$  となり、 $d$  波超伝導状態が破壊されているように見える。

第 3.3.5 節で、 $V = 0$  での 2光子励起バンドには、2つの  $d$  波超伝導状態  $|\psi_{\text{III}}\rangle$  と  $|\psi_{\text{IV}}\rangle$  が存在し、第 III 相 (第 IV 相) においては  $|\psi_{\text{III}}\rangle$  ( $|\psi_{\text{IV}}\rangle$ ) がバンド内最低エネルギー状態、 $|\psi_{\text{IV}}\rangle$  ( $|\psi_{\text{III}}\rangle$ ) がバンド内第一励起エネルギー状態となっており、第 III 相から第 IV 相への変化は、2つの超伝導状態  $|\psi_{\text{III}}\rangle$  と  $|\psi_{\text{IV}}\rangle$  の交差、即ち、2光子励起バンド内最低エネルギー状態と第一励起エネルギー状態の交差によるものである事を明らかにした。そこで、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  だけでなくバンド内第一励起エネルギー状態  $|\psi_1^{(2-d)}\rangle$  も考察し、これらの状態において、 $|\psi_{\text{III}}\rangle$  及び  $|\psi_{\text{IV}}\rangle$  の占める重み

$$C_{\lambda}^i = \langle \psi_{\lambda} | \psi_i^{(2-d)} \rangle, \quad (4.3.3)$$

を考察する。ここで、 $i = 0, 1$ 、 $\lambda = \text{III}, \text{IV}$  である。 $t/U = 0.04$  (第 III 相) における  $|C_{\lambda}^i|^2$

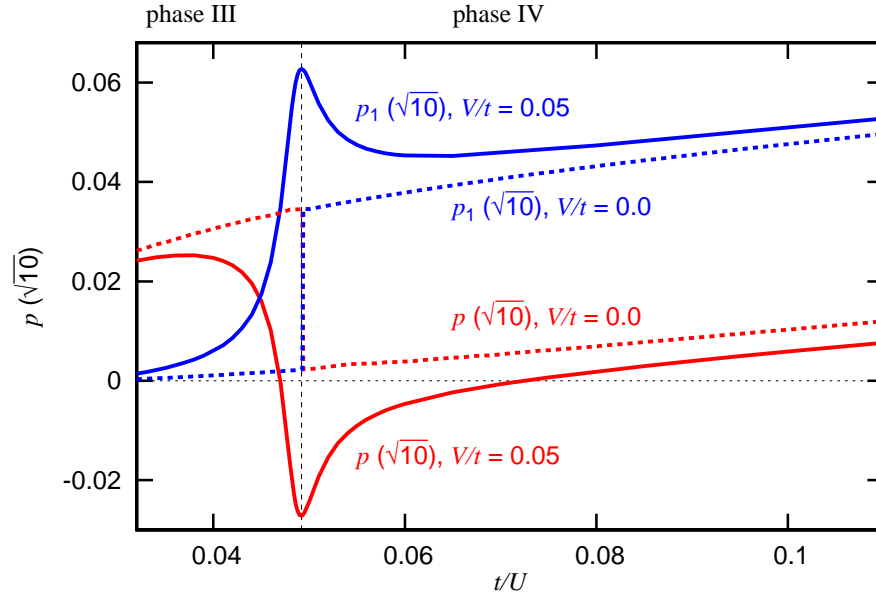


Fig. 4.13.  $V/t = 0, 0.05$  でのサイト数  $N = 20$  の最大サイト間距離  $\sqrt{10}$  における、2光子励起バンド内最低エネルギー状態の  $d$  超伝導相関関数  $p(\sqrt{10})$  と2光子励起バンド内第一励起エネルギー状態の  $d$  超伝導相関関数  $p_1(\sqrt{10})$  の  $t/U$  依存性

の  $V/t$  依存性を Fig. 4.14 に示す。この図から、 $V/t \lesssim 1$  の領域においては、

$$|C_{\text{III}}^i|^2 + |C_{\text{IV}}^i|^2 \simeq 1, \quad (4.3.4)$$

$$|C_{\text{IV}}^i|^2 \simeq |C_{\text{III}}^{1-i}|^2, \quad (4.3.5)$$

の関係が得られる。この結果から、 $V/t \lesssim 1$  の領域に対して、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  と  $|\psi_1^{(2-d)}\rangle$  は、 $V = 0$  において見出されていた2つの異なる超伝導状態  $|\psi_{\text{III}}\rangle$  と  $|\psi_{\text{IV}}\rangle$  の線形結合で与えられると近似できる事がわかる。即ち、

$$|\psi_0^{(2-d)}\rangle \simeq A |\psi_{\text{III}}\rangle + B |\psi_{\text{IV}}\rangle, \quad (4.3.6)$$

$$|\psi_1^{(2-d)}\rangle \simeq B |\psi_{\text{III}}\rangle - A |\psi_{\text{IV}}\rangle, \quad (4.3.7)$$

となる。ここで、定数  $A, B$  は、 $A \sim C_{\text{III}}^0 \sim C_{\text{IV}}^1$ ,  $B \sim C_{\text{IV}}^0 \sim C_{\text{III}}^1$  である。これらの状態間の干渉効果の結果、

$$\begin{aligned} p(r) &= \langle \psi_0^{(2-d)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_0^{(2-d)} \rangle \\ &\simeq |A|^2 \langle \psi_{\text{III}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{III}}^{(2)} \rangle + |B|^2 \langle \psi_{\text{IV}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{IV}}^{(2)} \rangle - (A^* B \langle \psi_{\text{III}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{IV}}^{(2)} \rangle \\ &\quad + c.c.), \end{aligned} \quad (4.3.8)$$

$$\begin{aligned} p_1(r) &= \langle \psi_1^{(2-d)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_1^{(2-d)} \rangle \\ &\simeq |A|^2 \langle \psi_{\text{III}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{III}}^{(2)} \rangle + |B|^2 \langle \psi_{\text{IV}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{IV}}^{(2)} \rangle + (A^* B \langle \psi_{\text{III}}^{(2)} | \Delta_n^\dagger \Delta_m | \psi_{\text{IV}}^{(2)} \rangle \\ &\quad + c.c.), \end{aligned} \quad (4.3.9)$$

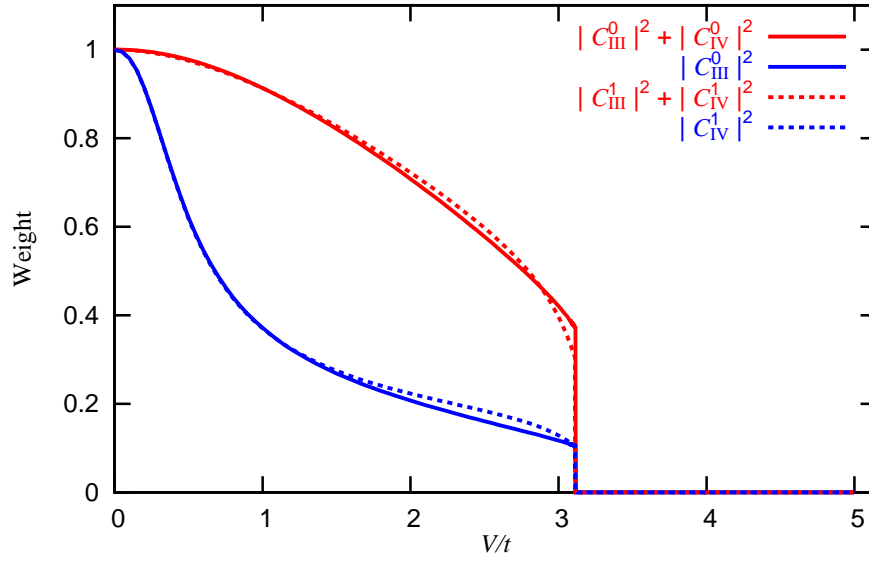


Fig. 4.14.  $t/U = 0.04$  における重み  $|C_{\text{III}}^0|^2$ ,  $|C_{\text{III}}^0|^2 + |C_{\text{IV}}^0|^2$ ,  $|C_{\text{IV}}^0|^2$  及び  $|C_{\text{III}}^1|^2 + |C_{\text{IV}}^1|^2$  の  $V/t$  依存性

となる。Fig. 4.13 で見られるように、 $\hat{\nu}$  の導入により、 $p_1(r)$  は強く増加させられている一方、 $p(r)$  は強く減少している。この事は、 $p(r) < 0$  であったとしても、 $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  が超伝導状態である事を示唆しており、超伝導相は弱い最近接サイト間クーロン相互作用の存在下で残存する事がわかる。

一方、 $V/t$  の増加に伴い、2つの超伝導状態の重み  $|C_{\text{III}}^i|^2 + |C_{\text{IV}}^i|^2$  は減少し、不連続変化が転移点  $V_c/t$  で生じる。これらの重み、及び  $d$  波秩序パラメーターは、 $V/t > V_c/t$  の領域においてほとんど0となる事から、超伝導状態は強い最近接サイト間クーロン相互作用によって破壊される。 $V/t > V_c/t$  においては、第4.3.2節で述べた反強磁性的スピン秩序と共存する HDC 状態が形成される事になる。

## 4.4 1次元系の結果と考察

2次元系と1次元系における電荷凝集機構の本質的な違いを見出すために、本節から1次元系の解析結果に移る。本節で見られるように、スピン間相互作用の役割が、2次元系と1次元系の間で反対となる事が示される。

本章において扱った1次元系は、周期的境界条件を用いた1次元鎖を考え、ハーフフィリングの場合のみを考察する。2次元の場合と同様に、 $\omega \sim U$  の光子による1~4光子励起状態を記述する有効ハミルトニアン (2.2.2) を数値厳密対角化し、第2.3節で議論した対称性を持った各バンド内の最低エネルギー状態の物理的性質を主に調査した。

主に、付録Aで示されているサイト数  $N = 18$  を考察する。これは、2次元の場合と同様に、このサイト数が、3光子励起及び4光子励起状態を、数値厳密対角化を用

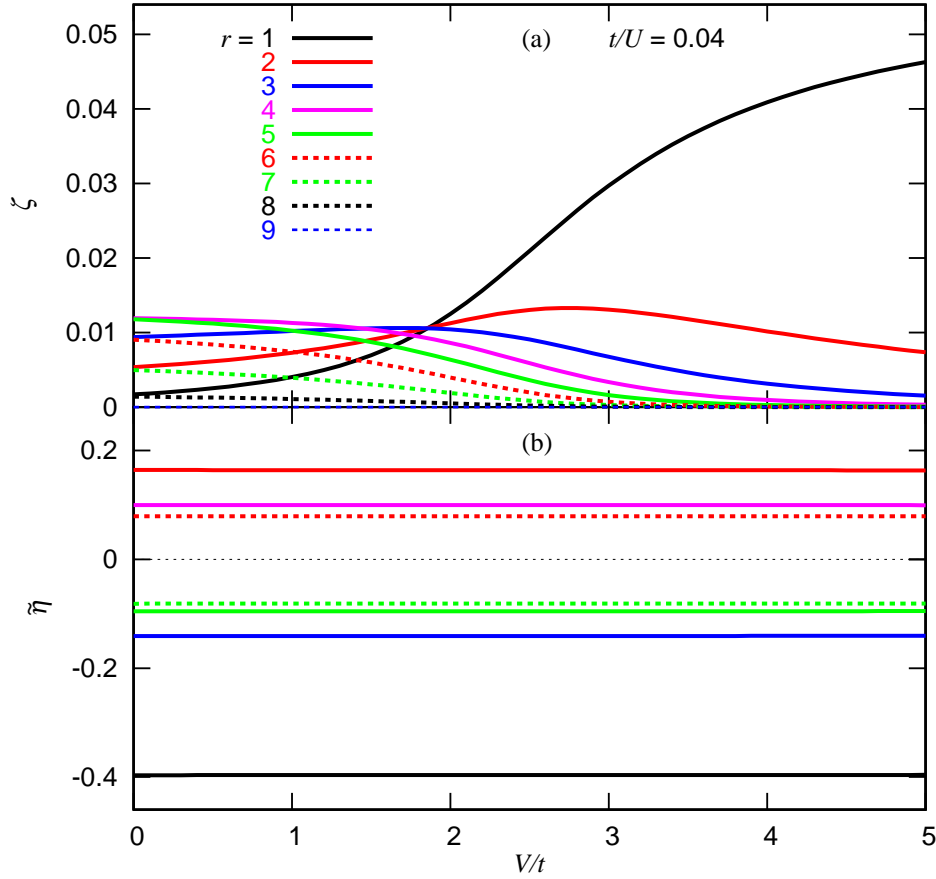


Fig. 4.15.  $t/U = 0.04$  における  $|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、(b) 射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  の  $V/t$  依存性

いて求める事が可能な最大のサイト数だからである。

有限サイズ効果をチェックするために、1光子励起状態に対しては  $N = 22, 26$ 、2光子励起状態に対しては  $N = 22$  で同様の計算を行った。

本節においても、2次元の場合と同様に、 $\hat{H}_{\text{eff}}$  が妥当なパラメーター領域のみを考え、非常に強い相関領域  $t/U \lesssim 0.01$  の結果は省略する。

#### 4.4.1 1光子励起状態

この小節では、1次元における1光子励起状態  $|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  を考察する。Fig. 4.15 (a) 及び (b) に、 $t/U = 0.04$  における逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  の  $V/t$  依存性を示す。ただし、1光子励起状態は、2つの帯電したサイトを持つので、周期的境界条件の下、 $\tilde{\eta}(r)$  は、 $r \geq 8$  に対して定義をする事ができない。

Fig. 4.15 (a) を見ると、 $V/t \sim 2$  を境に、 $V/t$  の小さい領域と大きい領域に対する電子構造が変化している事がわかる。そこで、Fig. 4.16 (a) 及び (b) に、 $t/U = 0.04$ 、 $V/t = 1, 4$  における逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び射影スタガードスピン相関

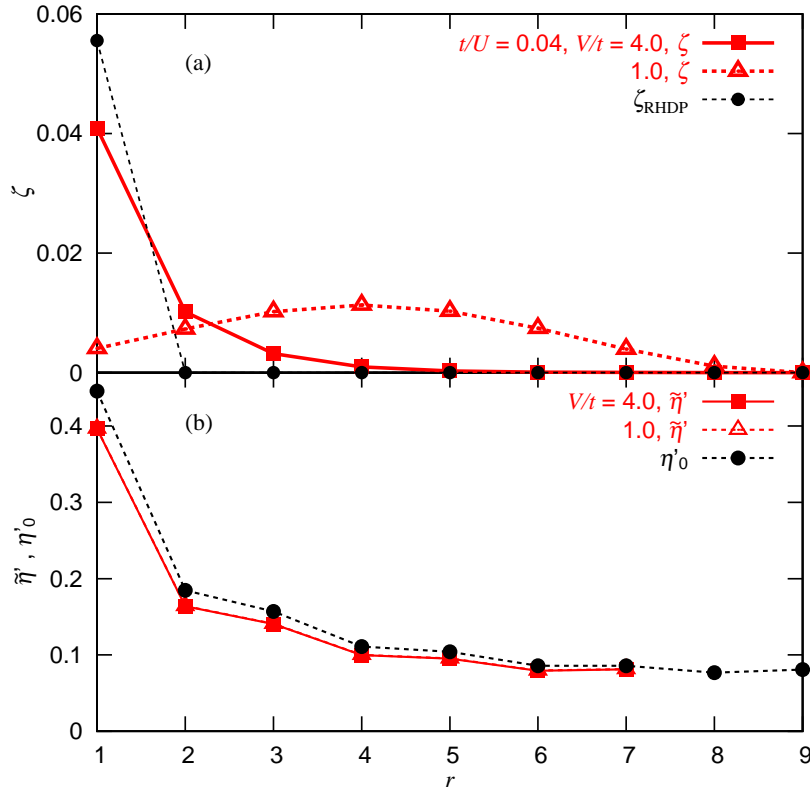


Fig. 4.16.  $t/U = 0.04$ ,  $V/t = 1, 4$ における  $|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  及び電荷揺らぎの無い束縛されたリジッド・ホロン・ダブロン・ペア (RHDP) の逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDP}}(r)$ 、(b) 射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  及び基底状態における射影スピン相関関数  $\eta_0(r)$

関数  $\tilde{\eta}(r)$  を示し、比較のために、電荷揺らぎの無い完全に束縛された RHDP における逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDP}}(r)$  も併せて図示する。

Fig. 4.16 (a) より、 $V/t \lesssim 2$  においては、 $\zeta(r)$  は  $r = 4$  周辺にブロードなピークを持ち、 $r$  依存性が弱い事がわかる。これは、ホロンとダブロンがほぼ独立に運動しており、この  $V/t$  領域においては、ホロン・ダブロン・ペア (HDP) が束縛されていない事を示している。これに対し、 $V/t \gtrsim 3$  の領域においては、 $\zeta(r)$  は減少関数であり、 $r \geq 5$  の長距離成分はほとんど 0 である。この事は、2次元の場合とは対照的に、 $V/t \gtrsim 3$  の領域で HDP が束縛される事を示している。この結果は、以前に得られた結果と一致している [40–42, 64]。

Fig. 4.16 (b) を見ると、 $\tilde{\eta}(r)$  は反強磁性的スピン秩序を持った状態に特徴的な  $r$  依存性を示しており、 $\tilde{\eta}(r)$  の大きさは、 $\eta_0(r)$  より減少はしているが、その偏差は 12% 以内である。これは、2次元の場合とは対照的に、反強磁性的スピン秩序の強さが、1光子励起によってもほとんど変化しない事を示している。更には、Fig. 4.15 (b) より、電荷構造が劇的に変化しているにも関わらず、 $\tilde{\eta}(r)$  は、考察している  $V/t$  の全ての領域において、ほぼ  $V/t$  に独立である事がわかる。1次元系において、 $t/U \leq 0.1$  の領域に

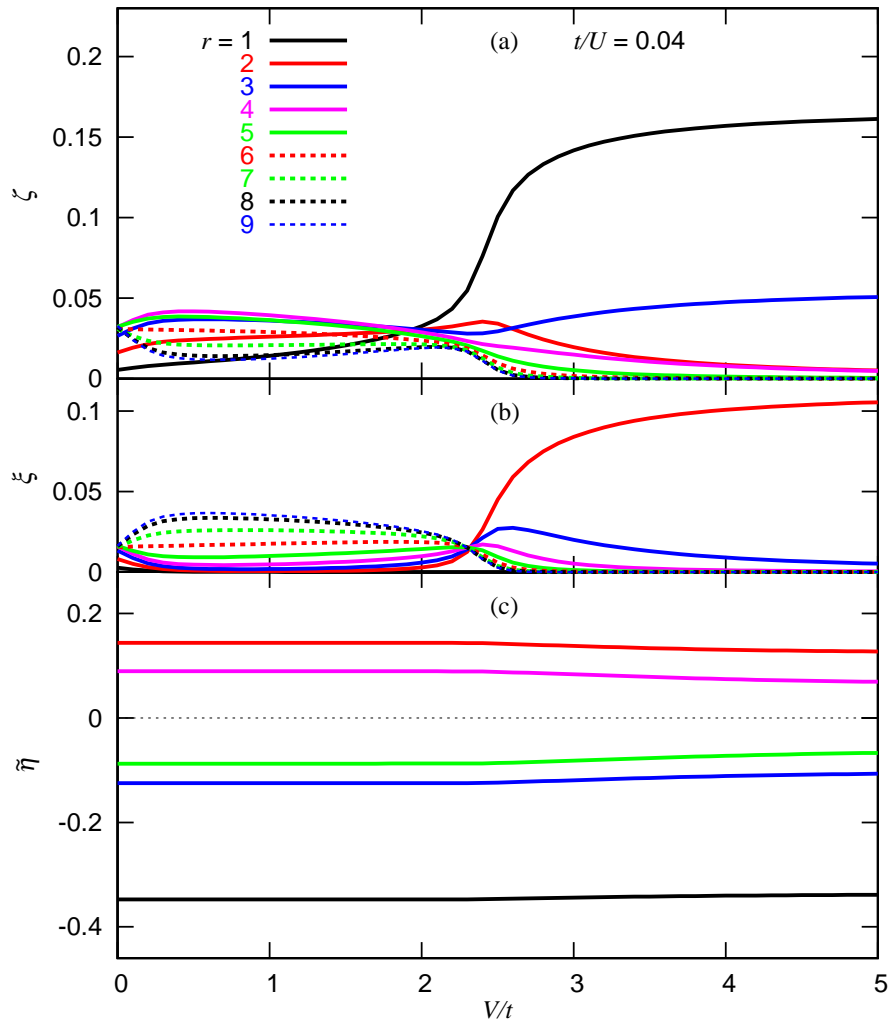


Fig. 4.17.  $t/U = 0.04$  における  $|\psi_0^{(2-A)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、(b) 同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及び (c) 射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  の  $V/t$  依存性

対しては、 $V/t$  が約 10 まで増加した場合でさえ、スピン-電荷分離がほぼ厳密に成立する。 $\tilde{\eta}(r)$  が  $V/t$  に対してほぼ不変である事は、このスピン-電荷分離に由来している。

これらの特徴的な振る舞いは、ここで考察している強相関領域全てで観測される。また、 $t/U$  の増加とともに、HDP が束縛される  $V/t$  の領域はわずかに減少する。

#### 4.4.2 多光子励起状態

多光子励起状態  $|\psi_0^{(2-A)}\rangle$ 、 $|\psi_0^{(3-B)}\rangle$ 、及び  $|\psi_0^{(4-A)}\rangle$  に対して同じ結論が得られた事から、この小節においては、 $|\psi_0^{(2-A)}\rangle$  に対する結果のみを示す。

Fig. 4.17 (a)、(b) 及び (c) に  $t/U = 0.04$  での  $|\psi_0^{(2-A)}\rangle$  に対する逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$ 、同符号電荷相関関数  $\xi(r)$  及び射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  の  $V/t$  依存性を示す。ここで、 $|\psi_0^{(2-A)}\rangle$  においては、 $\tilde{\eta}(r)$  は  $r \geq 6$  に対して定義する事ができない。Fig. 4.17

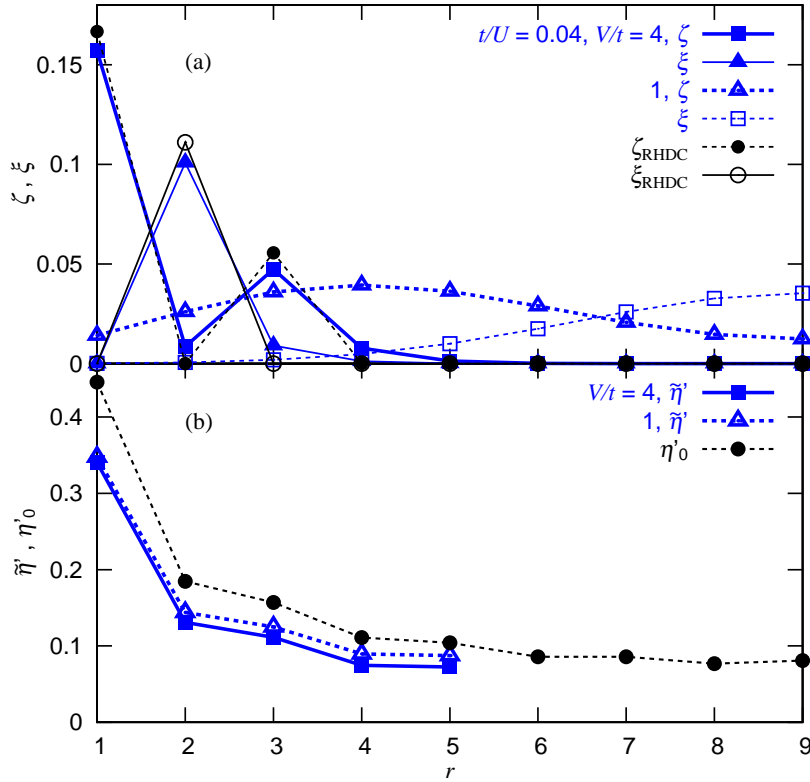


Fig. 4.18.  $t/U = 0.04$ ,  $V/t = 1, 4$ における  $|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  の (a) 逆符号電荷相関関数  $\zeta(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi(r)$ 、及び Fig. 4.19 (a) に示されている電荷揺らぎの無い束縛されたりジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) の逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  と同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$ 、(b) 射影スタグガードスピン相関関数  $\tilde{\eta}(r)$  及び基底状態におけるスタグガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$

(a) と (b) から、 $\zeta(r)$  と  $\xi(r)$  が  $2 \lesssim V/t \lesssim 3$  の領域において急激な変化をしており、他の  $V/t$  領域においては  $V/t$  の依存性は弱い事がわかる。これは、2次元の場合と同様、 $V/t$  の大きい領域と小さい領域との間でクロスオーバーが起きている事を示している。

詳細を見るために、Fig. 4.18 (a) に、 $t/U = 0.04$ ,  $V/t = 1, 4$  における  $\zeta(r)$  と  $\xi(r)$  を示す。比較のために、Fig. 4.19 (a) に示すリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) における逆符号電荷相関関数  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  及び同符号電荷相関関数  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  も併せて図示する。Fig. 4.18 (a) より、 $V/t \lesssim 2$  に対しては、 $|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  に対して行ったのと同様の議論から示されるように、ホロンとダブロンはほとんど独立に運動しており、束縛 HDP の形成などの電荷凝集は生じていない。スピン構造に関しては、2次元の場合とは対照的に、反強磁性的スピン秩序が著しく弱められる事は無い。

次に  $V/t \gtrsim 3$  の領域を考察する。Fig. 4.18 (a) より、 $\zeta(r)$  と  $\zeta_{\text{RHDC}}(r)$  との偏差、及び  $\xi(r)$  と  $\xi_{\text{RHDC}}(r)$  との偏差はどちらも非常に小さい事がわかる。これは、この領域においては、Fig. 4.19 (a) に示されているホロン・ダブロン・クラスター (HDC) が



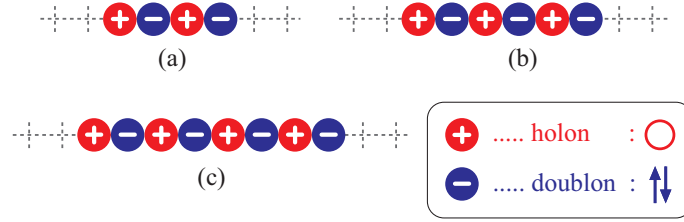


Fig. 4.19. 1次元における電荷揺らぎの無いリジッド・ホロン・ダブロン・クラスター (RHDC) の構造概念図

形成され、ホロンとダブロンの相対運動に起因する電荷揺らぎが小さい事を示している。 $|\psi_0^{(3+B)}\rangle$  及び  $|\psi_0^{(4-A)}\rangle$  に対しても、同様にして、Fig. 4.19 (b) 及び (c) において示されている3光子HDC及び4光子HDCが形成される事が示される。

スピン構造に関しては、Fig. 4.17 (c) より、 $\tilde{\eta}(r)$  の大きさは、 $V \lesssim 2$  においては  $V/t$  依存性はほとんど無いが、 $V/t \gtrsim 2.5$  においては  $V/t$  の増加に伴わずかに減少する。この減少は、長距離成分ほど大きくなる。この事は、反強磁性的スピン秩序は保たれているが、ホロンとダブロンがHDCを形成するために凝集した際に、反強磁性的スピン秩序がわずかに弱くなる事を示している。電荷構造とスピン構造の間の弱い相関の起源については、第4.4.3節で議論する。

これら特徴的な振る舞いは、考察している強相関領域全てを通して観測される。また、 $t/U$  の増加とともに、HDCが形成される  $V/t$  の領域はわずかに減少する。

#### 4.4.3 電荷凝集機構

反強磁性的スピン秩序の大きさは、ホロンとダブロンが束縛してHDCを形成した際には、ほとんど変化しない。一方、第4.4.2節で示したようにホロンとダブロンが束縛してHDCを形成した際には、反強磁性的スピン秩序は弱められる。その結果、1次元におけるHDC状態は、ハイゼンベルグスピン間相互作用によって不安定にされる。これは、2次元系の場合とは対照的である。この結果は、HDC状態におけるHDCの束縛エネルギーを解析する事で確認できる。 $0.01 \leq t/U \leq 0.1$  及び  $3.6 \leq V/t \leq 5$  のパラメータ領域において、 $E_B^{(m)}$  は、以下の近似式で誤差3%の範囲内で与えられる。

$$\begin{aligned} E_B^{(2)} &\simeq 1.36V - 0.99J - 2.93t, \\ E_B^{(3)} &\simeq 1.22V - 0.62J - 1.90t, \\ E_B^{(4)} &\simeq 1.30V - 0.62J - 2.22t. \end{aligned}$$

1次元の場合における束縛エネルギー  $E_B^{(m)}$  は、 $V$  のみが増加関数であり、 $J$  と  $t$  に関しては減少関数である。

1次元系において、HDCが形成される場合に、なぜ反強磁性的スピン秩序が弱められるのか、その理由についてここで議論する。まず、孤立したホロンもしくはダブロン近傍の局所的なスピン構造を考える。この目的のために、ホロンとダブロンが有限

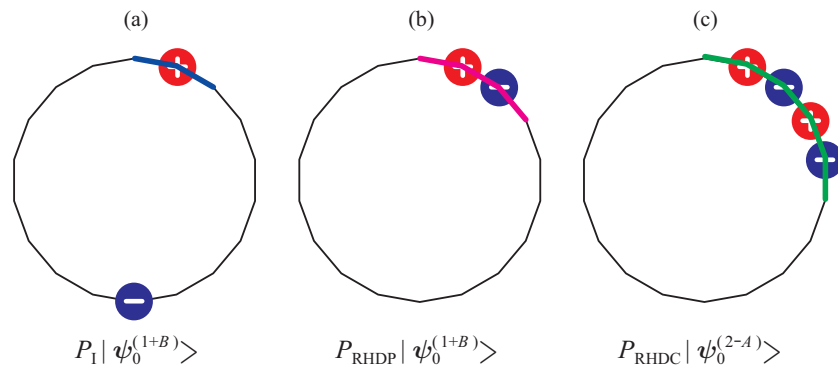


Fig. 4.20. (a)  $P_1$ 、(b)  $P_{RHDP}$  及び (c)  $P_{RHDC}$  におけるそれぞれの電荷配置、及び相関を取るサイト対

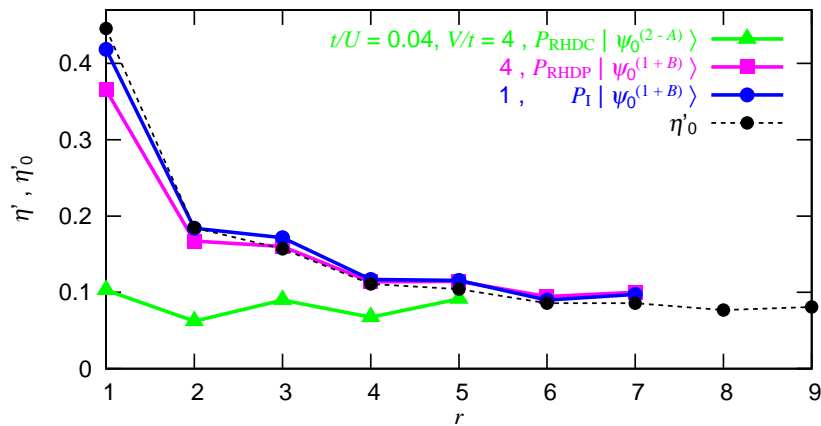


Fig. 4.21.  $t/U = 0.04, V/t = 4$  における  $P_{RHDC} | \psi_0^{(2-A)} \rangle$  と  $P_{RHDP} | \psi_0^{(1+B)} \rangle$ 、 $V/t = 1$  における  $P_1 | \psi_0^{(1+B)} \rangle$  のスタッガードスピン相関関数  $\eta(r)$ 、及び基底状態におけるスタッガードスピン相関関数  $\eta'_0(r)$ 。ただし、距離については、ホロンもしくはダブロンを跨ぐ結合を考慮して、サイト間距離としてホロンもしくはダブロンが存在するサイトを除いて考える事にする。例えば、ホロンを跨ぐサイト対は、 $r = 1$  と考える。

クラスタにおいて、最大距離で分離している Fig. 4.20 (a) で示されるような電荷配置を持つヒルベルト空間への射影演算子  $P_1$  を導入し、 $P_1 | \psi_0^{(1+B)} \rangle$  に対するスピン相関関数を計算した。孤立したホロン、もしくはダブロンを跨いだサイト対におけるスピン相関関数の値は負であり、その絶対値の大きさは、 $\eta_0(1)$  より数%だけ小さい。すなわち、孤立したホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト間の反強磁性的スピン相関は、基底状態における最近接サイト間のそれとほぼ同じくらい強い。これは、孤立したホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト間の並進運動の結果である。孤立したホロンもしくはダブロンが最近接サイトへ移動する場合、ホロンもしくはダブロンを跨いでいたサイト対は、最近

接サイト対となり、この2つのサイトは、反強磁性的スピン間相互作用項を通じて相互作用をする。このように、孤立したホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト対は、孤立したホロンもしくはダブロンを跨ぐサイトの並進運動を介して、反強磁性的スピン間相互作用によって、間接的に結合する。そこで、Fig. 4.21 に  $t/U = 0.04$ ,  $V/t = 1$  における  $P_1|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  に対するスタaggerドスピン相関関数を示す。ただし、上に述べたホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト対は、ホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト対を除いて考える事にする。例えば、ホロンを跨ぐサイト対は、 $r = 1$  と考える。この図からわかるように、ホロンもしくはダブロンを跨ぐサイト間の反強磁性的スピン相関だけでなく、ホロンもしくはダブロンを跨いだ長距離反強磁性的スピン相関も、基底状態と同程度の強さである事がわかる。

次に、ホロン・ダブロン・ペア (HDP) とホロン・ダブロン・クラスター (HDC) を跨ぐサイト対でのスピン相関を考察する。そのために、 $P_{\text{RHDP}}|\psi_0^{(1+B)}\rangle$  及び  $P_{\text{RHDC}}|\psi_0^{(2-A)}\rangle$  に対するスタaggerドスピン相関関数を計算する。ここで、 $P_{\text{RHDP}}$  及び  $P_{\text{RHDC}}$  は、Fig. 4.20 (b) 及び (c) で示されるような、ある位置に RHDP 及び RHDC が存在する電荷配置を持ったヒルベルト空間への射影演算子である。これらの計算結果も Fig. 4.21 に示す。 $t/U = 0.04$ ,  $V/t = 4$  における RHDP (RHDC) を跨ぐスピン相関の大きさは、 $\eta_0(r)$  の 82% (23%) であった。この大きな違いは、2次元系の議論からわかるように、HDC の並進運動が事実上禁止されているのに対し、HDP は並進運動が可能のためである。HDC が形成される場合、スピン相関は、HDC の位置で事実上失われる、その結果、 $\tilde{\eta}(r)$  の大きさは減少し、スピン間相互作用エネルギーが大きくなる。

1次元系においては、HDC が形成される事により、スピンと電荷の自由度にこのような特徴的な結合がもたらされる。このように、1次元系と2次元系の間におけるスピンと電荷の自由度は、全く異なった形で結合しており、その結果、電荷凝集機構においては、スピン間相互作用は正反対の役割を果たす事になる。

## 第5章 超高速ダイナミクス

この章では、第二のアプローチである、低次元強相関電子系の光励起状態における超高速ダイナミクスの解析結果を述べる。

この超高速ダイナミクスの研究においては、主にコヒーレント過渡現象に着目した自由誘導減衰や過渡的四光波混合などの解析を行った。過渡的四光波混合は、様々な超高速現象を観測するための最も強力な実験の1つと広く受け入れられている [82–84]。これは、1) 過渡的四光波混合の信号光強度の時間積分値のパルス間隔依存性を測定する事により、超高速ダイナミクスを実時間で実験的に捉える事が可能である事、2) 不均一広がり効果と均一広がり効果を分離する事が可能である事、の利点があるためである。また、電子 - 格子系における格子緩和や、半導体における電子 - ホール系におけるキャリアの緩和の場合と同様にして、自由誘導減衰及び過渡的四光波混合は、スピン - 電荷結合に起因したスピン緩和を敏感に反映する事が期待される。これは、自由誘導減衰及び過渡的四光波混合が、位相コヒーレンス、即ち、密度行列の基底状態と励起状態間の密度演算子の非対角成分からもたらされるためである。

以下で示すように、パルス光励起によるダイナミクスの解析は、スピンと電荷の結合の様相を明らかにする事から、低次元強相関電子系の物性を解明する強力な手法である事が明らかになった。特に、過渡的四光波混合の信号光強度の解析は、この研究において見出された超高速緩和を観測可能な唯一の実験手法であり、この研究により、実験的にスピン - 電荷分離の問題を検証する可能性が開かれた。

ここで述べる解析結果は、文献 [54, 85, 86] で既に発表されている。

### 5.1 解析方法

式 (2.2.2) において  $V = 0$  とした場合のハバードモデルにおける有効ハミルトニアン、式 (2.1.3a) の電子光子相互作用ハミルトニアンを用いて、パルス光によって励起された状態の時間変化を数値的に厳密に解き、以下で与えられる過渡的四光波混合 (TFWM) 信号光強度、自由誘導減衰 (FID) 信号光強度、電荷及びスピン相関関数を計算した。

#### 5.1.1 密度演算子

TFWM などの光学過程を記述するために便利な密度演算子を用いる。時刻  $\tau$  における密度演算子は、

$$\rho(\tau) = |\psi(\tau)\rangle\langle\psi(\tau)|, \quad (5.1.1)$$

と定義される。ここで、 $|\psi(\tau)\rangle$  は時刻  $\tau$  での系の状態ベクトルである。 $\rho(\tau)$  の運動方程式は、以下のようになる。

$$i \frac{\partial \rho(\tau)}{\partial \tau} = [\hat{H}, \rho(\tau)]. \quad (5.1.2)$$

ここで、 $\hat{H}$  は式 (2.1.1) で与えられるハミルトニアンである。また、 $\hbar = 1$  の原子単位系を用いている。今、系が初期時刻  $\tau_0$  で基底状態であると仮定すると、

$$\rho(\tau_0) = |\psi_0\rangle\langle\psi_0|, \quad (5.1.3)$$

となる。

式 (5.1.2) の解は、時間発展演算子  $\hat{U}(\tau, \tau_0)$  を用いて、

$$\rho(\tau) = \hat{U}(\tau, \tau_0)\rho(\tau_0)\hat{U}^\dagger(\tau, \tau_0), \quad (5.1.4)$$

として書く事ができる。この解は一般的で、全ての光学過程を含んでいる。

時間発展演算子は、 $\hat{H}_{e-p}(\tau)$  を摂動としてべき展開する事ができ、

$$\begin{aligned} \hat{U}(\tau, \tau_0) &= 1 + (-i) \int_{\tau_0}^{\tau} d\tau_1 e^{-i\hat{H}_e(\tau-\tau_1)} \hat{H}_{e-p}(\tau_1) e^{-i\hat{H}_e(\tau_1-\tau_0)} \\ &\quad + (-i)^2 \int_{\tau_0}^{\tau} d\tau_1 \int_{\tau_0}^{\tau_1} d\tau_2 e^{-i\hat{H}_e(\tau-\tau_1)} \hat{H}_{e-p}(\tau_1) e^{-i\hat{H}_e(\tau_1-\tau_2)} \hat{H}_{e-p}(\tau_2) e^{-i\hat{H}_e(\tau_2-\tau_0)} \\ &\quad + \dots \\ &= 1 + \hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0) + \hat{U}^{(2)}(\tau, \tau_0) + \dots, \end{aligned} \quad (5.1.5)$$

と与えられる。ここで、 $\hat{H}_{e-p}$  の 1 次の摂動項を  $\hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0)$  とし、2 次の摂動項を  $\hat{U}^{(2)}(\tau, \tau_0)$  とした。

### 5.1.2 過渡的四光波混合 (TFWM)

TFWM 信号光強度は、ボゾン系と結合した 2 準位系モデルでの導出方法を拡張する事により、以下のように導出する事ができる [83, 84]。

低次元強相関電子系における基底状態  $|\psi_0\rangle$  に、パルス間隔が  $\tau_s$  の 2 連光パルスレーザーを照射した場合の光励起状態を考える。これらパルス光はベクトルポテンシャル

$$\mathbf{A}(\tau) = A_1(\tau)\mathbf{e}_1 e^{-i\omega\tau} + A_2(\tau - \tau_s)\mathbf{e}_2 e^{-i\omega\tau} + \text{c.c.}, \quad (5.1.6)$$

によって記述される。ここで、 $A_i(\tau)$  は  $\tau = 0$  に鋭いピークを持つ包絡線関数であり、 $\mathbf{e}_i$  はパルス光の偏光方向の単位ベクトル、 $\omega$  はパルス光の中心振動数である。

式 (5.1.4) は、式 (5.1.6) で表現されるパルス光によって生成された、全ての光学過程を含んでいる。TFWM は、3 次の非線形光学過程であり、Fig. 5.1 で示されたダブルファインマンダイアグラムによって表わされ、 $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  方向にコヒーレント光が放出される。ここで、 $\mathbf{k}_1$  と  $\mathbf{k}_2$  は、それぞれ第一パルスと第二パルスの波数ベクトルである。このダイアグラムは、第一パルスにより、 $|\psi(\tau)\rangle \in S_1$  と  $|\psi(\tau)\rangle \in S_0$  の重ね合わせの状態が生成され、第二パルスによってこれら状態の入れ替わりが起こる。この第

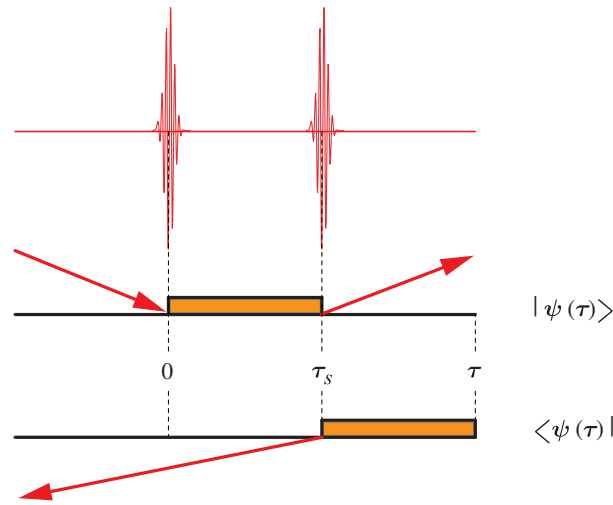


Fig. 5.1. TFWMにおけるダブルファインマンダイアグラム。上下のダイアグラムは、密度演算子の  $|\psi(\tau)\rangle$  とこれに共役な  $\langle\psi(\tau)|$  の時間発展を表わし、時間の進行方向は右向きである。太(細)線は、 $|\psi(\tau)\rangle$  もしくは  $\langle\psi(\tau)|$  が  $S_1(S_0)$  に属している事を表わす。また、結節点は、内向きの矢印には  $\hat{H}_{e-p}$  のうちの  $\propto e^{-i\omega\tau}$  に比例する項、外向きの矢印には  $\propto e^{i\omega\tau}$  に比例する項がそれぞれ作用している事を表わす。

二パルスは、電子状態の時間反転効果をもたらし、不均一広がり埋もれた時間反転対称性を持たない緩和過程を選択的に取り出す事が可能となる。従って、このTFWMに対する密度演算子は以下のように与えられる。

$$\begin{aligned} \rho_{\text{TFWM}}(\tau) = & -i \int_{\tau_0}^{\tau} d\tau_2 \int_{\tau_0}^{\tau_2} d\tau_1 e^{-i\hat{H}_e\tau} A_2^*(\tau_2 - \tau_s) \hat{J}_2(\tau_2) e^{i\omega\tau_2} A_1(\tau_1) \hat{J}_1(\tau_1) e^{-i\omega\tau_1} \\ & \times \rho(\tau_0) \int_{\tau_0}^{\tau} d\tau_3 A_2^*(\tau_3 - \tau_s) \hat{J}_2(\tau_3) e^{i\omega\tau_3} e^{i\hat{H}_e\tau} . \end{aligned} \quad (5.1.7)$$

ここで

$$\hat{J}_i(\tau) = e^{i\hat{H}_e\tau} \hat{\mathbf{j}} \cdot \mathbf{e}_i e^{-i\hat{H}_e\tau} , \quad (5.1.8)$$

としている。

次に、 $\omega \sim U$  の共鳴励起を考え、パルス光の照射時間  $\Delta \gg 1/\omega$  を仮定し、以下の2つの近似を行う。(i) 振動数が  $\omega$  にほぼ等しいかそれ以上の、激しく振動し積分への寄与の小さい項を無視する回転波近似を用いる。その結果、式(5.1.7)において、各時間積分領域において実現される励起状態は、時刻  $\tau_1 < \tau' < \tau_2$  に対して  $|\psi(\tau')\rangle \in S_1$ 、時刻  $\tau_2 < \tau'$  に対して  $|\psi(\tau')\rangle \in S_0$ 、時刻  $\tau_3 < \tau'$  に対して  $\langle\psi(\tau')| \in S_1$  となり、これを用いる事により数値計算を単純化する事ができる。(ii) パルス光の照射時間  $\Delta \ll (1/t, U/t^2)$  を仮定する。ここで、 $1/t, U/t^2$  は式(2.2.2)で与えられる有効ハミルトニアンの特徴

的な時間スケールである。これにより式 (5.1.7) における包絡線関数  $A_i$  は、 $\delta$  関数的に扱うことができる。その結果、式 (5.1.7) は、

$$\begin{aligned} \rho_{\text{TFWM}}(\tau) = & -i(\theta_2^*)^2 \theta_1 e^{i(2\omega + E_0)\tau_s} U^{(0)}(\tau - \tau_s) P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 \\ & \times \rho(\tau_0) \hat{J}_2 P_1 U^{(1)}(-\tau + \tau_s), \end{aligned} \quad (5.1.9)$$

となる。ここで、 $U^{(m)}(\tau) = \exp(-i\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}\tau)$ 、 $E_0$  は基底状態のエネルギー固有値であり、 $\hat{J}_i = \hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{e}_i$ 、 $\theta_i = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau A_i(\tau)$  である。

時刻  $\tau$  における TFWM 信号光強度は、電流演算子  $\hat{\mathbf{J}}$  の期待値の絶対値の2乗として、

$$I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s) = |\text{tr}[\rho_{\text{TFWM}}(\tau) \hat{\mathbf{J}}]|^2, \quad (5.1.10)$$

によって与えられる。式 (5.1.9) と式 (5.1.10) から次式を得る。

$$I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s) = |\langle \psi_0 | \hat{J}_2 P_1 U^{(1)}(-\tau + \tau_s) \hat{\mathbf{J}} U^{(0)}(\tau - \tau_s) P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 | \psi_0 \rangle|^2. \quad (5.1.11)$$

ここで、重要では無い定数項は落としている。

### 5.1.3 自由誘導減衰 (FID)

パルス光によって励起された強相関電子系の位相緩和を評価するために、シングルパルス光励起による FID 信号光強度を、第 5.1.2 節で述べた TFWM 信号光強度と比較する事は有益であると考えられる。FID、TFWM は共にパルス光励起によって誘起されたコヒーレント発光現象である。

基底状態  $|\psi_0\rangle$  にシングルパルスレーザーを照射した場合の光励起状態を考える。この時のベクトルポテンシャル  $A(\tau')$  は、パルス光に対して以下のように与えられる。

$$A(\tau') = A(\tau') e^{-i\omega\tau'} \mathbf{e} + \text{c.c.}, \quad (5.1.12)$$

ここで、 $\mathbf{e}$  はパルス光の偏光方向の単位ベクトルで、 $A(\tau)$ 、 $\omega$  は式 (5.1.6) と同様である。

FID は、Fig. 5.2 で示されるダブルファインマンダイアグラムによって表わされる。 $\mathbf{k}$  がパルス光の波数ベクトルである場合、 $\mathbf{k}$  方向にコヒーレント光を放出する。この FID に対する密度演算子は、式 (5.1.4) より、

$$\rho_{\text{FID}}(\tau) = i \int_{\tau_0}^{\tau} d\tau_1 e^{-i\hat{H}_e\tau} A(\tau_1) \hat{J}(\tau_1) e^{-i\omega\tau_1} \rho(\tau_0). \quad (5.1.13)$$

ここで、

$$\hat{J}(\tau) = e^{i\hat{H}_e\tau} \hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{e}, \quad (5.1.14)$$

とし、重要では無い定数項は省略した。

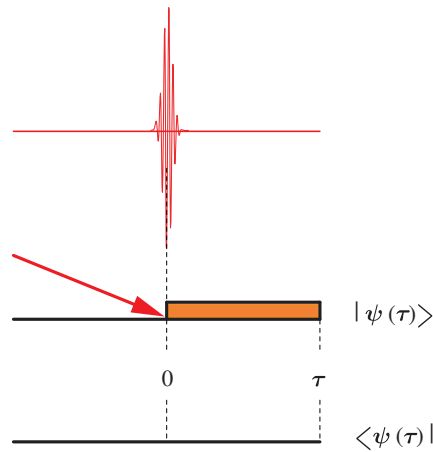


Fig. 5.2. 自由誘導減衰におけるダブルファインマンダイアグラム。上下のダイアグラムは、密度演算子の  $|\psi(\tau)\rangle$  とこれに共役な  $\langle\psi(\tau)|$  の時間発展を表わし、時間の進行方向は右向きである。太(細)線は、 $|\psi(\tau)\rangle$  もしくは  $\langle\psi(\tau)|$  が  $S_1(S_0)$  に属している事を表わす。また、結節点は、内向きの矢印には  $\hat{H}_{e-p}$  のうちの  $\propto e^{-i\omega\tau}$  に比例する項が作用している事を表わす。

$\omega \sim U$  の共鳴励起を考え、 $1/\omega \ll \Delta \ll (1/t, U/t^2)$  を仮定し、第5.1.2節で述べたのと同じ近似を用いると、

$$\rho_{\text{FID}}(\tau) = i\theta U^{(1)}(\tau) P_1 \hat{J} \rho(\tau_0), \quad (5.1.15)$$

となる。ここで、 $\hat{J} = \hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{e}$  である。

時刻  $\tau$  における FID 信号光強度は、

$$I_{\text{FID}}(\tau) = |\text{tr}[\rho_{\text{FID}}(\tau) \hat{\mathbf{J}}]|^2, \quad (5.1.16)$$

によって与えられる。式(5.1.15)と式(5.1.16)から次式を得る。

$$I_{\text{FID}}(\tau) = |\langle\psi_0| \hat{\mathbf{J}} U^{(1)}(\tau) P_1 \hat{\mathbf{J}} |\psi_0\rangle|^2. \quad (5.1.17)$$

ここで、重要では無い定数項は落としている。

### 5.1.4 相関関数

低次元強相関電子系に特有の反強磁性的スピン秩序と、光励起により注入された電荷の関わりを考慮し、スピン - 電荷分離現象の解明につなげるため、更にはTFWM、FIDの解析のために、スピン相関関数、電荷相関関数、射影スピン相関関数のダイナミクスを計算する。

$\tau_0$  はパルス励起が行われる前の時刻であり、そのときの電子系は基底状態  $|\psi_0\rangle$  であっ



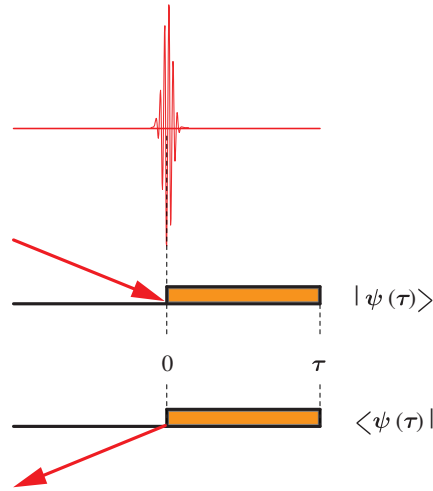


Fig. 5.3. 相関関数におけるダブルファインマンダイアグラム。上下のダイアグラムは、密度演算子の  $|\psi(\tau)\rangle$  とこれに共役な  $\langle\psi(\tau)|$  の時間発展を表わし、時間の進行方向は右向きである。太(細)線は、 $|\psi(\tau)\rangle$  もしくは  $\langle\psi(\tau)|$  が  $S_1(S_0)$  に属している事を表わす。また、結節点は、内向きの矢印には  $\hat{H}_{e-p}$  のうちの  $\propto e^{-i\omega\tau}$  に比例する項、外向きの矢印には  $\propto e^{i\omega\tau}$  に比例する項がそれぞれ作用している事を表わす。

たとすると、演算子  $\hat{O}$  の期待値は、密度演算子を用いて、

$$\begin{aligned} \langle\psi(\tau)|\hat{O}|\psi(\tau)\rangle &= \text{tr}[\rho(\tau)\hat{O}] \\ &= \text{tr}[\rho(\tau_0)\hat{O}] \\ &+ \text{tr}[\hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0)\rho(\tau_0)\hat{O}] \\ &+ \text{tr}[\rho(\tau_0)\hat{U}^{(1)\dagger}(\tau, \tau_0)\hat{O}] \\ &+ \text{tr}[\hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0)\rho(\tau_0)\hat{U}^{(1)\dagger}(\tau, \tau_0)\hat{O}] , \end{aligned} \quad (5.1.18)$$

と展開できる。第 1 項は基底状態による期待値であり、第 2・3 項は対称性から 0 になる。そこで今後、光によって励起された状態の性質を調べるために右辺の第 4 項のみを考えることにする。Fig. 5.3 に第 4 項に対応するダブルファインマンダイアグラムを示す。

電荷相関関数： $\xi(\tau, r)$

電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  は、

$$\xi(\tau, r) = \langle\psi_0|\hat{U}^{(1)\dagger}(\tau, \tau_0)d_i d_j \hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0)|\psi_0\rangle , \quad (5.1.19)$$

と定義される。ここで  $r$  は サイト  $i, j$  間の距離であり、 $d_i = 1 - \sum_{\sigma} c_{i,\sigma}^{\dagger} c_{i,\sigma}$  はサイト  $i$  の電荷演算子である。

スピン相関関数： $\eta(\tau, r)$

スピン相関関数  $\eta(\tau, r)$  は、

$$\eta(\tau, r) = \langle \psi_0 | \hat{U}^{(1)\dagger}(\tau, \tau_0) \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0) | \psi_0 \rangle, \quad (5.1.20)$$

と定義される。ここで  $\mathbf{S}_i$  は、サイト  $i$  におけるスピン演算子である。

射影スピン相関関数： $\tilde{\eta}(\tau, r)$  [76]

射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(\tau, r)$  は、

$$\tilde{\eta}(\tau, r) = \langle \psi_0 | \hat{U}^{(1)\dagger}(\tau, \tau_0) \sum_{l=0}^2 \tilde{P}_l \mathbf{S}_0 \cdot \mathbf{S}_{r+l} \tilde{P}_l \hat{U}^{(1)}(\tau, \tau_0) | \psi_0 \rangle, \quad (5.1.21)$$

で定義される。ここで、 $\tilde{P}_l$  はサイト  $0, r+l$  の間に  $l$  個の 2 重占有サイト、もしくは空サイトがある状態からなるヒルベルト部分空間への射影演算子である。この相関関数は、相関を取るサイトの間には電荷が存在する場合に、その電荷を除外したスピン相関関数である。もし、スピン - 電荷分離が成立している場合、 $\tilde{\eta}$  は分離されたスピン波動関数におけるスピン相関関数となる。この射影スピン相関関数は、1 次元系での計算について評価した物理量である。

## 5.2 結果と考察

本章において扱った系は、ハーフフィリングの場合のみを考察する。2 次元系においては、付録 A に示されているサイト数  $N = 26$  の正方格子を考え、周期的境界条件を用いた。数値計算上の計算時間に限界があるため、TFWM 強度の時間積分に対してのみ、サイト数  $N = 20$  を用いる。1 次元系においては、付録 A に示されているサイト数  $N = 26$  の 1 次元鎖を考え、周期的境界条件を用いた。

本章において、(2.2.2) の  $V = 0$  とした場合の有効ハミルトニアン  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  を用いて数値解析を行ったパラメータ領域は、主として  $t/U \leq 0.1$  を考察する。なぜなら、第 3.2 節において行った議論により、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  は、 $t/U \leq 0.1$  に対してハバードハミルトニアンの有効ハミルトニアンとして妥当であると結論付けられるためである。また、本章でも比較的  $t/U$  が大きい領域における性質も議論するが、これは  $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  が妥当である領域における性質を、より  $t/U$  が大きい領域における性質を見る事により分析するためである。

### 5.2.1 2次元系における自由誘導減衰

まず初めに、自由誘導減衰 (FID) の結果から示す。FID の非常に速い時間変化を、実験的に観測する事は困難であり、また、FID においては、均一緩和と不均一緩和の違いを示す事はできない。しかしながら、以下に示されるように、FID と過渡的的四光波混合 (TFWM) の相互関係が、位相緩和メカニズムに関する重要な情報を提供する。

良く知られているように、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  は光吸収スペクトルのフーリエ変換から得る事が

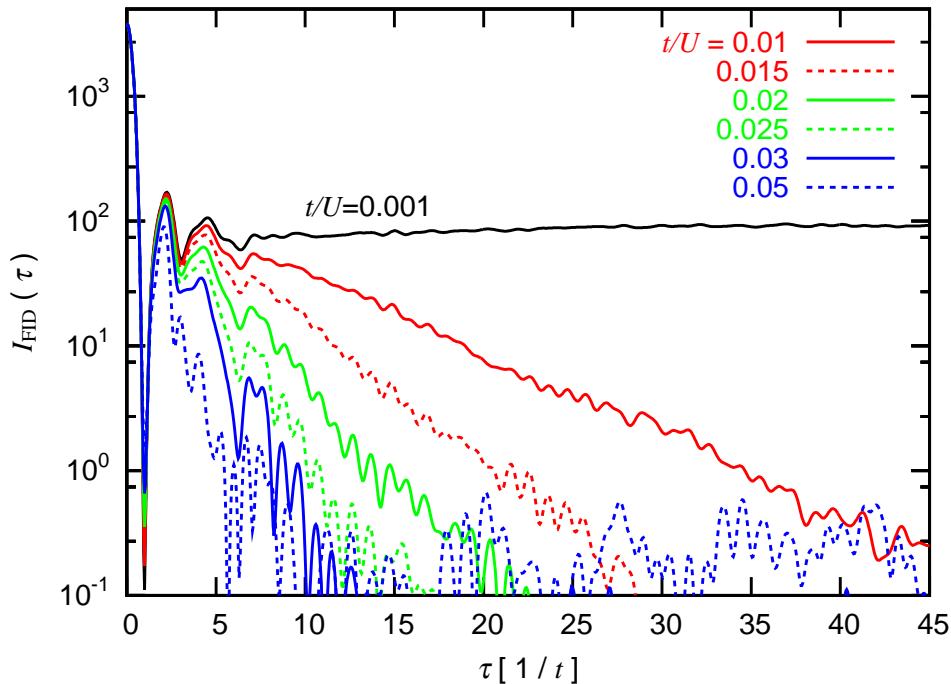


Fig. 5.4. 長時間領域の2次元26サイトの様々な $t/U$ におけるFID強度 $I_{\text{FID}}(\tau)$ の時間依存性

できる。しかしながら、巨大なヒルベルト空間において、光吸収スペクトルを厳密に計算するためには、数値計算を収束させるために人工的な幅 $\epsilon$ を仮定する必要がある [2]。数値計算の収束を保証する最小の $\epsilon$ を用いた場合でも、 $I_{\text{FID}}(\tau)$ の長時間の振る舞いに深刻な影響をもたらされる事から、緩和現象の研究をする際には、FIDは、光吸収スペクトルからは得られない重要な情報をもたらす。

初めに、2次元の場合を考察する。パルス光の偏光方向は、2次元正方格子の一片と平行な方向に偏光している場合を考える。Fig. 5.4とFig. 5.5に、様々な $t/U (\leq 0.05)$ の値に対する $I_{\text{FID}}(\tau)$ の長時間領域と短時間領域の結果を示す。ここで、時間の単位として、 $1/t$ を用いる。 $t$ は最近接サイト間の電子のホッピングエネルギーである。一般的な銅酸化物のホッピングエネルギー $t \sim 0.4$  [eV]を用いると、 $\tau = 1$ は1.6フェムト秒に対応する。式(2.2.2)における各項の役割を見るために、事実上、電荷移動項 $P_m \hat{T} P_m$ のみが存在すると考えてよい極端に小さい $t/U$ の極限を考察する事は有効である。 $t/U \leq 0.001$ に対しては、Fig. 5.4で示される時間領域において、FIDとTFWMの強度は、 $t/U$ にほとんど依存しない結果が得られた。従って、 $t/U = 0.001$ における結果を $t/U$ の最小の極限として見なす事ができる。

まず、 $t/U \lesssim 0.05$ の強相関領域を考える。Fig. 5.4及びFig. 5.5から、この領域においては、2つの段階に良く分離された、2つの緩和過程を見る事ができる。FID信号光強度 $I_{\text{FID}}(\tau)$ は、パルス光励起直後に非常に速い減衰を示し、時間領域 $\tau \lesssim 1$ において、 $t/U$ にほとんど依存していない事がわかる。従って、この非常に速い減衰は、式

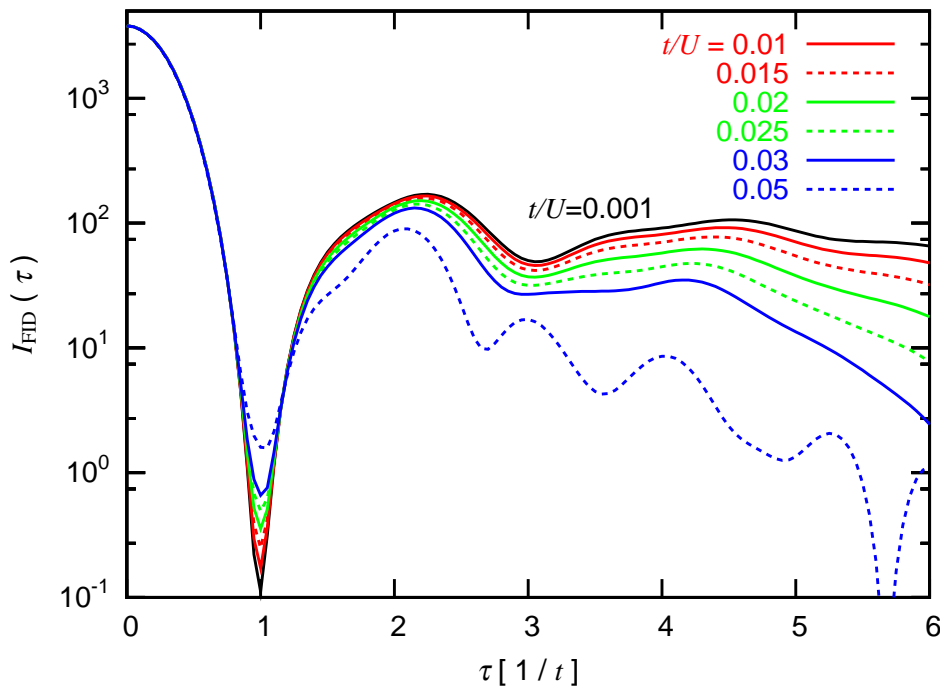


Fig. 5.5. 短時間領域の2次元26サイトの様々な $t/U$ におけるFID強度 $I_{\text{FID}}(\tau)$ の時間依存性

(2.2.2)において唯一 $t$ に比例している電荷移動項 $P_m \hat{T} P_m$ によって引き起こされている事がわかる。この章で考察している強相関領域の場合、基底状態においては、空サイト及び2重占有サイトのどちらも存在せず、式(2.1.3b)からわかるように、光励起によって空サイトと2重占有サイトの対が最近接サイト上に生成される。これら空サイトと2重占有サイトは、光生成された電荷キャリアであり、第2.2節で述べたように、 $P_m \hat{T} P_m$ 項が光生成された電荷キャリアの移動を記述する。従って、 $\tau < 1$ の急激な減衰は、パルス光励起直後( $\tau = 0$ )に最近接サイトに光生成された正符号と負符号の電荷が、速い減衰の時間領域で、反強磁性バックグラウンド中へ急速に拡散する事によるものと考えられる。

$\tau \gtrsim 4$ の時間領域に対しては、電荷の拡散はほとんど完了し、 $t/U$ に依存した遅い減衰を示している事がわかる。この時間領域においては、小さい振動が見られるが、これは有限サイズ効果である。なぜなら、サイト数 $N$ の増加によりこの振幅が減少していくためである。Fig. 5.4においては、 $I_{\text{FID}}(\tau)$ はlogスケールで示されているために、この重要で無い振動が強調されて表示されている。この有限サイズ効果に起因する振動を無視すれば、この遅い減衰はほぼ指数関数的であり、緩和時間は $U/t$ にほぼ比例している。従って、この遅い減衰は、速い減衰の後に生じた新しい電荷配置に対するスピン状態の再配置に起因した、不可逆位相緩和として解釈する事ができる。更に、この減衰は、スピン緩和過程の初期の段階でさえ指数関数的である。これは、注目している系と熱浴の結合が、弱い場合に特徴的な振る舞いである。一般に、空サイトと

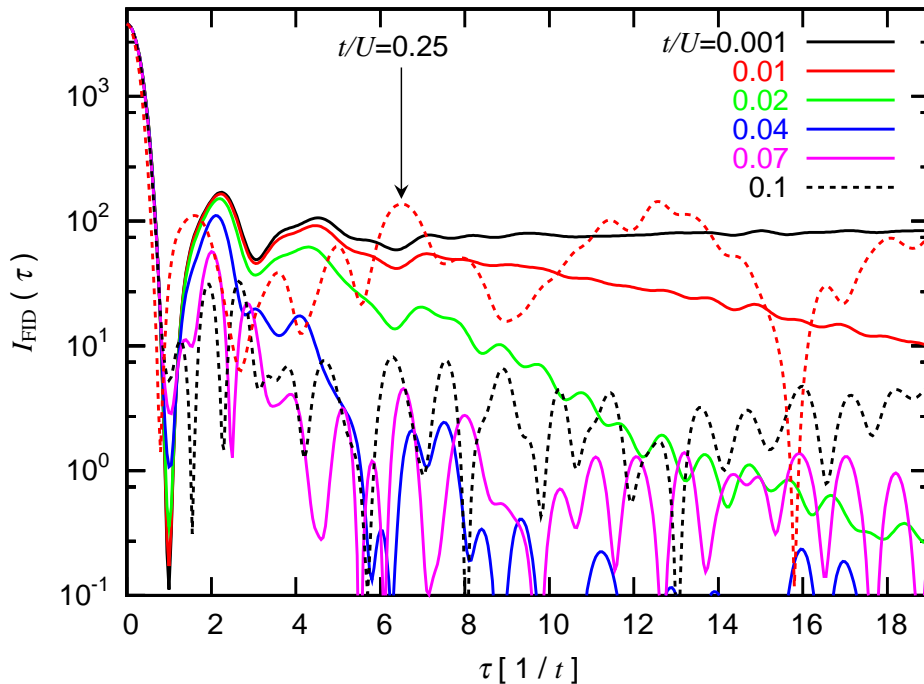


Fig. 5.6. 短時間領域の2次元26サイトの様々な $t/U$ におけるFID強度 $I_{\text{FID}}(\tau)$ の時間依存性

2重占有サイトの配置は、その他の1重占有中性サイトのスピン配置と相関を持つ。その結果、これら電荷キャリアの並進運動は、スピン自由度の運動を誘起し、そしてこのスピン自由度の運動が、電荷キャリアの運動に影響を及ぼす。本研究により得られた結果の場合、 $I_{\text{FID}}(\tau)$ が3桁以上減衰する最初の急激な減衰においては、 $t/U$ 依存性が見られないという事実からわかるように、電荷の運動は、電荷移動項に支配されている。これは、電荷の運動に及ぼすスピン自由度の間接的な影響が、電荷移動項よりもはるかに小さいことを示している。 $I_{\text{FID}}(\tau)$ におけるスピンの運動に伴う弱い影響は、電荷の運動がほぼ平衡に達した後に見る事ができる。この事からも、スピン - 電荷分離の問題を調査するためには、過渡的光学応答の解析に基づいた方法が適している事がわかる。以上より、電荷の拡散に起因した非常に速い電荷自由度の緩和と、スピン再配置に起因したより遅いスピン自由度の緩和が、明瞭に2段階に分かれて観測される特徴は、電荷自由度とスピン自由度が近似的に分離し、2次元においては、これらが弱く結合しているという描像が成立している事を示していると考えられる。

$1 \lesssim \tau \lesssim 4$ の時間領域に対しては、 $I_{\text{FID}}(\tau)$ において振動が見られる。この振動は、 $t/U$ の非常に小さい極限でさえも存在しており、その周期は、 $t/U \leq 0.01$ の領域においては $t/U$ にほとんど依存せず、 $t$ のみに依存する。従って、この振動は、電荷移動項 $P_m \hat{T} P_m$ のエネルギー分布に起因した量子ビートであると考えられる。この事は、 $t/U$ の小さい極限における光吸収スペクトルが、鋭いピークと比較的鋭いエッジを持っているという事から確認できる。量子ビートは、このエッジ構造から発生しており、量子

ビートの周波数は、このエッジ構造のエネルギーバンドの幅とほぼ同じであった。また、より遅いスピン緩和は、 $t/U > 0.01$  におけるこの時間領域で重要となり、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  における量子ビートの  $t/U$  依存性は、より遅いスピン緩和からもたらされていると考える事ができる。従って、この時間領域における  $I_{\text{FID}}(\tau)$  は、量子ビートとより遅いスピン緩和の組み合わせとして理解することができる。

次に、 $0.05 \lesssim t/U \lesssim 0.1$  の比較的弱い相関領域を考察する。Fig. 5.6 に  $0.05 \lesssim t/U$  の相関領域も含めた  $I_{\text{FID}}(\tau)$  の時間依存性を示す。Fig. 5.6 より、この領域においても、2段階の緩和過程と量子ビートが存在している事がわかる。 $t/U \lesssim 0.05$  の強相関領域では、 $5 \lesssim \tau \lesssim 20$  の時間領域において、より遅いスピン緩和が進んでおり、平衡に達してはいないが、 $t/U$  の増加に伴いこのスピン緩和が徐々に速くなり、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  が減少している。しかしながら、 $0.05 \lesssim t/U \lesssim 0.1$  においては、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  の正味の成分は、 $\tau \gtrsim 5$  においては  $\tau$  にほとんど依存せず、平衡に達している事がわかる。更には、 $t/U$  の増加と共にこの収束値が増加している事がわかる。正味の成分の収束値はサイト数  $N$  に著しく依存しない事から、これは有限サイズ効果によるものではない。

$t/U \gtrsim 0.1$  に対しては、収束値が  $t/U$  の増加に伴い著しく増加し、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  において大きな振幅の振動が存在している事がわかる。

これらの特徴は、反強磁性的スピン秩序と密接に関係している。第 5.2.3 節で示されるが、 $t/U \gtrsim 0.1$  に対しては、スピン緩和の後も反強磁性的スピン秩序の長距離成分は残存する。これに対して、強相関領域においては、スピン緩和の結果、反強磁性的スピン秩序が破壊される。 $t/U$  が増加すると、緩和した後の光励起状態の反強磁性的スピン秩序は強くなり、そのスピン構造は基底状態により近くなる。従って、基底状態と光励起状態間の  $\hat{J}$  の非対角要素からもたらされる  $I_{\text{FID}}(\tau)$  は、 $t/U$  が増加するにつれてその値を増加させる。事実、 $t/U = 0.1$  付近から、 $t/U$  の増加に伴い反強磁性的スピン秩序は著しく増大し始める。この値は、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  の正味の成分の収束値が著しく増加し始める  $t/U$  の値に一致している。更に、残存した反強磁性的スピン秩序は、光生成された電荷間に引力的な相互作用を引き起こす事が示されている [45]。その結果、光生成された電荷間に振動する相対運動が生じ、これらは、第 5.2.3 節で示されるように、電荷相関関数とスピン相関関数における振動としても観測される。 $I_{\text{FID}}(\tau)$  における振動が、これら相関関数と関連付ける事ができる事から、 $t/U \gtrsim 0.1$  における  $I_{\text{FID}}(\tau)$  の振動は、残存している反強磁性的スピン秩序によって引き起こされた、引力的な相互作用に起因すると考えられる。ただし、 $t/U > 0.1$  に対しては、 $\hat{H}_{\text{eff}}^{(m)}$  はハバードハミルトニアンの有効ハミルトニアンとしては適切ではない。ハバードハミルトニアンを用いた場合、 $t/U > 0.1$  においては、反強磁性的スピン秩序が、 $t/U$  が増加するにつれて不安定になり、これが  $I_{\text{FID}}(\tau)$  に大きく影響すると考えられる。

### 5.2.2 1次元系における自由誘導減衰

次に、この小節では1次元の場合について考察する。パルス光の偏光方向は、1次元鎖に平行であるとする。Fig. 5.7 に、様々な  $t/U$  における  $I_{\text{FID}}(\tau)$  を示す。この図から、 $\tau \lesssim 1$  において FID 信号光強度  $I_{\text{FID}}(\tau)$  は急激に減少し、2次元の場合と同様に、

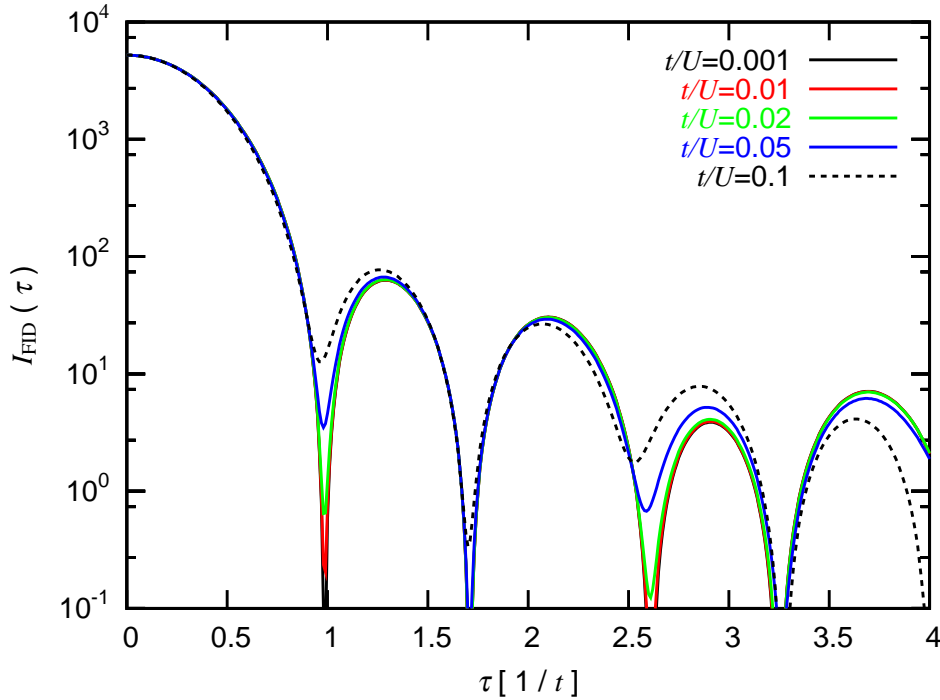


Fig. 5.7. 1次元26サイトの様々な $t/U$ におけるFID強度 $I_{\text{FID}}(\tau)$ の時間依存性

$t/U$ にほとんど依存しない事がわかる。しかしながら、1次元における $I_{\text{FID}}(\tau)$ は、長時間領域においてさえも $t/U$ にほとんど依存していない。これは、FIDがほぼ電荷移動項のみによって決定されている事を示している。従って、1次元においては、ほぼ厳密にスピン - 電荷分離が成立していると結論付ける事ができる。 $I_{\text{FID}}(\tau)$ は、 $t/U$ に僅かではあるが依存しており、 $t/U$ が有限の場合、スピン - 電荷分離は厳密には成立していないが、スピン自由度と電荷自由度の結合は、特に $t/U < 0.05$ に対しては非常に弱い。

パルス光励起後の電荷相関関数と射影スピン相関関数の時間発展を解析する事によってもこの問題を考察した。この詳細は、第5.2.4節で述べるが、射影スピン相関関数の変化は、 $t/U < 0.05$ に対して数値的な誤差の範囲に非常に近い0.05%未満であり、スピン - 電荷分離が厳密に成立しているかどうかを、スピン相関関数の解析から見る事は困難である。従って、位相コヒーレンスと関連する過渡的光学応答に着目した方法は、極めて弱いスピン - 電荷結合を検知する事ができ、スピンの運動に対して敏感であるという事が言える。 $t/U \rightarrow 0$ の極限からの $I_{\text{FID}}(\tau)$ における偏差を見た場合、 $t/U \lesssim 0.1$ においては極めて小さいが、 $t/U \gtrsim 0.1$ においては $t/U$ が増加するにつれて急激に増大する。これは、 $t/U \lesssim 0.1$ に比べて、 $t/U \gtrsim 0.1$ においては $t/U$ が増加するに伴い、スピン - 電荷結合が急激に強くなる事を示している。この事に関して、ハバードハミルトニアンを用いて、FID強度のいくつかの予備計算した結果、同じ結論を得ている。更に、 $\tau \gtrsim 1$ に対する $I_{\text{FID}}(\tau)$ における振動は、2次元の場合と同様、電荷移動項のエネルギー分布により引き起こされる量子ビートである事がわかった。

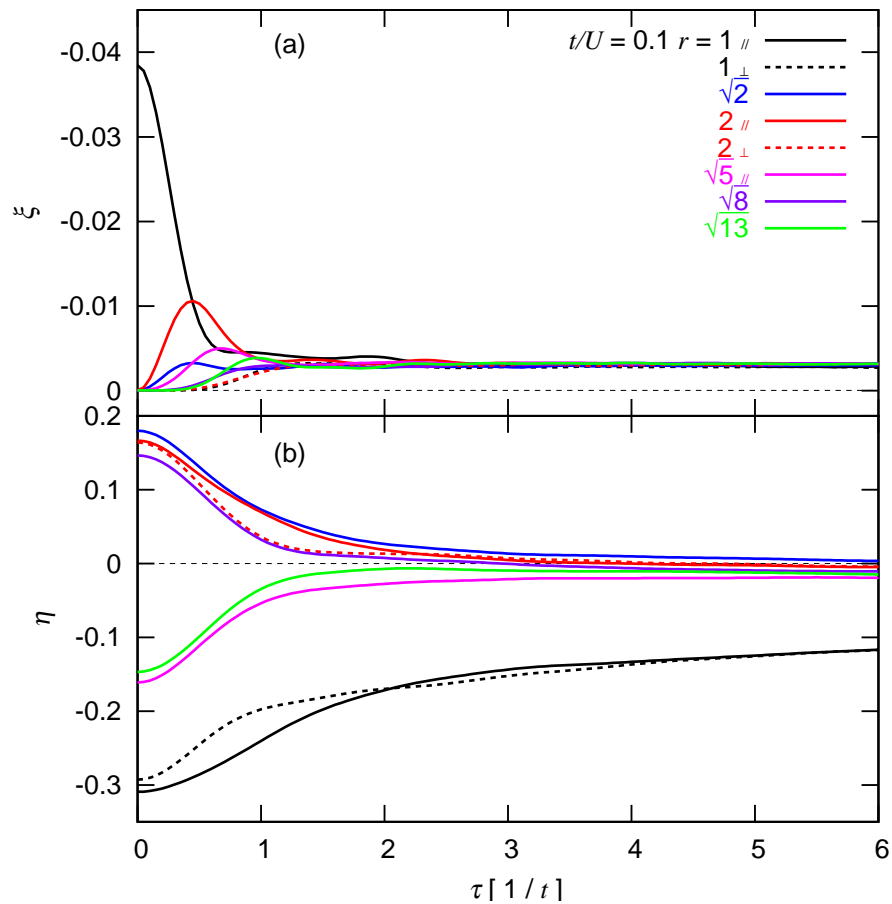


Fig. 5.8. 2次元26サイトの  $t/U = 0.1$  における (a) 電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  (b) スピン相関関数  $\eta(\tau, r)$  の時間依存性

### 5.2.3 2次元系における電荷及びスピン相関関数

第5.2.1節で述べた特徴は、電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  及びスピン相関関数  $\eta(\tau, r)$  を解析する事で、より明確となる。Fig. 5.8 (a) に  $t/U = 0.1$  における電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$ 、(b) に  $t/U = 0.1$  におけるスピン相関関数  $\eta(\tau, r)$ 、及び Fig. 5.9 (a) に  $t/U = 0.5$  における  $\xi(\tau, r)$ 、(b) に  $t/U = 0.5$  における  $\eta(\tau, r)$  をそれぞれ示す。ここで、 $r = 1_{\parallel}$  ( $1_{\perp}$ ) は、相関を取るサイト対とパルス光の偏光方向との間の角度が小さい(大きい)場合の  $r = 1$  のサイト対である。

Fig. 5.8 (a) より、時刻  $\tau = 0$  の時に  $\xi(\tau, r) \neq 0$  となるサイト対は、 $r = 1_{\parallel}$  のみである事が分かる。これは、式 (2.1.3b) からわかるように、光生成される空サイトと2重占有サイト対においては、 $r = 1_{\parallel}$  の電荷配置に全ての量子力学的重みが集中しているためである。 $\tau \leq 1$  において、 $r = 1_{\parallel}$  のサイト対にあった重みは、時間経過と共に他のサイト対に移動し、 $\xi(\tau, 1_{\parallel})$  は急激に減少する。 $\tau \geq 2$  において、 $\xi(\tau, r)$  は全てのサイト対に電荷対が一様に分配された場合の値  $-2/[N(N-1)]$  に収束する。これは、 $\xi(\tau, r)$  が急激に緩和し、電荷自由度の緩和時間は  $\tau_c \sim 1$  であることを示している。更に



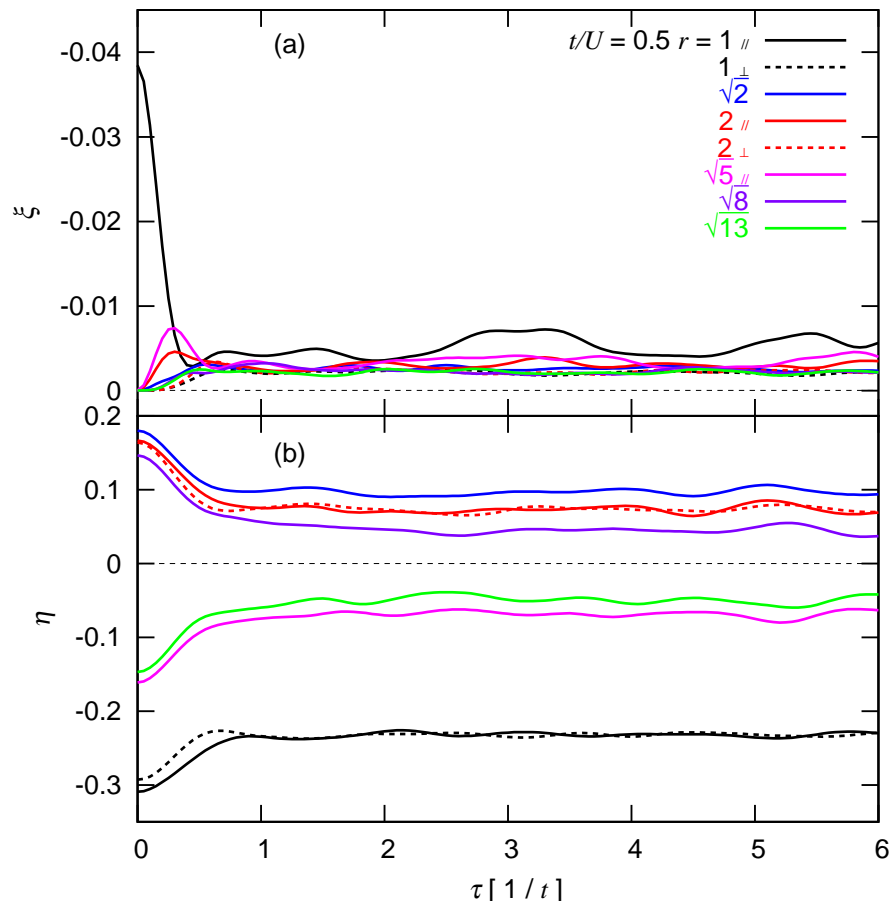


Fig. 5.9. 2次元26サイトの  $t/U = 0.5$  における (a) 電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  (b) スピン相関関数  $\eta(\tau, r)$  の時間依存性

は、光生成された電荷は、緩和の後に一様に分配され、それらの閉じ込めは観測されなかった。 $\tau \gtrsim 1$  に対して小さな振動が見られるが、これはサイト数  $N$  の増加に伴い、その振幅が減少することから、有限サイズ効果である事がわかる。

これに対し、Fig. 5.8 (b) から、スピン相関関数  $\eta(\tau, r)$  は、速い方の緩和時間  $\tau_{s1}$  ( $\sim \tau_c$ )、より遅い方の緩和時間  $\tau_{s2}$  の2つの緩和過程を持っている事がわかる。基底状態に特徴的な反強磁性的スピン秩序の長距離成分は、より遅い方の緩和の後に破壊されており、一方、短距離成分の反強磁性的スピン秩序は保たれている事がわかる。

これら緩和の特徴は、 $t/U \lesssim 0.1$  の領域において、同様に観測される。また、 $U$  を100倍まで増加した場合でさえ、 $\tau_c$  と  $\tau_{s1}$  は  $U$  にほとんど依存しない。これは、電荷の緩和とより速いスピン緩和が、式 (2.2.2) における電荷移動項  $P_m \hat{T} P_m$  により引き起こされる事を示している。この項は、前にも述べたが、 $t$  のオーダーのみに比例し、反強磁性バックグラウンド中に光生成された電荷の移動を記述する項である。移動プロセスが進むと、電荷分布は一様になり、電荷の運動エネルギー  $E_c$  は減少する。電荷の移動が、その電荷周辺の反強磁性的スピン秩序を破壊するために、 $\eta(\tau, r)$  の大きさは減

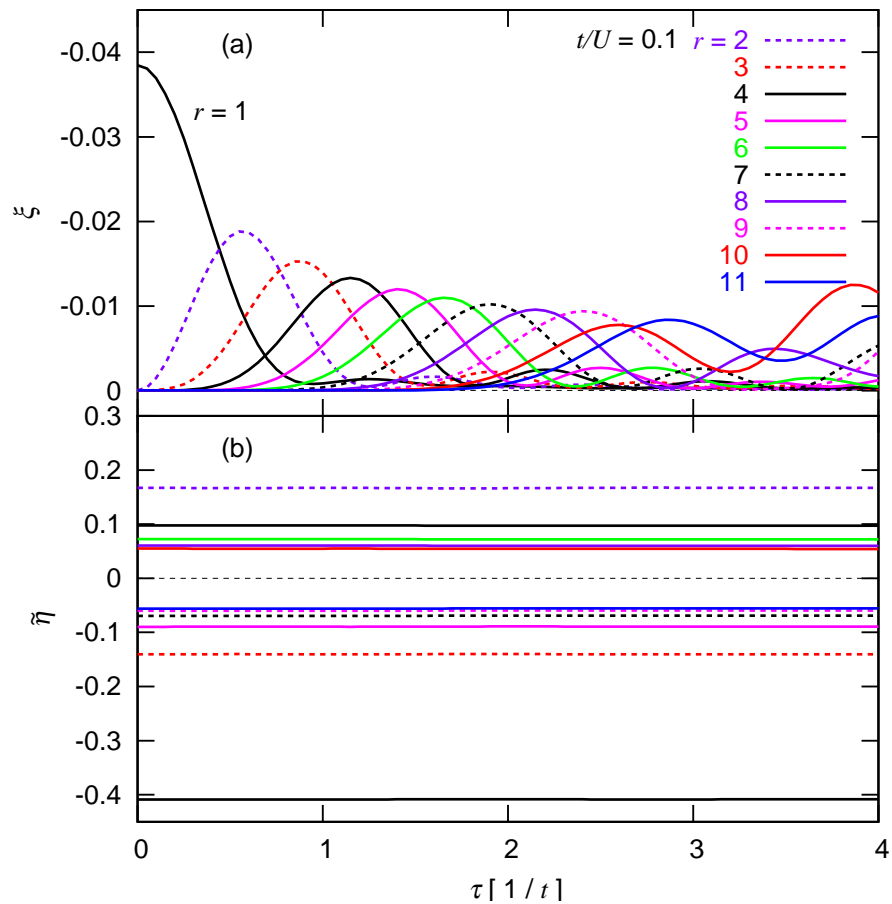


Fig. 5.10. 1次元26サイトの $t/U = 0.1$ における (a) 電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  (b) 射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(\tau, r)$  の時間依存性

少し、スピン間相互作用エネルギー  $E_s$  は電荷の移動の結果増加する。従って、この緩和過程により、電荷自由度からスピン自由度へエネルギーが移る。 $E_c \sim t$ 、 $E_s \sim NJ$  であるので、 $t/U \lesssim 0.1$  の領域においては、運動エネルギー項がスピン間相互作用エネルギー項よりも勝る。その結果、光生成された電荷は拡散し、一様に分配され、反強磁性的スピン秩序の長距離成分は緩和の後に破壊される。

一方、 $\tau_{s2}$  は、 $t/U \lesssim 0.1$  においては、 $t/U$  の増加に伴い減少する。従って、これは  $\eta(\tau, r)$  の緩和過程が、電荷の拡散の後の新しい電荷配置に対するスピン構造の再配置に起因している事を示している。

$t/U \gtrsim 0.1$  においては、Fig. 5.9 よりいくつかの異なる特徴が見えてくる。第一に、反強磁性的スピン秩序が弱くはなるが、緩和の後も破壊されない。これは、この  $t/U$  領域において、スピン間相互作用エネルギー項が運動エネルギー項に打ち勝つためである。第二に、 $\xi(\tau, r)$ 、 $\eta(\tau, r)$  共に振動が発生している。これは、サイト数  $N$  を増加させても、その振幅は殆ど変化が無かった事から、有限サイズ効果ではない。また、 $\xi(\tau, r)$  と  $\eta(\tau, r)$  の振動は相関している。即ち、 $\xi(\tau, 1_{//})$  が大きくなっている時間領域では、反強磁性的スピン秩序はより強くなっている。更には、振動の周期が  $J = 4t^2/U$

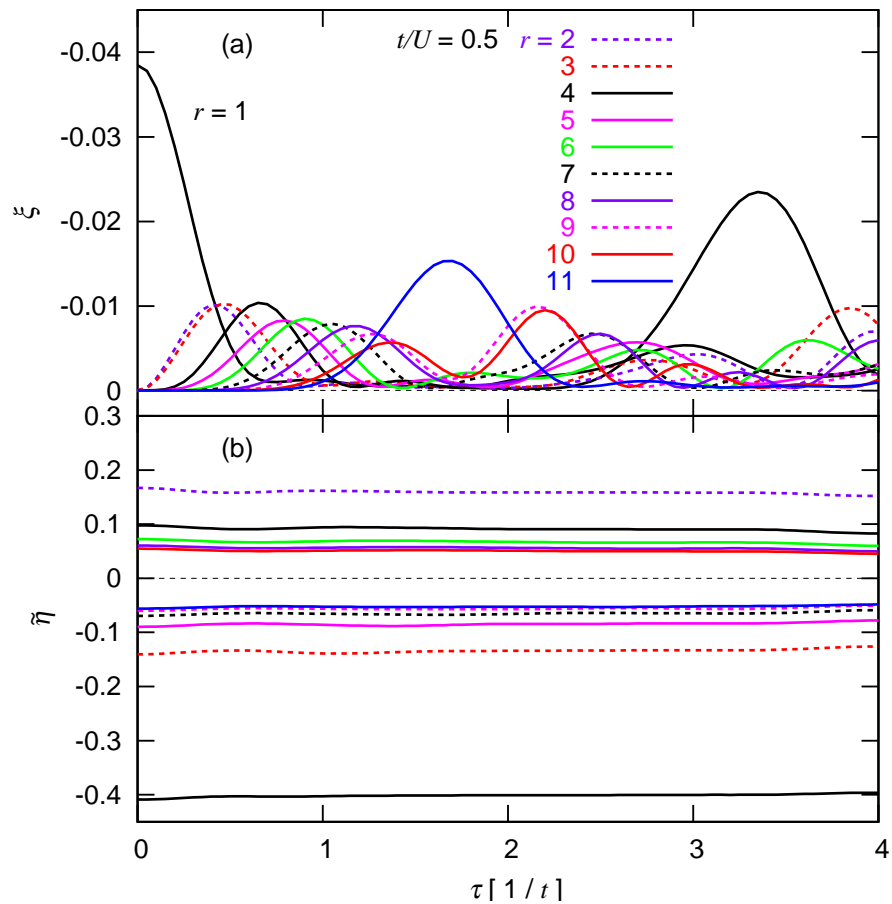


Fig. 5.11. 1次元26サイトの $t/U = 0.5$ における (a) 電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$  (b) 射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(\tau, r)$  の時間依存性

の逆数にほぼ比例している。これらの結果は、残存する反強磁性バックグラウンドによって、電荷間に引力的な相互作用が発生し、この相互作用からもたらされる振動である事を示している [45]。

これら、相関関数の解析結果は、第5.2.1節で述べたFIDの解析結果と一致している。

### 5.2.4 1次元系における電荷及びスピン相関関数

この小節では、1次元系における電荷及びスピン相関関数の解析結果を述べる。Fig. 5.10 (a) に  $t/U = 0.1$  における電荷相関関数  $\xi(\tau, r)$ 、(b) に  $t/U = 0.1$  における射影スピン相関関数  $\tilde{\eta}(\tau, r)$ 、及び Fig. 5.11 (a) に  $t/U = 0.5$  における  $\xi(\tau, r)$ 、(b) に  $t/U = 0.5$  における  $\tilde{\eta}(\tau, r)$  をそれぞれ示す。

Fig. 5.10 より、2次元系の場合とはダイナミクスが大きく異なっている事が分かる。 $\xi(\tau, r)$  に関しては、一定の値に収束するのではなく、最大の  $\xi(\tau, r)$  を与える  $r$  が、時間発展と共に同じ時間間隔で一つずつ増加しており、 $r = 1$  から  $r = 2$ 、 $r = 3$  とその時間発展パターンは非常に規則的である事が分かる。それぞれのサイト対で、 $\xi(\tau, r)$

は $\tau$ の関数としてピークを持ち、そのピーク以外の場所では $\xi(\tau, r) \sim 0$ となっている。この振る舞いは、時間領域 $\tau < 500$ まで観測される。射影スピン相関関数 $\tilde{\eta}(\tau, r)$ に関しては、時刻 $\tau < 500$ まで全てのサイト対に対して定数であった。これらの結果は、2次元の場合とは対照的に、緩和の傾向は見られず、力学的コヒーレンスが $\tau < 500$ まで保たれている事を示している。

これらの時間発展の過程における特徴は、 $t/U \lesssim 0.1$ の相関領域において共通に観測される。更には、 $U$ を100倍まで増加した場合でさえ、 $\xi(\tau, r)$ のピークが現れるその時間間隔は、 $U$ にほとんど依存しない。これは、この時間発展の過程が、反強磁性バックグラウンド中に光生成された電荷に対する電荷移動項 $P_m \hat{T} P_m$ によって引き起こされている事を示している。しかしながら、2次元の場合とは対照的に、1次元におけるこの移動は、移動する電荷近傍の反強磁性的スピン秩序を破壊しない。更には、時間領域 $\tau \gtrsim 1/J$ でさえ、 $\tilde{\eta}(\tau, r)$ の変化がみられなかった。これは、スピン - 電荷分離が成立し、分離されたスピン波動関数が、全体の時間領域において変化しない事を示している。その結果、1次元系においては、光生成されたダブロンとホロンが、スピン自由度による摩擦を受ける事なくほとんど自由に運動し、力学的コヒーレンスが保たれている事を示していると考えられる。

次に、Fig. 5.11 から $t/U \gtrsim 0.1$ の領域においては、いくつかの $t/U \lesssim 0.1$ の場合と異なる特徴が見られる。この相関領域においても、それぞれのサイト対で、 $\xi(\tau, r)$ は $\tau$ の関数としてピークを持っている事がわかる。しかしながら、 $\tau \gtrsim 2$ に対しては、 $\xi(\tau, r)$ は、ピーク以外の場所で有限値を持ち始め、そのピークの絶対値は時間と共に減少していく事がわかる。更には、 $\tilde{\eta}(\tau, r)$ の絶対値は、時間と共にゆっくりと減少していき、 $\tau \gtrsim 2$ に対して収束の傾向が見られる。これは、スピン自由度と電荷自由度の間の結合は弱い、 $t/U \gtrsim 0.1$ の領域においては無視できない事を示している。

### 5.2.5 1次元系における過渡的四光波混合

この小節から過渡的四光波混合に移る。最初に1次元系におけるTFWMの解析結果を述べる。2連光パルスの偏光方向が共に1次元鎖に平行である場合のみを考える。

Fig. 5.12 に $t/U = 0.01$ における様々な $\tau_s$ におけるTFWM強度 $I_{\text{TFWM}}$ の $(\tau - \tau_s)$ 依存性を示す。それぞれのパルス間隔において、定数倍を除き、ほとんど同じ $\tau - \tau_s$ 依存性を示している事が分かる。また、Fig. 5.7と比較すると、これらの振る舞いは、FID信号光強度の時間依存性と、定数倍を除きほとんど同じである事がわかる。従って、これらの数値計算の結果から、ごく一部の $\tau_s - \tau$ 領域を除き、関係式

$$I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s) \propto I_{\text{FID}}(\tau_s) I_{\text{FID}}(\tau - \tau_s), \quad (5.2.1)$$

が、ここで考察している全ての $t/U$ 領域で成立する。 $I_{\text{FID}}(\tau_s)$ が量子ビートの結果として極小値を持つごく一部の $\tau_s$ 領域において小さな偏差が存在し、その結果完全な一致は成立しない。

このような分離は、第二パルス光の前後の相関が無い事を示しており、注目している系と熱浴との間の結合が弱い場合に特徴的な振る舞いである [83, 84]。この場合においては、この関係は、以下で示すスピン - 電荷分離の結果として解釈する事ができる。

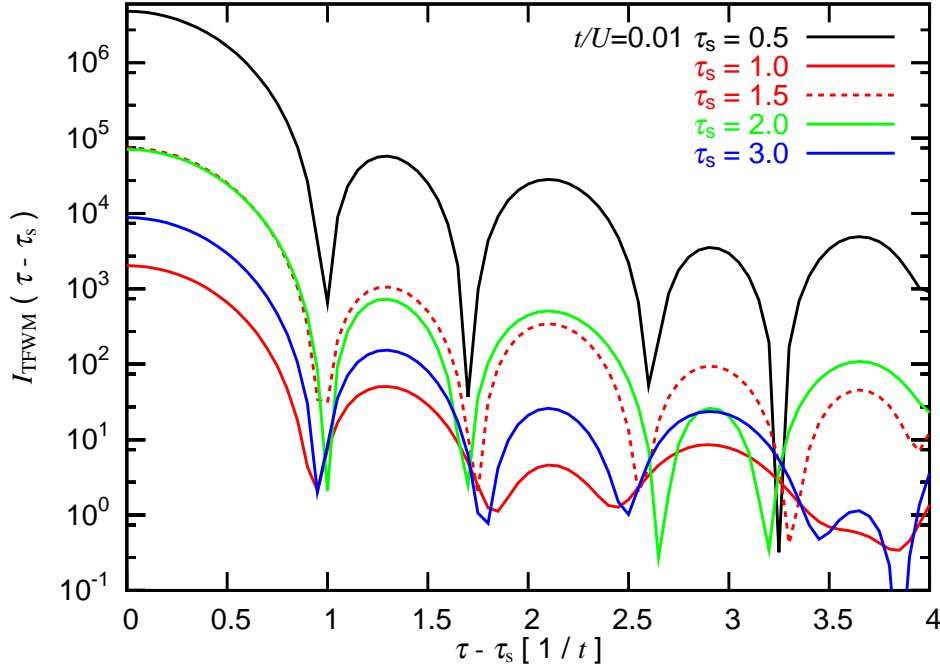


Fig. 5.12. 1次元22サイト  $t/U = 0.01$  における様々な  $\tau_s$  における TFWM 強度  $I_{\text{TFWM}}$  の  $(\tau - \tau_s)$  依存性

第一パルス光励起直後の状態ベクトルは、

$$|\psi(0)\rangle = \hat{J}_1 |\psi_0\rangle, \quad (5.2.2)$$

で与えられる。もし、このパルス光励起状態において、スピン自由度と電荷自由度が分離しているならば、 $|\psi(0)\rangle$  は、電荷波動関数  $|\phi_c\rangle$  とスピン波動関数  $|\phi_s\rangle$  の積で表わす事ができる。即ち、

$$|\psi(0)\rangle = |\phi_c(0)\rangle |\phi_s(0)\rangle, \quad (5.2.3)$$

となる。更には、電荷の運動はパルス光励起によって誘起されるが、スピン - 電荷分離の結果として、 $|\phi_s\rangle$  は変化しない。従って、時刻  $\tau$  におけるパルス光励起状態は、以下ようになる。

$$|\psi(\tau)\rangle = |\phi_c(\tau)\rangle |\phi_s(0)\rangle, \quad (5.2.4)$$

基底状態  $|\psi_0\rangle$  は、膨大な数のスピン配置の線形結合として表わす事ができる。 $\hat{J}$  が作用する事により、最近接サイトの反平行スピン対を、正符号と負符号の電荷を持ったサイト対へと変化させるので、 $|\phi_s\rangle$  は、同じ係数を備えた  $|\psi_0\rangle$  の対応するスピン配置から、最近接サイトの反平行スピン対を取り除く事によって得られるスピン配置の線形結合で与えられる。従って、事実上以下の関係が保たれる。

$$\langle \psi_p^{(0)} | P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 | \psi_0 \rangle = 0, \text{ for } p \neq 0, \quad (5.2.5)$$

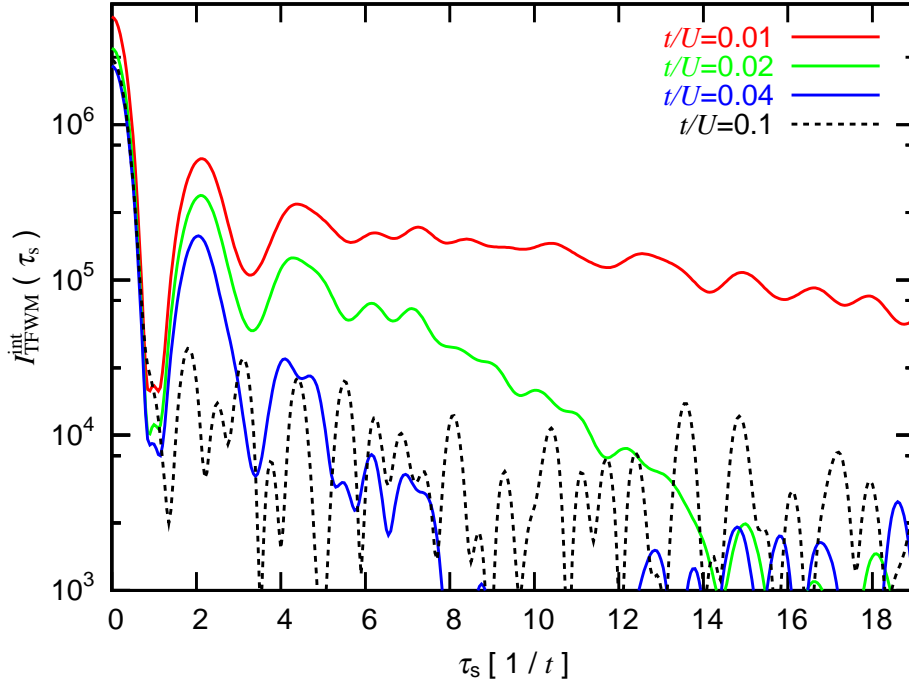


Fig. 5.13. 2次元20サイトにおける様々な  $t/U$  における TFWM 強度の時間積分値  $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$  の  $\tau_s$  依存性

ここで、 $|\psi_p^{(m)}\rangle \in S_m$  は  $H_{\text{eff}}^{(m)}$  の固有関数であり、 $|\psi_0^{(0)}\rangle = |\psi_0\rangle$  である。式 (5.1.11) と (5.1.17) を用いると、式 (5.2.5) を満足すれば、式 (5.2.1) の関係が満たされる事を示す事ができる。従って、式 (5.2.1) の関係は、スピン - 電荷分離において固有なものであるという事ができる。スピン波動関数におけるヒルベルト空間の次元は、電荷波動関数における次元よりもはるかに大きいので、励起状態の極一部だけが  $|\psi_0\rangle$  から光生成する事ができ、 $I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s)$  はこれらの励起状態によってのみ決定される。これは吸収スペクトルの分析から確認する事ができる。

式 (5.2.1) の関係があるので、 $\tau_s$  の関数としての TFWM 信号光強度の時間積分値

$$I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s) = \int_{\tau_s}^{\infty} d\tau I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s), \quad (5.2.6)$$

は、 $\tau$  の関数としての  $I_{\text{FID}}(\tau)$  と、定数倍を除き同じになる。従って、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  において観測された超高速緩和が、 $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$  においても観測する事が可能となる。

### 5.2.6 2次元系における過渡的四光波混合

次に、2次元系における TFWM の解析結果を述べる。2連光パルスの偏光方向が、共に2次元正方格子の一片に平行な場合のみの結果を示す。なぜなら、この場合に重要な結果が得られるためである。

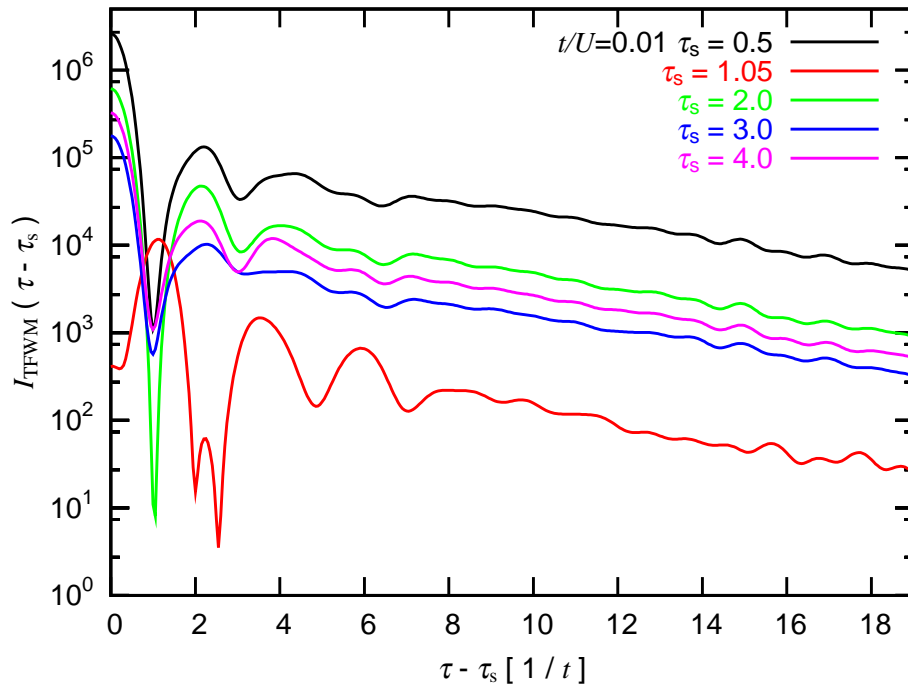


Fig. 5.14. 2次元26サイトの様々な $t/U$ におけるTFWM強度の $\tau - \tau_s$ 依存性

Fig. 5.13 に TFWM 信号光強度の時間積分値  $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$ 、Fig. 5.14 に様々な  $\tau_s$  における TFWM 信号光強度  $I_{\text{TFWM}}(\tau - \tau_s)$  の時間プロファイルを示す。

サイト数  $N = 20$  における数値計算から、考察している全ての  $t/U$  及び時間領域において、 $\tau_s$  の関数としての  $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$  は、 $\tau$  の関数としての  $I_{\text{FID}}(\tau)$  に定数倍を除き非常によく似ている事がわかる。従って、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  から得られた結果が、 $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$  から得る事ができる。実際に、Fig. 5.13 においては、有限サイズ効果がサイト数  $N = 26$  の結果よりも顕著ではあるが、2次元系に特有な特徴である、明瞭に区別される2つの緩和過程、及び量子ビートを見る事ができる。 $I_{\text{TFWM}}^{\text{int}}(\tau_s)$  の  $\tau_s$  依存性だけが、超高速緩和現象を実験的に捉える事ができるので、この結果は、低次元強相関電子系におけるこの超高速緩和を、実験的に観測できる可能性を与える。更には、Fig. 5.6 と Fig. 5.14 を比較する事により、量子ビートの結果として  $I_{\text{FID}}(\tau_s) \approx 0$  となる  $0.9 \leq \tau_s \leq 1.15$  の小さい領域を除いた  $\tau_s$  領域と全ての  $t/U$  領域において、 $\tau - \tau_s$  の関数としての  $I_{\text{TFWM}}$  もまた、 $\tau$  の関数としての  $I_{\text{FID}}(\tau)$  に、定数倍を除き非常に良く似ている事がわかる。 $0.9 \leq \tau_s \leq 1.15$  においては、 $\tau = 2\tau_s$  周辺にフォトンエコー的なピークを見る事ができる。このピークは、Fig. 5.14 における  $\tau_s = 1.05$  に見る事ができる。

2次元の場合におけるこれらの特徴は、電荷自由度とスピン自由度との弱いカップリングの結果として理解できる。スピン - 電荷分離が保たれている時、第 5.2.5 節で言及したように、式 (5.2.5) の関係が保たれる。従って、スピン - 電荷結合が弱い時、次の関係式が、ほとんどの  $\tau_s$  領域に適用できる。

$$|\langle \psi_0 | P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 | \psi_0 \rangle| \gg |\langle \psi_p^{(0)} | P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 | \psi_0 \rangle|, \text{ for } p \neq 0. \quad (5.2.7)$$

しかしながら、第5.2.1節で言及したように、 $\tau_s \sim 1$ の領域においては、量子ビートの結果として  $|\langle \psi_0 | P_0 \hat{J}_2 U^{(1)}(\tau_s) P_1 \hat{J}_1 | \psi_0 \rangle| = \sqrt{I_{\text{FID}}(\tau_s)} \approx 0$  となり、式(5.2.7)の関係は保たれない。その結果、時間相関効果はあらわになり、この  $\tau_s \sim 1$ の領域においてフォトンエコーが引き起こされる。この領域を除いて、式(5.2.7)の関係は保たれ、それゆえ式(5.2.1)の関係は近似的に保たれる。

この小節を閉じる前に、低次元強相関電子系として典型的な物質に対する緩和の実際の時間スケールについて言及する。2次元系として、2次元銅酸化物、1次元系として、1次元銅酸化物及びハロゲン架橋ニッケル錯体を対象としている。これら物質に対する値は次のように評価される。銅酸化物においては、 $t/U \sim 0.08$  及び  $1/t \sim 1.6$  フェムト秒 [3] であり、ハロゲン架橋ニッケル錯体においては、 $t/U \sim 0.09$  及び  $1/t \sim 3.0$  フェムト秒 [87] である。現時点での最短のパルス持続期間は数フェムト秒であるため、より速い緩和を観測する事は困難であるが、TFWMを用いる事でより遅い緩和を観測する事は可能であると考えられる。

これらの結果は、第5.2.3節で述べた電荷相関関数及びスピン相関関数の分析から得られた結果と一致している。しかしながら、 $I_{\text{FID}}(\tau)$  及び  $I_{\text{TFWM}}(\tau, \tau_s)$  は、相関関数よりもスピン緩和を直接的に反映する。その結果、2つの緩和過程をより明瞭に識別する事ができ、これらの分析により、定量的にスピン緩和時間を決定する事ができる。これは、ニュートロン散乱、ポンププローブ分光のような他の従来のものよりも敏感な過渡的光学過程の決定的な利点である。



## 第6章 結論

低次元強相関電子系における光誘起相転移、及び光励起状態の超高速ダイナミクスの、2つの新しくかつ強力な光学的アプローチにより得られた解析結果の結論は、以下の通りである。

第3章においては、多光子励起状態に適用可能な、ハバードモデルの有効ハミルトニアンを用いて、数値厳密対角化を行い、ハーフフィリングでの2次元20サイト正方格子における2光子励起状態を求め、その物理的性質を議論した。その結果、多光子励起状態には、多様な物質相が存在する事を明らかにした。

$t/U \leq 0.017$  においては、スピンスパイラル状態が、反強磁性的スピン秩序を持った基底状態から光生成された。 $0.017 < t/U \leq 0.032$  においては、2光子励起によって反強磁性スピン秩序が破壊され、電荷、 $d$ 波超伝導のいずれの秩序も持たない状態が光生成された。 $0.032 < t/U \leq 0.049$  及び  $0.049 < t/U$  においては、2つの異なる起源を持った $d$ 波超伝導状態が光生成された。そのうちの一つはドーピングによってもたらされる高温超伝導と同じ起源を持ち、もう一つは光励起固有の超伝導相であった。従って、この結果は、光誘起超伝導相の存在を強く示唆するものである。

第4章においては、低次元強相関電子系における光誘起相の特性の更なる調査を行うために、拡張ハバードモデルの有効ハミルトニアンを用いて、ハーフフィリングでの2次元18サイト正方格子、及び1次元18サイト鎖における、4光子励起状態までの各励起状態を数値的に厳密に求め、その物理的性質の議論を行った。

2次元系においては、現実的なクーロン相互作用パラメータの領域において、2個以上のホロンとダブロンが強く束縛されたホロン・ダブロン・クラスター (HDC) が光生成され、そのHDCが、バックグラウンド反強磁性的スピン秩序と共存するHDC状態が光生成される事がわかった。このHDC状態は、直接的クーロン相互作用だけではなく、反強磁性的スピン間相互作用にも起因する、かなりユニークな凝集機構を持っている事が示された。1次元系においては、2次元系の場合とは対照的に、光生成されたHDC状態は、反強磁性的スピン秩序によって不安定化される事が示された。これらの電荷の凝集機構は、低次元強相関電子系におけるホロンとダブロンエキゾチックな性質によりもたらされる結果である。また、1次元系と2次元系とでの凝集機構の違いは、スピン自由度と電荷自由度の間の結合の違いによって引き起こされる事が明らかになった。更に、光吸収スペクトルの計算から、これらのHDC状態が、ポンプ・プローブ光実験などで観測可能である事が示された。

第5章においては、光励起状態のダイナミクスを考察した。第3章と同じ有効ハミルトニアンを用いて、2次元26サイト正方格子（一部20サイト正方格子）及び1次元26サイト鎖における光励起状態の時間発展を数値的に厳密に求める事により、過渡

的・四光波混合、自由誘導減衰の信号光強度、及び電荷とスピン相関関数を求めた。

過渡的・四光波混合の信号は、光生成された電荷の拡散に起因した緩和と、その拡散した電荷配置に対するスピン構造の再配列に起因した緩和を敏感に反映し、スピン自由度と電荷自由度の相互作用の特徴を明確に捕らえる事が可能である事がわかった。2次元系においては、反強磁性バググラウンドへの電荷の拡散に起因するより速い緩和と、速い緩和の後に生じた新しい電荷配置に対するスピン状態の再配列に由来するより遅い緩和の2段階の明瞭に区別される緩和過程が得られた。これから、2次元系においては、スピン自由度と電荷自由度の分離が近似的に成立しており、スピンと電荷の自由度の結合は弱い事が示された。1次元系においては、ダブロンとホロンが、スピンの抵抗を受けずにほぼ自由な運動をしており、また、2次元系における速い緩和に相当する緩和過程のみが得られた事から、1次元系においては、スピン - 電荷分離がほとんど厳密に成立している事が示された。

1次元モット絶縁体であるハロゲン架橋ニッケル錯体における位相緩和のダイナミクスに関して、縮退四光波混合を用いた実験が行われている。このダイナミクスに関しては、我々のダイナミクスの理論に刺激されて実験が行われている [88]。この実験においては、縮退四光波混合の信号光強度の励起光強度依存性と温度依存性を観測している。通常の半導体を強励起した場合は、弱励起した場合と比べて位相緩和時間が短くなる事はよく知られているが、強相関物質においては、励起光強度が強くなると位相緩和時間が遅くなるという不思議な結果が出ており、まだ良くわかっていない。現在、解析が進められている。

## 謝辞

本研究は、平成12年4月から平成17年3月までの5年間において、奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科複雑系解析学講座 相原 正樹 教授のご指導の下で行われました。

ご指導して頂きました相原 正樹 教授には、強相関電子系のみならず物質科学全般における理論的解釈やその考察に関して、終始丁寧なご指導並びにご鞭撻を頂きました。ここに、深く感謝の意を表します。本講座の高橋 聡 助教授におかれましては、物質科学全般における幅広い視野からの理論的解釈及びその考察を含め、実に多大なる部分において懇切丁寧なご指導並びにご鞭撻を頂きました事に、深く感謝の意を表します。

京都大学 化学研究所 (本研究科 量子物性科学講座 併任) 金光 義彦 教授におかれましては、実験的立場からの貴重なご意見、並びに光物性全般のご助言と本論文の査読をして頂きました。凝縮系物性学講座 服部 賢 助教授には、実験的立場からの貴重なご助言、並びに本研究における副指導教官として多大なるご協力をして頂きました。お二方に対して、深く感謝致します。更に、本論文の審査に携わって頂いた先生方に深く感謝致します。

また、討論並びに適切且つ貴重なご意見を頂いた本講座の稲垣 剛 助手、重城 貴信 助手に深く感謝致します。

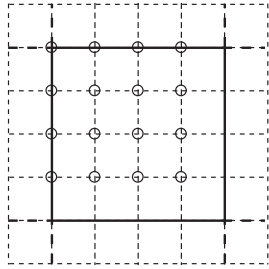
本研究において、いくつかのデータを提供して頂いた博士後期課程の伊東 久 氏、修士課程修了生の上田 敏宏 氏 (現：(株)日立アドバンスデジタル) の両氏に深く感謝します。加えて、本講座の方々にも非常に多くのご協力を頂きました事に、ここでお礼を申し上げます。その他、私を支えて頂いた全ての方にお礼を申し上げます。

この研究の一部は、文部科学省及び独立行政法人日本学術振興会からの科学研究費補助金、特定領域 B「光誘起相転移とその動力学」及び (C)No. 15540312 の下で行われており、数値計算結果の一部は、日本原子力研究所関西研究所における SSCMPP システムと東京大学物性研究所スーパーコンピューターシステムの大規模並列計算機を用いて得られています。

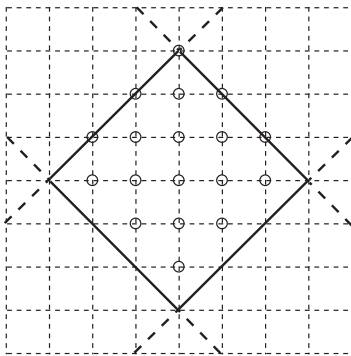
最後に、本講座は他に類を見ない程に恵まれた設備や環境に囲まれており、ここで物性理論を専攻できた事は幸運でした。5年間の短い期間ではありましたが、ここで研究生活を送れた事に感謝致します。

末筆ながら、以上をもって謝辞とさせていただきます。

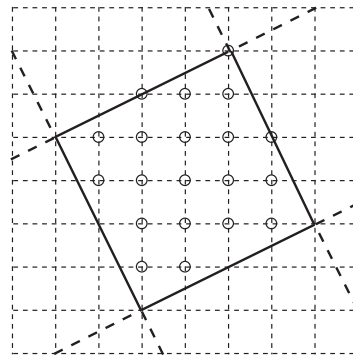
# 付録A システムサイズ



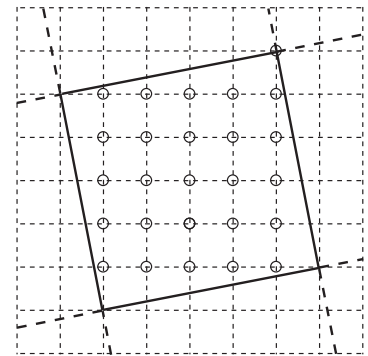
16 site



18 site

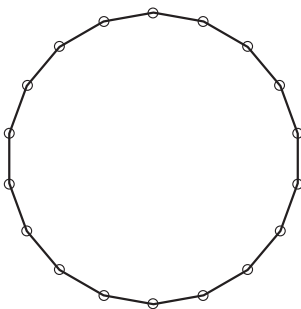


20 site

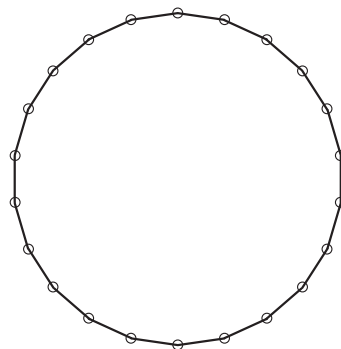


26 site

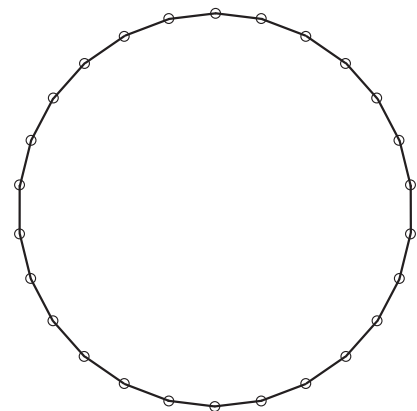
計算で用いた2次元正方格子での各システムサイズ  $N$



18 site



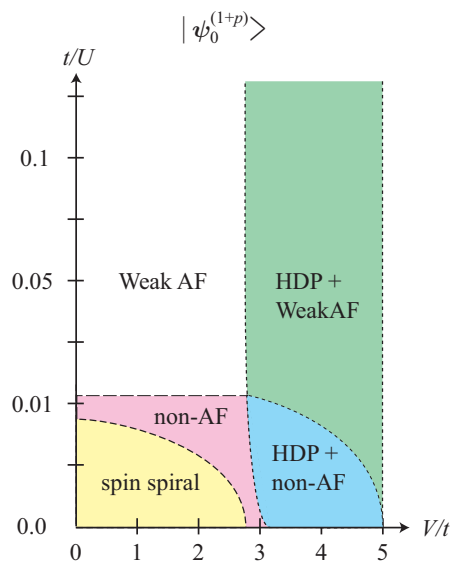
22 site



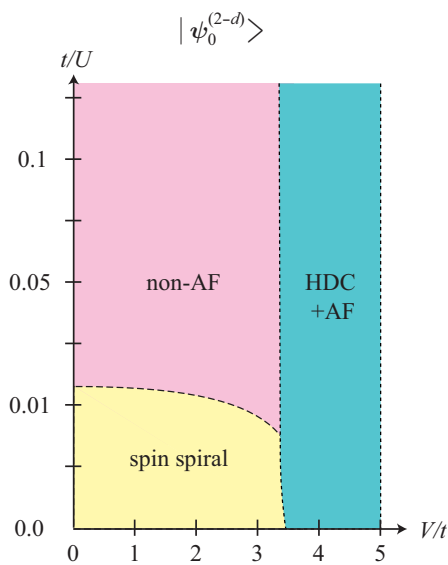
26 site

計算で用いた1次元鎖での各システムサイズ  $N$

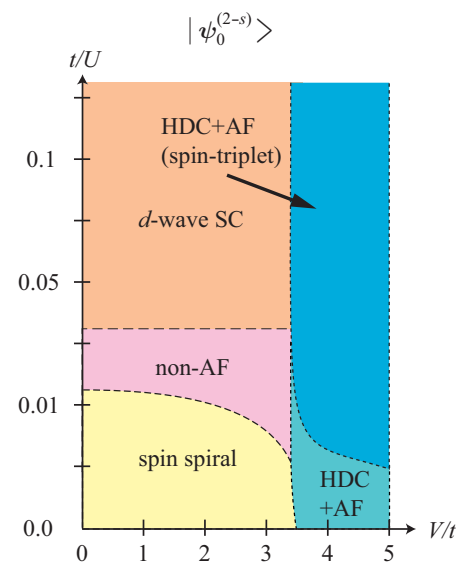
# 付録B 光誘起相転移： 拡張ハバードモデルを用いた 解析による2次元系における 相図



2次元1光子励起状態  $|\psi_0^{(1+p)}\rangle$  における相図



2次元2光子励起状態  $|\psi_0^{(2-d)}\rangle$  における  
相図



2次元2光子励起状態  $|\psi_0^{(2-s)}\rangle$  における  
相図

## 付録C ハミルトニアンへの導出

低次元強相関電子系における、光誘起相転移及び光励起状態の超高速ダイナミクスを解析するために、古典電磁場と結合した低次元強相関電子系を記述するハミルトニアンを考える。

荷電粒子を質量  $m$ 、電荷  $-q$  を持った電子とする。電磁場中を運動する電子を記述する 1 電子のハミルトニアンは、

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} + \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(\mathbf{r}), \quad (\text{C.0.1})$$

で与えられる。  $N$  電子系におけるハミルトニアンは、

$$\hat{H} = \sum_j \left\{ \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p}_j + \frac{q}{c} \mathbf{A}_j \right)^2 + U(\mathbf{r}_j) \right\} + \frac{1}{2} \sum_{j,l} V(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l), \quad (\text{C.0.2})$$

で与えられる。  $c$  は光速、  $\mathbf{p}$  は電子の運動量であり、  $\mathbf{r}$  は電子の位置ベクトル、  $\mathbf{A}$  はベクトルポテンシャル、  $U$  はイオン殻などからポテンシャルエネルギー、  $V$  は電子間クーロンエネルギーである。ここで、スカラーポテンシャルが 0 となるゲージを用いている。光の波長のオーダーが  $1000 \text{ \AA}$  であり、考察する系の大きさは  $10 \text{ \AA}$  程度であるから、注目する領域においては、  $\mathbf{A}$  はほとんど変化は無いとみなせる。従って、  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, \tau)$  は  $\mathbf{r}$  に対して一定である、即ち、

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, \tau) \approx \mathbf{A}(\tau), \quad (\text{C.0.3})$$

と近似する。

次に (C.0.2) 式のハミルトニアンを第二量子化におけるハミルトニアンに書き換える。ここで、  $n$  サイトにあるスピン  $\sigma$  を持った電子の基底波動関数  $\phi_{n,\sigma}(\mathbf{r})$  を、次のように新しい基底  $\varphi_{n,\sigma}(\mathbf{r})$  にユニタリー変換する。即ち、

$$\varphi_{n,\sigma}(\mathbf{r}) = \exp\left(-\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A}(\tau) \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_n)\right) \phi_{n,\sigma}(\mathbf{r}), \quad (\text{C.0.4})$$

ここで、  $\mathbf{Q}_n$  はサイト  $n$  の位置ベクトルである。

$$\begin{aligned} \left( \mathbf{p} + \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) e^{-\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_n)} &= e^{-\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_n)} \left( -\frac{q}{c} \mathbf{A} + \mathbf{p} + \frac{q}{c} \mathbf{A} \right) \\ &= e^{-\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_n)} \mathbf{p}, \end{aligned}$$

となる事を用いると、この基底を用いた場合の最近接  $n$ 、  $m$  サイト間のトランスファ積分  $\tilde{t}_{nm}$  と、同一サイトクーロン相互作用  $\tilde{U}$ 、最近接サイト間のクーロン相互作用  $\tilde{V}_{nm}$

は、以下のようになる。

$$\begin{aligned}
\tilde{t}_{nm} &= \int d\mathbf{r} \varphi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \left\{ \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} + \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(\mathbf{r}) \right\} \varphi_{m,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= \int d\mathbf{r} e^{\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_n)} \phi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \left\{ \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} + \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(\mathbf{r}) \right\} e^{-\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{Q}_m)} \phi_{m,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= e^{\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)} \int d\mathbf{r} \phi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \left\{ \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 + U(\mathbf{r}) \right\} \phi_{m,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= e^{\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)} t_{nm} , \\
\tilde{U} &= \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \varphi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{n,\sigma'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \varphi_{n,\sigma'}(\mathbf{r}') \varphi_{n,\sigma}(\mathbf{r}) , \\
&= \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \phi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \phi_{n,\sigma'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \phi_{n,\sigma'}(\mathbf{r}') \phi_{n,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= U , \\
\tilde{V}_{nm} &= \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \varphi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{m,\sigma'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \varphi_{m,\sigma'}(\mathbf{r}') \varphi_{n,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \phi_{n,\sigma}^*(\mathbf{r}) \phi_{m,\sigma'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \phi_{m,\sigma'}(\mathbf{r}') \phi_{n,\sigma}(\mathbf{r}) \\
&= V_{nm} ,
\end{aligned}$$

従って、電磁場が存在する場合のハミルトニアンは、

$$\begin{aligned}
\hat{H} &= \sum_{n,m} \sum_{\sigma} t_{nm} \left\{ e^{\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)} \right\} c_{n,\sigma}^\dagger c_{m,\sigma} + \sum_n U c_{n,\uparrow}^\dagger c_{n,\downarrow}^\dagger c_{n,\downarrow} c_{n,\uparrow} \\
&\quad + \sum_{n,m} \sum_{\sigma,\sigma'} V_{nm} c_{n,\sigma}^\dagger c_{n,\sigma} c_{m,\sigma'}^\dagger c_{m,\sigma'} \\
&= -t \sum_{n,m} \sum_{\sigma} \left\{ e^{\frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A} \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)} \right\} c_{n,\sigma}^\dagger c_{m,\sigma} + \sum_n U c_{n,\uparrow}^\dagger c_{n,\downarrow}^\dagger c_{n,\downarrow} c_{n,\uparrow} \\
&\quad + \sum_{n,m} \sum_{\sigma,\sigma'} V c_{n,\sigma}^\dagger c_{n,\sigma} c_{m,\sigma'}^\dagger c_{m,\sigma'} , \quad (\text{C.0.5})
\end{aligned}$$

となる。ただし、 $c_{n,\sigma}^\dagger$  は、 $\varphi_{n,\sigma}(r)$  の生成演算子、 $\sum_{n,m}^{\text{NN}}$  は、サイト  $n$  と  $m$  とが最近接サイトである場合にのみ和をとる事を意味し、以下新しい基底  $\varphi$  のみを用いるとし、簡単のため  $\sim$  を取ることにする。 $a$  を格子定数、 $\mathbf{e}$  をベクトルポテンシャルの単位方向ベクトルと置き、以下のように  $F(\tau)$  を定義する

$$a \frac{iq}{\hbar c} \mathbf{A}(\tau) = \mathbf{e} F(\tau) ,$$

ここで、

$$\frac{aq}{\hbar c} |\mathbf{A}(\tau)| \ll 1 ,$$

であるとし、 $F(\tau)$  の一次までとると、(C.0.5) 式は

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_{e-p}, \quad (\text{C.0.6})$$

$$\hat{H}_e = -t \sum_{n,m} \sum_{\sigma} c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} + \sum_n U c_{n,\uparrow}^{\dagger} c_{n,\downarrow}^{\dagger} c_{n,\downarrow} c_{n,\uparrow} + \sum_{n,m} \sum_{\sigma,\sigma'} V c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} c_{m,\sigma'}^{\dagger} c_{m,\sigma'}, \quad (\text{C.0.7})$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{e-p} &= -t \sum_{n,m} \sum_{\sigma} (\mathbf{e} \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)/a) c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} F(\tau) \\ &= -it \frac{q}{\hbar c} \sum_{n,m} \sum_{\sigma} (\mathbf{A}(\tau) \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)) c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma}, \end{aligned} \quad (\text{C.0.8})$$

ここで、 $\hat{H}_e$  は拡張ハバードハミルトニアンであり、 $\hat{H}_{e-p}$  は電子光子相互作用ハミルトニアンである。



## 付録D 電流演算子

電流演算子  $\hat{J}(\tau)$  は、連続の方程式（電荷保存則）

$$\frac{\partial \hat{\rho}(\mathbf{r}, \tau)}{\partial \tau} = -\text{div} \hat{\mathbf{i}}(\mathbf{r}, \tau), \quad (\text{D.0.1})$$

を満足する電流密度演算子： $\hat{\mathbf{i}}(\mathbf{r}, \tau)$  によって定義される。そこで、この Appendix では、強束縛近似が成立している場合の電流演算子： $\hat{J}(\tau)$  を考える。

強束縛近似が成立している場合、電流は電子の運動エネルギー項により電子がホッピングする事によって発生する。拡張ハバードモデルを考えた場合、電子のホッピングは、

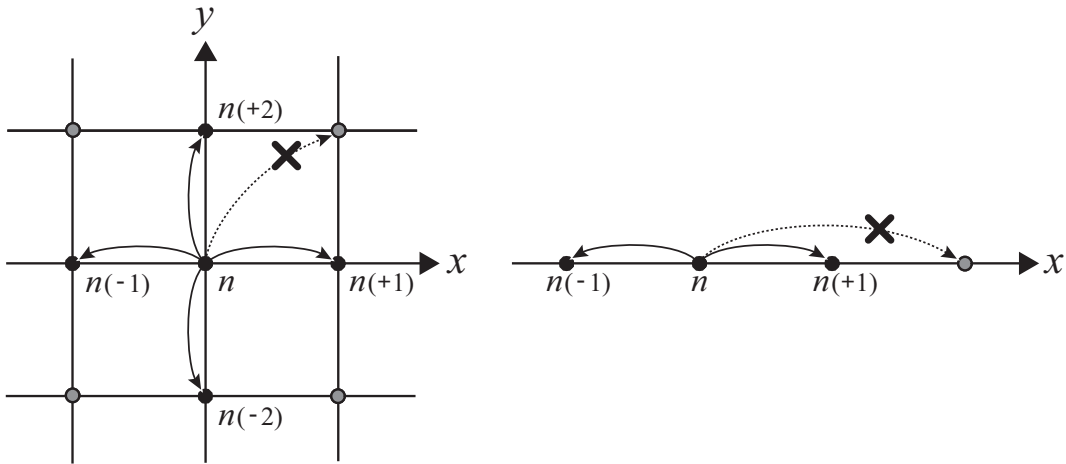


Fig. D.1. 2次元及び1次元における、サイト  $n$  からの電子のホッピングの概念図  $n(\pm 1), n(\pm 2), n(\pm 3)$  : サイト  $n$  の  $\pm x, \pm y, \pm z$  方向への最近接サイトとする

で示された最近接サイトへのホッピングのみが可能である。そこで、サイト  $n$  における電荷密度演算子： $\hat{\rho}(n)$  を、以下のように定義する事ができる。

$$\hat{\rho}(n) = q \left( 1 - \sum_{\sigma} c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} \right). \quad (\text{D.0.2})$$

この  $\hat{\rho}(n)$  に対するハイゼンベルグの運動方程式は、

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \hat{\rho}_H(n, \tau)}{\partial \tau} &= [\hat{\rho}_H(n), \hat{H}_e] = \left[ e^{i\hat{H}_e\tau} \hat{\rho}(n) e^{-i\hat{H}_e\tau}, \hat{H}_e \right] = e^{i\hat{H}_e\tau} [\hat{\rho}(n), \hat{H}_e] e^{-i\hat{H}_e\tau} \\ &= e^{i\hat{H}_e\tau} \left[ -q \sum_{\sigma} c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma}, \hat{H}_e \right] e^{-i\hat{H}_e\tau} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= e^{i\hat{H}_e\tau} \left[ -q \sum_{\sigma} c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma}, -t \sum_{l,m} \sum_{\sigma'} c_{l,\sigma'}^{\dagger} c_{m,\sigma'} \right] e^{-i\hat{H}_e\tau} \\
&= e^{i\hat{H}_e\tau} qt \sum_{\sigma} \sum_{l,m} \sum_{\sigma'} \left[ c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma}, c_{l,\sigma'}^{\dagger} c_{m,\sigma'} \right] e^{-i\hat{H}_e\tau} \\
&= e^{i\hat{H}_e\tau} qt \sum_{\sigma} \sum_{l,m} \sum_{\sigma'} \left( c_{n,\sigma}^{\dagger} \{c_{n,\sigma}, c_{l,\sigma'}^{\dagger}\} c_{m,\sigma'} - \{c_{n,\sigma}^{\dagger}, c_{l,\sigma'}^{\dagger}\} c_{n,\sigma} c_{m,\sigma'} \right. \\
&\quad \left. + c_{l,\sigma'}^{\dagger} c_{n,\sigma}^{\dagger} \{c_{n,\sigma}, c_{m,\sigma'}\} - c_{l,\sigma'}^{\dagger} \{c_{n,\sigma}^{\dagger}, c_{m,\sigma'}\} c_{n,\sigma} \right) e^{-i\hat{H}_e\tau} \\
&= e^{i\hat{H}_e\tau} qt \sum_{\sigma} \sum_{l,m} \sum_{\sigma'} \left( c_{n,\sigma}^{\dagger} \delta_{n,l} \delta_{\sigma,\sigma'} c_{m,\sigma'} - c_{l,\sigma'}^{\dagger} \delta_{n,m} \delta_{\sigma,\sigma'} c_{n,\sigma} \right) e^{-i\hat{H}_e\tau} \\
&= e^{i\hat{H}_e\tau} qt \sum_{\sigma} \sum_j^D \left( c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n(j),\sigma} - c_{n(j),\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} \right) e^{-i\hat{H}_e\tau}. \tag{D.0.3}
\end{aligned}$$

ここで用いた表記は以下の通りである。

$\hat{O}$	: シュレーティング表示における演算子
$\hat{O}_H(\tau)$	: ハイゼンベルグ表示における演算子 $\hat{O}_H = e^{i\hat{H}\tau} \hat{O} e^{-i\hat{H}\tau}$
$[A, B]$	: 演算子 $A$ と $B$ の交換関係
$\{A, B\}$	: 演算子 $A$ と $B$ の反交換関係
$\sum_j^D$	: $j = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots, \pm D$ についての和
$D$	: 次元数

$n(j)$ ,  $j = \pm 1, \pm 2, \pm 3$

$n(\pm 1), n(\pm 2), n(\pm 3)$  : サイト  $n$  の  $\pm x, \pm y, \pm z$  方向への最近接サイト

次に、サイト  $n$  における  $j$  方向が、以下のように与えられるベクトル演算子  $\hat{i}$  を定義する。

$$\hat{i}_j(n) = -iaqt \sum_{\sigma} \left( c_{n(j),\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} - c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n(j),\sigma} \right), \tag{D.0.4}$$

ここで、 $a$  は最近接サイト間間隔である。

離散モデルにおいては、

$$\frac{\partial \hat{i}_x(n)}{\partial x} \equiv \frac{\hat{i}_x(n) - \hat{i}_x(n(-x))}{a}, \tag{D.0.5}$$

となる。

$$\begin{aligned}
\sum_{j=1}^D \left( \hat{i}_j(n) - \hat{i}_j(n(-j)) \right) &= -iaqt \sum_{j=1}^D \sum_{\sigma} \left( c_{n(j),\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} - c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n(j),\sigma} - c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n(-j),\sigma} + c_{n(-j),\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} \right) \\
&= iaqt \sum_j^D \sum_{\sigma} \left( c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{n(j),\sigma} - c_{n(j),\sigma}^{\dagger} c_{n,\sigma} \right), \tag{D.0.6}
\end{aligned}$$

となる事から、(D.0.3)の右辺の括弧内に対し、(D.0.6)を代入し、(D.0.5)の関係を用いると、

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \hat{\rho}_H(n, \tau)}{\partial \tau} &= e^{i\hat{H}_e\tau} \sum_{j=1}^D \frac{-1}{a} \left( \hat{i}_j(n) - \hat{i}_j(n(-j)) \right) e^{-i\hat{H}_e\tau} \\
&= \sum_{j=1}^D \frac{-1}{a} \left( e^{i\hat{H}_e\tau} \hat{i}_j(n) e^{-i\hat{H}_e\tau} - e^{i\hat{H}_e\tau} \hat{i}_j(n(-j)) e^{-i\hat{H}_e\tau} \right) \\
&= -\text{div} \hat{\mathbf{i}}_H(n, \tau), \tag{D.0.7}
\end{aligned}$$

となる。連続の方程式(D.0.1)を満たす事から、(D.0.4)で定義される $\hat{\mathbf{i}}$ は、電流密度演算子である事が示された。

(D.0.4)を用いると(C.0.8)で与えられる電子光子相互作用ハミルトニアン： $H_{e-p}$ は、

$$\begin{aligned}
H_{e-p} &= -iqt \sum_{n,m} \sum_{\sigma}^{\text{NN}} (\mathbf{A}(\tau) \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_n)) c_{n,\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} \\
&= -iqt \sum_m \sum_j^D \sum_{\sigma} (\mathbf{A}(\tau) \cdot (\mathbf{Q}_m - \mathbf{Q}_{m(j)})) c_{m(j),\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} \\
&= -iqat \sum_m \sum_{j=1}^D \sum_{\sigma} A_j(\tau) \left( -c_{m(j),\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} + c_{m(-j),\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} \right) \\
&= -iqat \sum_m \sum_{j=1}^D \sum_{\sigma} A_j(\tau) \left( -c_{m(j),\sigma}^{\dagger} c_{m,\sigma} + c_{m,\sigma}^{\dagger} c_{m(j),\sigma} \right) \\
&= -\sum_m \sum_{j=1}^D \mathbf{A}(\tau) \cdot \mathbf{e}_j \hat{i}_j(m) = -\sum_m \mathbf{A}(\tau) \cdot \hat{\mathbf{i}}(m) \\
&= -\mathbf{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{J}} \tag{D.0.8}
\end{aligned}$$

ここで用いた表記は以下の通りである。

$$\begin{aligned}
c &= \hbar = 1 \\
A_j(t) &= \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{e}_j \\
\mathbf{Q}_{m(j)} - \mathbf{Q}_m &= \mathbf{e}_j a \\
\mathbf{e}_j &: j \text{ 方向の単位ベクトル}
\end{aligned}$$

## 参考文献

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Müller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [2] E. Dagotto, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 763 (1994), and references therein.
- [3] M. Imada, A. Fujimori and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998), and references therein.
- [4] D. J. Scalapino, *Phys. Rep.* **250**, 329 (1995), and references therein.
- [5] T. Ogasawara, M. Ashida, N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, Y. Tokura, H. Ghosh, A. Shukla, S. Mazumdar, and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2204 (2000).
- [6] M. Ashida, T. Ogasawara, Y. Tokura, S. Uchida, S. Mazumdar, and M. Kuwata-Gonokami, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2831 (2001).
- [7] H. Kishida, H. Matsuzaki, H. Okamoto, T. Manabe, M. Yamashita, Y. Taguchi, and Y. Tokura, *Nature* **405**, 929 (2000).
- [8] H. Kishida, M. Ono, K. Miura, H. Okamoto, M. Izumi, T. Manako, M. Kawasaki, Y. Taguchi, Y. Tokura, T. Tohyama, K. Tsutsui, S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 177401 (2001).
- [9] M. Ono, K. Miura, A. Maeda, H. Matsuzaki, H. Kishida, Y. Taguchi, Y. Tokura, M. Yamashita and M. Okamoto, *Phys. Rev B* **70**, 85101 (2004).
- [10] Y. Mizuno, K. Tsutsui, T. Tohyama, and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **62**, R4769 (2000).
- [11] G. P. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2086 (2001).
- [12] S. Koshihara, Y. Tokura, T. Mitani, G. Saito, and T. Koda, *Phys. Rev B* **42**, 6853 (1990).
- [13] S. Koshihara, Y. Takahashi, H. Sakai, Y. Tokura and T. Luty, *J. Phys. Chem. B* **103**, 2592 (1999).
- [14] S. Koshihara, K. Akimoto, Y. Tokura, K. Takeda and T. Koda, in *Relaxations of Excited States and Photo-induced Structural Phase Transition*, edited by K. Nasu, (Springer-Verlag, Berlin, 1997), p. 105.

- 
- [15] S. Decurtins, P. Gutlich, C. P. Kohler, H. Spiering, and A. Hauser, *Chem. Phys Lett.* **105**, 1 (1984).
- [16] K. Matsuda, A. Machida, Y. Moritomo and A. Nakamura, *Phys. Rev. B* **58**, R4203 (1998).
- [17] X. J. Liu, Y. Moritomo, A. Nakamura, T. Hirano, S. Toyozaki, and N. Kojima, *Phys. Rev. B* **61**, 20 (2000).
- [18] R. Yamamoto, Y. Moritomo and A. Nakamura, *Phys. Rev. B* **61**, R5062 (2000).
- [19] Y. Ogawa, S. Koshihara, K. Koshino, T. Ogawa, C. Urano, and H. Takagi, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3181 (2000).
- [20] O. Sato, T. Iyoda, A. Fujishima and K. Hashimoto, *Science* **272**, 704 (1996).
- [21] M. Fiebig, K. Miyano, Y. Tomioka and Y. Tokura, *Science* **280**, 1925 (1998).
- [22] H. Matsuzaki, T. Matsuoka, H. Kishida, K. Takizawa, H. Miyasaka, K. Sugiura, M. Yamashita, and H. Okamoto, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 046401 (2003).
- [23] H. Matsuzaki, W. Fujita, K. Awaga, and H. Okamoto, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 017403 (2003).
- [24] S. Iwai, M. Ono, A. Maeda, H. Matsuzaki, H. Kishida, H. Okamoto, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 057401 (2003).
- [25] P. W. Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
- [26] 岸田英夫, 岡本 博, *固体物理* **36**, 125 (2001).
- [27] C. Kim, A. Y. Matsuura, Z.-X. Shen, N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, T. Tohyama, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4054 (1996).
- [28] C. Kim, Z.-X. Shen, N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, T. Tohyama and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **56**, 15589 (1997).
- [29] H. Suzuura, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. B* **56**, 3548 (1997).
- [30] B. O. Wells, Z.-X. Shen, A. Y. Matsuura, D. M. King, M. A. Kastner, M. Greven, and R. J. Birgeneau, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 964 (1995).
- [31] N. Tomita, and K. Nasu, *Phys. Rev. B* **60**, 8602 (1999).
- [32] A. V. Chubukov, and D. N. Frenkel, *Phys. Rev.* **52**, 9760 (1995).
- [33] G. Blumberg, P. Abbamonte, M. V. Klein, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, L. L. Miller, and A. Zibold, *Phys. Rev. B* **53**, R11930 (1996).

- 
- [34] T. Tohyama, H. Onodera, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 257405 (2002).
- [35] K. Koshino, and T. Ogawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **67**, 2174 (1998).
- [36] O. Sakai, T. Ogawa, and K. Koshino, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 978 (2002).
- [37] O. Sakai, M. Ishii, T. Ogawa, and K. Koshino, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2052 (2002).
- [38] F. Gebhard, K. Bott, M. Scheidler, P. Thomas, and W. Koch, *Phil. Mag. B*, **75**, 13 (1997).
- [39] F. Gebhard, K. Bott, M. Scheidler, P. Thomas, and W. Koch, *Phil. Mag. B*, **75**, 47 (1997).
- [40] F. B. Gallagher and S. Mazumdar, *Phys. Rev. B* **56**, 15025 (1997).
- [41] F. H. L. Essler, F. Gebhard, and E. Jeckelmann, *Phys. Rev. B* **64**, 125119 (2001).
- [42] E. Jeckelmann, *Phys. Rev. B* **67**, 75106 (2003).
- [43] J. M. P. Carmelo, N. M. R. Peres, and P. D. Sacramento, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4763 (2000).
- [44] H. Onodera, T. Tohyama, and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **69**, 245117 (2004).
- [45] A. Takahashi, S. Yoshikawa, and M. Aihara, *Phys. Rev. B* **65**, 085103 (2002).
- [46] J. Cizek, J. Paldus, and I. Hubac, *Int. J. Quantum Chem.* **8**, 951 (1974).
- [47] G. Yu, C. H. Lee, A. J. Heeger, N. Herron, and E. M. McCarron, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2581 (1991).
- [48] G. Yu, C. H. Lee, A. J. Heeger, N. Herron, E. M. McCarron, L. Cong, G. C. Spalding, C. A. Nordman, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **45**, 4964 (1992).
- [49] V. I. Kudinov, I. L. Chaplygin, A. I. Kirilyuk, N. M. Kreines, R. Laiho, E. Lähderanta, and C. Ayache, *Phys. Rev. B* **47**, 9017 (1993).
- [50] C. Stockinger, W. Markowitsch, W. Lang, W. Kula, and R. Sobolewski, *Phys. Rev. B* **57**, 8702 (1998).
- [51] G. Nieva, E. Osquiguil, J. Guimpel, M. Maenhoudt, B. Wuyts, Y. Bruynseraede, M. B. Maple, and Ivan K. Schuller, *Phys. Rev. B* **46**, 14249 (1992).
- [52] A. Takahashi, H. Gomi, and M. Aihara, *J. Lumin.* **94-95**, 499 (2001).
- [53] A. Takahashi, H. Gomi, and M. Aihara, *Phys. Rev. B* **66**, 115103 (2002).

- 
- [54] M. Aihara, A. Takahashi, and H. Gomi, *Int. J. Mod. Phys*, **17**, 3370 (2003).
- [55] 五味広喜 修士論文 0031036 (2002).
- [56] G. Fano, F. Ortolani, and A. Parola, *Phys. Rev. B* **42**, 6877 (1990).
- [57] B. Douçot and X. G. Wen, *Phys. Rev. B* **40**, 2719 (1989).
- [58] M. Ueta, H. Kanzaki, H. Kobayashi, Y. Toyozawa, and E. Hanamura, *Excitonic Processes in Solids* (Springer, Berlin, 1986).
- [59] N. Peyghambarian, S. W. Koch, and A. Mysyrowicz, *Introduction to Semiconductor Optics* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1993).
- [60] T. Ogawa, in *Optical Properties of Low-Dimensional Materials*, edited by T. Ogawa and Y. Kanemitsu, (World Scientific, 1995), Chap. 1.
- [61] T. Ogawa, and T. Takagahama, *Phys. Rev. B* **44**, 8138 (1991).
- [62] K. Harigaya, in *Optical Properties of Low-Dimensional Materials*, edited by T. Ogawa and Y. Kanemitsu, (World Scientific, 1998), Vol. 2, Chap. 1.
- [63] S. Abe, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 62 (1989).
- [64] Z. Shuai, J. L. Bredas, S. K. Pati, and S. Ramasesha, *Phys. Rev. B* **58**, 15329 (1998).
- [65] F. Guo, M. Chanfross, and S. Mazumdar, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2086 (1995).
- [66] F. B. Gallagher, and F. C. Spano, *Phys. Rev B* **53**, 3790 (1996).
- [67] A. Chakrabarti, A. Shumidt, V. Valencia, B. Fluegel, S. Mazumdar, N. Armstrong, and N. Peyghambarian, *Phys. Rev B* **57**, 4206 (1998).
- [68] S. Mazumdar, F. Guo, K. Meissner, B. Fluegel, N. Peyghambarian, M. Kuwata-Gonokami, Y. Sato, K. Ema, R. Shimano, T. Tokihiro, H. Ezaki, and E. Hanamura, *J. Chem. Phys.* **104**, 9292 (1996).
- [69] M. Kuwata-Gonokami, N. Peyghambarian, K. Meissner, B. Fluegel, Y. Sato, K. Ema, R. Shimano, S. Mazumdar, F. Guo, T. Tokihiro, H. Ezaki, and E. Hanamura, *Nature (London)* **367**, 47 (1994).
- [70] S. Mazumdar, F. Guo, K. Meissner, B. Fluegel, N. Peyghambarian, M. Kuwata-Gonokami, Y. Sato, K. Ema, R. Shimano, T. Tokihiro, H. Ezaki, and E. Hanamura, *J. Chem. Phys.* **104**, 9283 (1996).

- 
- [71] H. Ezaki, T. Tokihiro, M. Kuwata-Gonokami, R. Shimano, K. Ema, E. Hanamura, B. Fluegel, K. Meissner, S. Mazumdar, and N. Peyghambarian, *Solid State Commun.* **88**, 211 (1993).
- [72] H. Ezaki, T. Tokihiro, and E. Hanamura, *Phys. Rev. B* **50**, 10506 (1994).
- [73] S. Pleutin, *Phys. Rev. B* **61**, 4554 (2000).
- [74] E. Collet, M. H. Lemee-Cailleau, M. Buron-Le Cointe, H. Cailleau, S. Ravy, T. Luty, J. F. Berar, P. Czarnecki, and N. Karl, *Europhys. Lett.* **57**, 67 (2002).
- [75] H. Gomi, A. Takahashi, T. Ueda, H. Itoh, and M. Aihara, *Phys. Rev. B* **71**, 45129 (2005).
- [76] M. Ogata and H. Shiba, *Phys. Rev. B* **41**, 2326 (1990).
- [77] See, for example, R. Neudert, S.-L. Drechsler, J. Málek, H. Rosner, M. Kielwein, Z. Hu, M. Knupfer, M. S. Golden, J. Fink, N. Nücker, M. Merz, S. Schuppler, N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, M. Domke, and G. Kaindl, *Phys. Rev. B* **62**, 10752 (2000).
- [78] See, for example, S. Mazumdar and Z. G. Soos, *Phys. Rev. B* **23**, 2810 (1981).
- [79] R. Neudert, M. Knupfer, M. S. Golden, J. Fink, W. Stephan, K. Penc, N. Motoyama, H. Eisaki, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 657 (1998).
- [80] 上田敏宏 修士論文 0131011 (2003).
- [81] H. Gomi, T. Ueda, A. Takahashi, and M. Aihara, *Int. J. Mod. Phys.* (in press).
- [82] T. Yajima and Y. Taira, *J. Phys. Soc. Jpn.* **47**, 1620 (1979).
- [83] M. Aihara, *Phys. Rev. B* **21**, 2051 (1980).
- [84] M. Aihara, *Phys. Rev. B* **25**, 53 (1982).
- [85] A. Takahashi, H. Gomi, and M. Aihara, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 206402 (2002).
- [86] A. Takahashi, H. Gomi, and M. Aihara, *Phys. Rev. B* **69**, 75116 (2003).
- [87] N. Tomita and K. Nasu, *Phys. Rev. B* **63**, 085107 (2001).
- [88] S. Iwai, private communication.