(千葉大学審査学位論文)

フラストレート量子系の金属絶縁体転移と 磁性に関する理論的研究

2017年2月

千葉大学大学院理学研究科 基盤理学専攻物理学コース 三角 一真

目 次

第1章	序論	3						
第2章	2 章 幾何学的フラストレート量子系							
2.1	幾何学的フラストレーション..................................							
2.2	三角格子系有機導体							
2.3	異方的三角格子模型	8						
第3章	計算手法 19							
3.1	変分クラスター近似 (VCA)	12						
0	3.1.1 自己エネルギー汎関数法 (SFT)	12						
	3.1.2 変分クラスター近似 (VCA)	17						
32	クラスター摂動理論 (CPT)	22						
0	3.2.1 CPT Green 関数	22						
	3.2.2 CPT による物理量の計算	24						
33	厳密対角化	25						
0.0	3.3.1 Lanczos法	-0 25						
	3.3.2 Strum の定理	26						
	3.3.2 Strum のC-1 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	20						
	3.3.4	28						
	3.3.5 動的物理量の計算(連分数展開)	20 29						
	3.3.6 二次元サーチ · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	$\frac{25}{31}$						
第4章	正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型における基底状態の考察	34						
4.1	正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型	34						
4.2	変分クラスター近似 (VCA)	35						
	4.2.1 参照糸と変分ハミルトニアン	35						
	4.2.2	36						
	4.2.3 中·弱相関領域 $(U/t_1 \le 10)$	39						
	4.2.4 電子相関のない極限における磁気感受率の計算	41						
第5章	三角格子 $t_1 - t_2 \operatorname{Hubbard}$ 模型における基底状態の考察	43						
5.1	三角格子 J ₁ – J ₂ Heisenberg 模型	43						
5.2	三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型	44						
5.3	変分クラスター近似 (VCA)	45						
	5.3.1 参照系と変分ハミルトニアン	45						
	5.3.2 強相関領域 $(U/t_1 = 60)$	46						
	5.3.3 中·弱相関領域 $(U/t_1 \leq 10)$	48						

	5.3.4 5.3.5	金属絶縁体転移	49 54
第6章	総括		57
付録A	三角格	子系におけるスピン波理論	59
付録B	Lancz	\mathbf{os} 法による G_{ab} の計算	62
付 録 C	DE 公	式の算出	63
付録D	VCA	における 120° 反強磁性秩序 Weiss 場の扱い方について	65
謝辞			67
参考文南	ť		68
参考資料	4		72

第1章 序論

強い電子相関を伴う幾何学的なフラストレート量子系の磁性及び金属絶縁体転移は現代の凝縮系 物理学における主要な問題の一つである [1,2]。例えば、正方格子系の場合は、最近接ホッピング のみを持つ二次元正方格子 Hubbard 模型なら、基底状態が $Q = (\pi, \pi)$ の Néel 反強磁性状態にな ることは知られているが、ここに次近接ホッピングが加わることで、次近接サイト間にも反強磁性 相互作用が働き、系にフラストレーションが生じる。このフラストレーションによって Néel 反強 磁性が不安定になり、 $Q = (\pi, 0), (0, \pi)$ の Collinear な磁気秩序状態や、磁気秩序のない状態への 相転移が起きる [3–6]。またハニカム格子においても、最近接相互作用のみでは Néel 反強磁性状態 が安定であるのが、次近接相互作用の導入により、ストライプ反強磁性秩序状態や磁気無秩序な状 態が安定化するようになる。

次近接相互作用をを導入しなくても幾何学的フラストレーションを引き起こす格子系も存在し、 三角格子やカゴメ格子といった三角形をユニットとした格子、あるいはパイロクロア格子のよう な四面体をユニットとした格子が挙げられる。このような格子系を持つ結晶では安定状態がユ ニークには定まらず、スピン系は低温まで強く揺らいだ特異な状態におかれる。これが「スピン液 体」と呼ばれる状態であり、特に量子効果が強い場合には「量子スピン液体」と呼ばれる。このよ うな状態が発生する物質の例として、VOMoO₄ [7] や Li₂VOSiO₄ [8]、κ-(ET)₂Cu₂(CN)₃ [9–12]、 BaCu₃V₂O₈(OH)₂ [13] などが発見されている。また、理論模型における計算においても、Hubbard 模型や強結合近似を施した Heisenberg 模型に対して、様々な量子計算手法を用いて、磁気秩序の ない絶縁体状態が発現されている。また、Mott 金属絶縁体転移に関しても幾何学的フラストレー ションの効果で転移点の変化が観測されている。

本研究では、自己エネルギー汎関数理論に基づく多体変分計算手法の一つである変分クラスター近 似 (VCA)を用いて、幾何学的フラストレーションの含まれている、次近接相互作用を異方的にした 「正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型」及び、次近接相互作用を導入した「三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型」の金属絶縁体転移及び基底状態の磁性に関する研究を行い、その詳細を明らかにした。

本論文の構成は以下のようになっている。第2章では、幾何学的フラストレーションについて簡 単な説明を行った後で、それに関連する物質に対する実験的研究及び理論モデルを用いた研究につ いて紹介する。幾何学的フラストレーションを引き起こす格子系はいくつか存在するが、本章では 三角格子系に絞って議論を進める。

第3章では、本論文で理論模型を解析するときに用いた数値解析法について議論する。最初に電子相関を厳密に扱いながら熱力学極限における物理量の計算を行える変分クラスター近似 (VCA) について解説する。そのために VCA の基となる自己エネルギー汎関数法について説明し、その後 に VCA の具体的な計算手法と物理量を計算するときに用いるクラスター摂動理論について解説す る。次に VCA における Green 関数を計算する上で必要な、少数サイトクラスターの厳密な基底状 態を求めるのに有効な厳密対角化についての説明を行う。

第4章では、次近接相互作用を導入した正方格子や異方的三角格子系など、複数の幾何学的フラストレート系を同時に扱える正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型に関する基底状態の研究を行った。本研究では、Heisenberg 模型における研究との比較のための強相関領域に関する研究はもち

ろん、金属相が検出されるような中・弱相関領域に関する研究も行うために、電子相関を厳密に扱 える変分クラスター近似 (VCA) を用いた計算を行った。その結果、等方的三角格子ー次近接正方 格子間で特に広い領域で磁気無秩序な絶縁体相が発現することを示したり、中・弱相関領域におけ る絶縁体相から金属相へ移り変わる様子を捉えることができた。

第5章では、次近接相互作用を導入した三角格子 t₁ – t₂ Hubbard 模型に関する金属絶縁体転移 と磁性に関する理論的研究を行った。本研究でも VCA を用いた計算を行った。最初に強相関領域 の計算を行って、Heisenberg 模型における先行研究と比較した後、中・弱相関領域の計算を行い、 金属絶縁体について議論した。その結果、強相関領域では、120°反強磁性秩序状態とストライプ 反強磁性秩序状態の間に磁気無秩序状態が発生し、中・弱相関領域でも、金属状態と磁気秩序絶縁 体状態の間に磁気無秩序な絶縁体状態が発現することを示した。また、金属絶縁体転移において、 次近接正方格子模型では見られない特徴的な転移が見られ、それが一粒子スペクトルや状態密度 (DOS)の特徴と関連がある可能性についても示した。

第2章 幾何学的フラストレート量子系

近年、幾何学的フラストレーションを持った量子系に関する物性研究が理論的、実験的ともに精 力的に行われている。本章ではまず幾何学的フラストレーションに関する基本的な説明を行った後 で、それに関連する物質及び理論模型に関する先行研究を紹介し、幾何学的フラストレート量子系 が引き起こす物理現象を解説する。

2.1 幾何学的フラストレーション

幾何学的フラストレーションについて議論する上で最も簡単な例は、格子点に局在した隣り合う スピン同士の向きが反平行になるような力の働く反強磁性 Heisenberg 模型

$$H = J \sum_{\langle ij \rangle} \boldsymbol{S}_i \cdot \boldsymbol{S}_j \qquad (J > 0)$$
(2.1)

である。ここで、〈*ij*〉は隣り合うスピン同士でとっている。正方格子の場合は、図 2.1(a) のよう に隣り合ったスピンを反平行にすることで、エネルギーが最小になる。この状態を反強磁性秩序状



図 2.1: (a): 正方格子における反強磁性秩序状態。(b): 三角格子においてスピンを反平行に詰めた 場合。?の部分で磁気的フラストレーションが発生する。(c): カゴメ格子。(d): パイロクロア格子。



図 2.2: (a): resonating valence bond (RVB) 状態。(b): 三角格子系における 120° 反強磁性秩序 状態。

態と呼ぶ。一方三角格子の場合、三角形の頂点に隣り合ったスピンを反平行に敷き詰めようとする と、図 2.1(b) のように 2 つはうまくいくものの、残りの一つがどちらを向かせてもエネルギー的 に同じであるために、その向きを定めることができない。このように、格子が持つ幾何学的な条件 によって磁気秩序状態が実現できないことを磁気的フラストレーションといい、このような磁気状 態を実現する格子系を**幾何学的フラストレーション**を内在する格子系という。このような格子系は 他にもカゴメ格子やパイロクロア格子 (図 2.1(c),(d))、次近接ホッピングを導入した正方格子やハ ニカム格子等が挙げられる。

ここから先は、三角格子系を例に話を進める。三角形を無限に敷き詰めた三角格子上で反強磁性 スピンを配置することを考えると、図 2.2(a) のようにスピン一重項の対で系を埋めつくすことが できるが、このようなパターンは無限に存在しているため、磁気秩序状態は実現しない。先ほど紹 介した反強磁性秩序状態が各々のスピンの向きが決まり周期構造を持った、いわばスピン固体と呼 ばれるものであるのに対し、この状態は時間的、空間的ともにスピンの向きが定まらない量子スピ ン液体状態と呼ばれるものである。

1973年に P.Anderson によって、いろいろな配置の状態が量子力学的に共鳴している状態、すなわち、resonating valence bond (RVB) 状態が三角格子の基底状態として提唱された [14]。その後、線形スピン波理論及び修正スピン波理論の発展により、スピンが3倍周期を持って配置している120°反強磁性状態 (図 2.2(b)) が基底状態として提唱されたことにより、磁気的フラストレーションは解消されたかに思われた [15,16]。しかし近年、長距離秩序もなくスピンギャップのない絶縁体が基底状態として実現する三角格子系の有機導体 κ -(BEDT-TTF)₂X [9–12] や EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ [17,18]の発見により、量子スピン液体状態の発現について改めて注目されている。

2.2 三角格子系有機導体

本節では、幾何学的フラストレーションを持つ三角格子構造を有する有機導体 κ -(BEDT-TTF)₂X を紹介し、これらの物質で発生する物理現象について議論する。有機導体 (BEDT-TTF)₂X は BEDT-TTF 分子をドナー分子、X 分子をアクセプター分子として、2 つの BEDT-TTF 分子あたり 1 つの 電子をアクセプター分子へ移動させて結晶になっている電荷移動型錯体である。特に BEDT-TTF 分子の配列様式が κ 型と呼ばれる κ -(BEDT-TTF)₂X は、2 つの BEDT-TTF 分子が強く結びつ いたダイマー構造をとっている。このとき、1 個のダイマーあたり 1 個のホールを持っていること になるため、実質的に half-filling バンドを形成する。BEDT-TTF 分子は図のような三角格子構



図 2.3: κ -(BEDT-TTF)₂X の BEDT-TTF 分子層に関する模式図 [20]。ホッピング t_d によりダイマー結合が発生するため、ダイマーを一つの粒子に見立てた異方的三角格子 Hubbard 模型とみなせる。



図 2.4: 左図 : (a) κ-(ET)₂Cu₂(CN)₃、(b) κ-(ET)₂Cu₂[N(CN)₂]Cl に対する H¹ NMR 吸収スペクト ル。右図 : 磁化率の温度依存性 [10,19]

造をとり、分子間にホッピング相互作用 t, t', t_d が働く。 t_d はダイマーを形成する相互作用、t は BEDT-TTF 分子の向きの異なるダイマー間の相互作用、t' は BEDT-TTF 分子の向きが同じであ るダイマー間の相互作用である。ここで t_d は他の相互作用と比べて著しく大きいことから、ダイ マー結合した BEDT-TTF 分子を1つの電子サイトと解釈することができ、ホッピング相互作用が t, t'の half-filling 異方的三角格子 Hubbard 模型ととらえることができる [9]。この理論模型につ いては次節で取り上げる。

次に、この物質を用いた実験事実について述べる。図 2.4 は Shimizu らによって測定された NMR スペクトル及び磁化率の測定結果である [10,19]。ここでは、アクセプター分子 X = Cu₂(CN)₃ と X = Cu₂[N(CN)₂]Cl の 2 種類の物質を用いている。まず X = Cu₂[N(CN)₂]Cl の場合、T = 30 K 以上では鋭いピークが一本見えるだけだが、T = 27 K以下になると、スペクトルが分裂して複数の ピークが見られる。これは、ゼーマン分裂が発生しているためである。また、帯磁率も NMR スペク トルの分裂が発生すると同時に無限大へと発散しているのがわかる。従って、X = Cu₂[N(CN)₂]Cl



図 2.5: 左図: 電気抵抗率の測定結果 [20]。右図: 密度汎関数理論 (DFT) を用いて算出された noninteracting のエネルギーバンド (色付きの点線) [21]。黒の実線は tight-binding 近似を用いて算出 されたエネルギーバンドである。

は反強磁性を持っている。

一方で X = Cu₂(CN)₃ の場合、T = 32 mK まで温度を低くしても NMR スペクトルはピークが 緩やかになるものの、スペクトルの分裂は起こらず、帯磁率も絶対零度周辺で発散しない。従って、 X = Cu₂(CN)₃ は磁気秩序を持たないスピン液体状態になっていることがいえる。

図 2.5 は先ほどと同じ 2 種の物質に対する電気抵抗率 [20] 及びエネルギーバンド [21] の測定結果 である。まず、電気抵抗率については、どちらの物質も低温で発散していることから、低温領域で は絶縁体状態であることがわかる。また、DFT で算出されたエネルギーバンドについては、両者は 非常に似通った形をとっている。このバンドは 3 次元の波数空間でとっているが、X = Cu₂(CN)₃ では M-Y 間が、X = Cu₂[N(CN)₂]Cl では U-Z 間がそれぞれ平坦バンドを持っている、つまりバ ンド分散が発生しないことから、この 2 つの物質は擬 2 次元系であることを示している。また、右 図のエネルギーバンドがバンドギャップを持っていないにも関わらず、電気抵抗率が無限大に発散 していることから、これら 2 つの物質はクーロン相互作用 U によってバンドギャップの開く Mott 絶縁体であることがわかる。従って、理論模型として Hubbard 模型

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} - t' \sum_{\langle i,j \rangle'} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$
(2.2)

が考えられ、 $U = 2t_d$ (ダイマーを形成するホッピング相互作用) であることから、各種相互作用 の値は、 κ -(ET)₂Cu₂[N(CN)₂]Cl では $t'/t = 0.44 \pm 0.05$ 、U/t = 5.5、 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ では $t'/t = 0.83 \pm 0.08$ 、U/t = 7.3 と定められる [21]。

以上をまとめると、三角格子系有機導体 κ -(ET)₂Cu₂[N(CN)₂]Cl は反強磁性秩序を持つ Mott 絶縁体状態、 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ は磁気秩序を持たない Mott 絶縁化したスピン液体状態が安定化していることが示唆された。

2.3 異方的三角格子模型

前節において、三角格子系有機導体 κ-(BEDT-TTF)₂X の電子モデルを異方的三角格子 Hubbard 模型で記述できると述べたが、本節では、この模型の理論計算を用いて行われた物理的性質の考察 について説明する。まず、異方的三角格子 Hubbard 模型は、

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} - t' \sum_{\langle i,j \rangle'} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma}, \qquad (2.3)$$

と記述できる。 $c_{i\sigma}^{\dagger}(c_{j\sigma})$ は*i*番目のサイトにスピン σ の電子を生成(消滅)する演算子、 $n_{i\sigma}$ は粒子 数演算子である。t 及び t' はサイト間のホッピング相互作用であるが、三角形の3辺のうち2本が ホッピング t であり、残り1本がホッピング t' であることが、この模型が「異方的」と呼ばれてい る所以である。また、U はクーロン相互作用、 μ は化学ポテンシャルである。この模型に強結合近 似 ($U/t \gg 1$)を適用して、 $J = 4t^2/U$ 、 $J' = 4t'^2/U$ とした異方的三角格子 Heisenberg 模型は、

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J' \sum_{\langle i,j \rangle'} \sum_{\sigma} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$$
(2.4)

と記述できる。

図に U/t = 0における t'/t = 0及び t'/t = 1のときのバンド分散とフェルミ面を描いている。こ こで、 Γ 点: (0,0)、 K点: $(\frac{4}{3}\pi,0)$ 、 M点: $(\pi,\frac{\pi}{\sqrt{3}})$ 、 M'点: $(0,\frac{2}{\sqrt{3}}\pi)$ である。t'/t = 0のときは、 最近接ホッピングのみを考慮した 2 次元正方格子模型と同等であり、フェルミ線がネスティングベ クトル $Q = (2\pi,0), (0,\frac{2}{\sqrt{3}}\pi)$ を持つ。また、格子の回転対称性が崩れることから、 M 点と M' 点 のバンド分散の値が異なる。一方、t'/t = 1のときは等方三角格子模型であり、フェルミ線が円形 になり、ネスティングベクトルを持たない。また、格子の回転対称性は保たれており、 M 点と M' 点のバンド分散の値は一致する。

次に、これらの模型に関する先行研究をいくつか紹介する。図 2.8 は Schwinger Boson 平均場 理論 [22] 及び線形スピン波理論 LSWT [23,24] を用いて計算された異方的三角格子 Heisenberg 模 型における磁気相図である。この図において、 $J = J_1 = 1$ 、 $J' = J_2$ である。 $J_2 = 0$ のとき、つま り、正方格子状になっているときは、Néel 反強磁性秩序が発達し、 J_2 を導入しても、しばらくは この状態が続く。しかし、ある臨界点 $J_2 = J_{2_c}$ に達すると、基底状態が波数 (Q,Q) の Spiral 秩序 状態に切り替わる。この切り替わりは、秩序変数及び基底エネルギーの双方から見られる (基底エ ネルギーに関しては LSWT の方が顕著)。また、 $J_2 = 1$ のときは $Q = \frac{2}{3}\pi$ 、つまり 120° 反強磁性 秩序状態になる。また、2 つの磁気秩序相の中間状態として、ダイマー秩序状態 [25] やスピン無秩 序状態 [26,27] の発現の可能性も示唆されている。

異方的三角格子 Hubbard 模型における基底状態の理論的研究も顕著に行われている。図 2.9 は 変分クラスター近似 VCA を用いて計算された異方的三角格子 Hubbard 模型における基底状態の 相図である [28]。強結合領域 ($U/t \gg 1$) では、 $0 \le t'/t \le 0.83$ では Néel 反強磁性秩序絶縁体状 態、 $0.83 \le t'/t \le 1.0$ では 120° 反強磁性秩序絶縁体状態が基底状態であり、これら 2 相間の転移



図 2.6: (a): 異方的三角格子 Hubbard 模型の模式図。(b): t'/t = 0 における Néel 反強磁性秩序状態。(c): t'/t = 1 における 120° 反強磁性秩序状態。



図 2.7: (a): 三角格子系における第一 Brillouin zone。(b): tight-binding 近似を用いた U = 0 にお けるエネルギーバンド。(c): t'/t = 0、(d): t'/t = 1 における Fermi 面。緑の実線は第一 Brillouin zone。

は直接転移である。一方、弱相関領域では常磁性の金属相が発達しており、t'/tの値が大きいほど、 金属相が発達しやすくなる。言い換えると、金属絶縁体転移点 U_c/t はt'/tの増加とともに増加す る。また、t'/tの小さい領域では、常磁性金属相から Néel 反強磁性秩序絶縁体相へと直接転移す るが、t'/t = 1周辺では、常磁性金属相から 120°反強磁性秩序絶縁体相へは直接転移せず、中間 相として、磁気無秩序な絶縁体相へと転移する。この結果から、中・弱相関領域では、三角格子模 型 (t'/t = 1)に異方性をある程度導入しても、幾何学的フラストレーションの効果を強く受け、磁 気秩序の出ない絶縁体状態が発現することがわかる。

前節で紹介した物質において、 κ -(ET)₂Cu₂[N(CN)₂]Cl では $t'/t = 0.44 \pm 0.05$ 、U/t = 5.5、 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ では $t'/t = 0.83 \pm 0.08$ 、U/t = 7.3 と相互作用パラメータが定められていた が [21]、図 2.9 と比較すると、確かに、 κ -(ET)₂Cu₂[N(CN)₂]Cl では Néel 反強磁性秩序絶縁体状 態が、 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ では磁気無秩序な絶縁体状態が基底状態と示唆されていることがわかる。 このように、理論モデル計算からも三角格子系有機導体 (BEDT-TTF)₂X の物理的性質を捕らえ ることができることがわかる。



図 2.8: Schwinger Boson 平均場理論 [22] 及び線形スピン波理論 LSWT [23,24] を用いて計算された基底エネルギー (左図) 及び秩序変数 (右図)。黒の点線は Schwinger Boson 平均場理論を用いた際の相境界 ($J_{2_c} \approx 0.63$)。



図 2.9: 変分クラスター近似 VCA を用いて計算された異方的三角格子 Hubbard 模型における基底 状態の相図 [28]。

第3章 計算手法

3.1 変分クラスター近似 (VCA)

変分クラスター近似 (Variational Cluster Approximation: VCA) とは、自己エネルギー汎関数理 論 (Self-energy Functional Theory: SFT) [29–32] の変分原理を基に構成されており、ここ十数年 で著しく発展している手法の一つである。VCA では少数サイトクラスターの集まりである参照系 に厳密対角化 (Exact Diagonalization: ED) を用いて参照系のグランドポテンシャルを計算し、そ れを参照系の厳密な自己エネルギーで変分することで、元の系のグランドポテンシャルを計算し、そ れを参照系の厳密な自己エネルギーで変分することができ、クラスター摂動理論 (Cluster Perturbation Theory: CPT) [33,34] を用いて、様々な物理量を求められるので、非常に汎用性の高い手法であ る。本章では、SFT の理論を通じて VCA の導入を解説する。また、様々な物理量の計算に対して 有用な CPT や、少数クラスターの厳密な基底状態の導出に用いる厳密対角化ついても併せて紹介 する。

3.1.1 自己エネルギー汎関数法 (SFT)

この節では、自己エネルギー汎関数理論 (Self-energy Functional Theory: SFT) [29–32] で重要 な Luttinger-Ward の汎関数 [35] の導出及び性質の解説を行い、その後、Luttinger-Ward の汎関 数に Legendre 変換を施すことで、グランドポテンシャルを自己エネルギーの汎関数として構築し、 SFT の変分原理を導出する。

まずは自己エネルギーを導出する。相互作用のない一体部分 t と相互作用の部分 U を含んだ Hamiltonian が

$$H = \sum_{\alpha\beta} t_{\alpha\beta} c^{\dagger}_{\alpha} c_{\beta} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta\gamma\sigma} U_{\alpha\beta\gamma\sigma} c^{\dagger}_{\alpha} c^{\dagger}_{\beta} c_{\gamma} c_{\sigma}$$
(3.1)

と与えられるとする。ここで、 $c^{\dagger}_{\alpha}(c_{\alpha})$ は Fermion の生成 (消滅) 演算子である。グランドカノニカ ル系におけるグランドポテンシャルは分配関数を用いて、

$$\Omega_{t,U} = -\frac{1}{\beta} \ln Z_{t,U} \tag{3.2}$$

$$Z_{t,U} = \operatorname{tr}[\exp\left(-\beta(H(t,U) - \mu N)\right)]$$
(3.3)

のように与えられる。

一方、1 粒子 Green 関数について、Green 関数は $t \ge U$ に依存するので、 $G_{t,U}$ と書ける。Fermi 粒子の松原周波数を $i\omega_n \equiv i(2n+1)\pi/\beta$ とすると、U = 0 のとき、自由 Green 関数 $G_{t,0}$ は

$$(G_{t,0}(i\omega_n))_{\alpha\beta} = [(i\omega_n + \mu)\delta_{\alpha\beta} - t_{\alpha\beta}]^{-1}$$
(3.4)

となる。相互作用の効果を全て含んだ自己エネルギーを $\Sigma_{t,U}$ とすると、Dyson 方程式より相互作 用を含んだ Green 関数 $G_{t,U}$ は

$$G_{t,U}^{-1} = G_{t,0}^{-1} - \Sigma_{t,U}$$
(3.5)

で与えられる。よって、自己エネルギーは $\Sigma_{t,U} = G_{t,0}^{-1} - G_{t,U}^{-1}$ となる。

次に M.Potthoff が行った経路積分を用いた Luttinger-Ward 汎関数の構築について説明する。大 分配関数を経路積分で表すと、

$$Z_{t,U} = \int \mathcal{D}\xi^* \mathcal{D}\xi \exp\left(A_{t,U,\xi\xi^*}\right)$$
(3.6)

$$A_{t,U,\xi\xi^*} = -\int_0^\beta d\tau \left[\sum_\alpha \xi^*_\alpha(\tau) \left(\frac{\partial}{\partial \tau} - \mu\right) \xi_\alpha(\tau) + H_{t,U}(\xi^*,\xi)\right]$$
(3.7)

$$H_{t,U}(\xi^*,\xi) = H_t(\xi^*,\xi) + H_U(\xi^*,\xi)$$

= $\sum_{\alpha\beta} t_{\alpha\beta}\xi^*_{\alpha}(\tau)\xi_{\beta}(\tau) + \frac{1}{2}\sum_{\alpha\beta\gamma\sigma} U_{\alpha\beta\gamma\sigma}\xi^*_{\alpha}(\tau)\xi^*_{\beta}(\tau)\xi_{\gamma}(\tau)\xi_{\sigma}(\tau)$ (3.8)

となる。ここで $\xi_{\alpha}(\tau)$ は経路積分において Fermi 粒子を記述する Grassmann 数と呼ばれる c-数である ¹。

(3.7) を、 $A_{t,U,\xi\xi^*} = A_{t,\xi\xi^*}A_{U,\xi\xi^*}$ と相互作用のない部分 $A_{t,\xi\xi^*}$ と相互作用のある部分 $A_{U,\xi\xi^*}$ に分けて考える。相互作用のない部分は、

$$A_{t,\xi\xi^*} \equiv -\int_0^\beta d\tau \left[\sum_\alpha \xi^*_\alpha(\tau) \left(\frac{\partial}{\partial \tau} - \mu \right) \xi_\alpha(\tau) + H_t(\xi^*,\xi) \right]$$
$$= \sum_{n,\alpha\beta} \xi^*_\alpha(\omega_n) [(i\omega_n + \mu)\delta_{\alpha\beta} - t_{\alpha\beta}] \xi_\beta(\omega_n)$$
$$= \sum_{n,\alpha\beta} \xi^*_\alpha(\omega_n) G^{-1}_{t,0,\alpha\beta}(i\omega_n) \xi_\beta(\omega_n)$$
(3.9)

と Green 関数を用いて書き直せる。一方、相互作用のある部分は、

$$A_{U,\xi\xi^*} \equiv -\int_0^\beta d\tau H_U(\xi^*,\xi)$$

= $-\frac{1}{2\beta} \sum_{n_1 n_2 n_3 n_4} \sum_{\alpha\beta\gamma\sigma} U_{\alpha\beta\gamma\sigma} \xi^*_{\alpha}(\omega_{n_1}) \xi^*_{\beta}(\omega_{n_2}) \xi_{\gamma}(\omega_{n_3}) \xi_{\sigma}(\omega_{n_4}) \delta_{n_1+n_2,n_3+n_4}$ (3.10)

となる。以上より、

$$A_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U},\boldsymbol{\xi}\boldsymbol{\xi}^*} = \sum_{n,\alpha\beta} \xi^*_{\alpha}(\omega_n) G^{-1}_{\boldsymbol{t},0,\alpha\beta}(i\omega_n) \xi_{\beta}(\omega_n) + A_{\boldsymbol{U},\boldsymbol{\xi}\boldsymbol{\xi}^*} \equiv \hat{A}_{\boldsymbol{U},\boldsymbol{\xi}\boldsymbol{\xi}^*}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1}]$$
(3.11)

となり、 $A_{t,U,\xi\xi^*}$ は一体のtに陽に依存するのではなく、自由 Green 関数 $G_{t,0}$ の汎関数 $\hat{A}_{U,\xi\xi^*}[G_{t,0}^{-1}]$ になっているとみなせる。以後汎関数には[^]をつけて表現する。

 $\hat{A}_{U,\xi\xi^*}[G_0^{-1}]$ が自由 Green 関数 G_0 の汎関数であることから、グランドポテンシャル及び大分配 関数も自由 Green 関数 G_0 の汎関数として、

$$\hat{\Omega}_{U}[G_{0}^{-1}] = -\frac{1}{\beta} \ln \hat{Z}_{U}[G_{0}^{-1}]$$
(3.12)

$$\hat{Z}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_0^{-1}] = \int \mathcal{D}\xi^* \mathcal{D}\xi \exp\left(\hat{A}_{\boldsymbol{U},\xi\xi^*}[\boldsymbol{G}_0^{-1}]\right)$$
(3.13)

¹Grassmann 数は Fermi 粒子のコヒーレント状態 $c|\xi\rangle = \xi|\xi\rangle$ 、 $\langle\xi|c^{\dagger} = \langle\xi|\xi^*$ の固有値として定義される。ここで、 ξ と ξ^* は関係のない独立な Grassmann 数である。また、Grassmann 数は Fermi 粒子同様に反交換関係 $[\xi_{\alpha}, \xi_{\beta}]_{+} = 0$ を満たす。

と書ける。式の形状からもわかるように、 $\hat{\Omega}_{U}[G_{0}^{-1}]$ はパラメータUにのみ陽に依存する。また、自由 Green 関数 G_{0} が系の厳密な自由 Green 関数と等しいときに汎関数は

$$\hat{\Omega}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1}] = \Omega_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} \tag{3.14}$$

と系の厳密なグランドポテンシャルを与える。

グランドポテンシャル (3.12) の汎関数微分を行い新しい汎関数を次のように定義する²。

$$\hat{\boldsymbol{\mathcal{G}}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_0^{-1}] = -\frac{1}{T} \frac{\delta \hat{\Omega}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_0^{-1}]}{\delta \boldsymbol{G}_0^{-1}}$$
(3.15)

ここで $\hat{\mathcal{G}}_{U}[\mathcal{G}_{0}^{-1}]$ は \mathcal{G}_{0} が厳密な自由 Green 関数のとき、厳密な Green 関数

$$\hat{\mathcal{G}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1}] = \boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} \tag{3.16}$$

を与える³。そのため、 $\hat{\mathcal{G}}_{U}[G_{0}^{-1}]$ は Green 関数に対応した汎関数とみなせる。自己エネルギーに 対応する汎関数は、(3.16)を想定した方程式

$$\hat{\mathcal{G}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}^{-1} + \hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}]] = \boldsymbol{G}$$
(3.17)

の解として $\hat{\Sigma}_{U}[G]$ と定義する。(3.17)の方程式に厳密な Green 関数 $G_{t,U}$ と自己エネルギー $\Sigma_{t,U}$ を代入すると、Dyson 方程式が成立することから、(3.16) が満たされることは明らかである。その ため、自己エネルギーに対応する汎関数 $\hat{\Sigma}_{U}[G]$ は厳密な Green 関数 $G_{t,U}$ に対して、

$$\hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}] = \boldsymbol{\Sigma}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} \tag{3.18}$$

と厳密な自己エネルギーを与える。

以上により、汎関数 $\hat{\Omega}_{U}[G_{0}^{-1}]$ も G の汎関数で書き換えられる。そのため、LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ は以下のように構成される。

$$\hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}] = \hat{\Omega}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}^{-1} + \hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}]] - \operatorname{Tr} \ln \boldsymbol{G} + \operatorname{Tr}(\hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}]\boldsymbol{G})$$
(3.19)

経路積分を用いたことにより、グランドポテンシャルが Green 関数 *G* の汎関数と書き下せること で、LW 汎関数を定義することができる。

ここで、LW 汎関数の性質を簡単に解説する。LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ は図 3.1 のようなスケルトン ダイアグラムから構成される汎関数である [35]。

1. Hamiltonian H_{t.U} に対する厳密な Green 関数 G_{t.U} に対して

$$\hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}] = \Phi_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} \tag{3.20}$$

²(3.15) を詳細に書き下すと、

$$\hat{\mathcal{G}}_{\boldsymbol{U},\alpha\beta}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1}] = -\frac{1}{T} \frac{\delta \hat{\Omega}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_0^{-1}]}{\delta \boldsymbol{G}_{0,\beta\alpha}^{-1}} = -\frac{1}{Z_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}} \int \mathcal{D}\xi^* \mathcal{D}\xi\xi_\alpha(\omega_n)\xi_\beta^*(\omega_n)\exp(A_{\boldsymbol{U},\xi\xi^*}[\boldsymbol{G}_0^{-1}])$$

となる。汎関数微分をすると添字の順序が反転することに注意する。 ³(3.16)の計算を詳細に書き下すと、

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{G}}_{\boldsymbol{U},\alpha\beta}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1}] &= -\frac{1}{Z_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}} \int \mathcal{D}\xi^* \mathcal{D}\xi\xi_{\alpha}(\omega_n)\xi_{\beta}^*(\omega_n) \exp(A_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U},\xi\xi^*}) \\ &= -\left\langle \xi_{\alpha}(\omega_n)\xi_{\beta}^*(\omega_n) \right\rangle_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} = G_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U},\alpha\beta}(i\omega_n) \end{aligned}$$

となる。



図 3.1: LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ を構成するスケルトンダイアグラムの一例。これらのダイヤグラムの重ね合わせで表現される。実線は Green 関数 G を、波線は相互作用 U を表す。LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ は相互作用 U に依存し、一体部分 tには依存しない。

と厳密な LW 汎関数が求まる。またグランドポテンシャルは、

$$\Omega_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}] = \Phi_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} + \operatorname{Tr} \ln \boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} - \operatorname{Tr}(\boldsymbol{\Sigma}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}})$$
(3.21)

と与えられる。ここで、 $\operatorname{Tr} = T \Sigma_{\omega_n} \Sigma_{k} \Sigma_{\sigma} e^{i \omega_n 0^+} \operatorname{tr}$ である。

2. LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ を Green 関数 G で汎関数積分すると、

$$\frac{1}{T} \frac{\delta \hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}]}{\delta \boldsymbol{G}} = \hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}]$$
(3.22)

となり、自己エネルギーに対応する汎関数を与える。厳密な Green 関数 $G_{t,U}$ に対しては以下のように厳密な自己エネルギーを与える。

$$\hat{\boldsymbol{\Sigma}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}] = \boldsymbol{\Sigma}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}} \tag{3.23}$$

3. LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ は相互作用 U のみに陽に依存し、一体部分 t には依存しない。つまり、同 じ相互作用 U を持つが一体部分 t が異なる 2 つの系がある場合、2 つの系は同じ LW 汎関数で記 述できる。同様に $\hat{\Sigma}_{U}[G]$ も一体部分 t には依存しない。

4. 相互作用がない極限では LW 汎関数 $\hat{\Phi}_{U}[G]$ は 0 になる。

$$\hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}] = 0 \text{ for } \boldsymbol{U} = 0$$
(3.24)

これらの性質は Green 関数法の様々な一般的考察を行う際に有用である。

ここからは、LW 汎関数 $\hat{\Phi}_U[G]$ に Legendre 変換を行うことから、変分原理を導出する。LW 汎 関数は Green 関数 G の汎関数であるが、Legendre 変換を行うことで自己エネルギー Σ に対する 汎関数を

$$\hat{F}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}] = \hat{\Phi}_{U}[\hat{G}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}]] - \operatorname{Tr}(\boldsymbol{\Sigma}\hat{G}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}])$$
(3.25)

と定義できる。ここで Legendre 変換を施したので、 $\hat{G}_U[\hat{\Sigma}[G]] = G$ である。また、汎関数 $\hat{F}_U[\Sigma]$ を自己エネルギー Σ で汎関数微分すると、

$$\frac{1}{T}\frac{\delta \hat{F}_{U}[\Sigma]}{\delta \Sigma} = -\hat{G}_{U}[\Sigma]$$
(3.26)

の関係にあることが示せる ⁴。汎関数 $\hat{F}_U[\Sigma]$ を用いると (3.21) より自己エネルギーを汎関数とし たグランドポテンシャルは

$$\hat{\Omega}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] = \operatorname{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0} - \boldsymbol{\Sigma}\right)^{-1} + \hat{F}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}]$$
(3.27)

となる。(3.27) 式を自己エネルギー Σ で汎関数微分すると、

$$\frac{1}{T} \frac{\delta \hat{\Omega}_{t,U}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta \boldsymbol{\Sigma}} = \frac{1}{\boldsymbol{G}_{t,0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}} - \hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}]$$
(3.28)

となる。 Σ が系の厳密な自己エネルギー $\Sigma_{t,U}$ のときは、(3.5)の Dyson 方程式を用いると、

$$\hat{G}_{U}[\Sigma_{t,U}] = G_{t,U} = \frac{1}{G_{t,0}^{-1} - \Sigma_{t,U}}$$
(3.29)

が成立する。そのため、(3.28)は、

$$\frac{\delta \hat{\Omega}_{t,U}[\boldsymbol{\Sigma}_{t,U}]}{\delta \boldsymbol{\Sigma}_{t,U}} = 0 \tag{3.30}$$

となる。つまり、厳密な自己エネルギー $\Sigma_{t,U}$ の場合に限り、グランドポテンシャルの自己エネル ギーによる汎関数微分が0になる。これは、グランドポテンシャルの停留点が厳密な自己エネル ギー $\Sigma_{t,U}$ であることも意味している。

逆に、任意の Σをパラメーターとして変化させ

$$\frac{\delta \hat{\Omega}_{t,U}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta \boldsymbol{\Sigma}} = 0 \tag{3.31}$$

を満たす自己エネルギー Σ が系の厳密な自己エネルギー $\Sigma_{t,U}$ を与えると考えることができる。つまり、自己エネルギー Σ を変分パラメータ、式 (3.31) を変分方程式とみなせば、相互作用系の厳密な状態を求める問題を、グランドポテンシャルの停留点を探す問題として扱うことができる。このように、相互作用系の厳密な状態を求めるために、自己エネルギーを汎関数としたグランドポテンシャルの停留点を探す方法を自己エネルギー汎関数法 (Self-energy Functional Theory: SFT) [29–32] と呼ぶ。

4(3.26)の計算について詳細に表すと、

$$\frac{1}{T}\frac{\delta\hat{F}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta\Sigma_{\alpha\beta}} = \frac{1}{T}\sum_{\gamma,\delta}\frac{\delta\hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}]]}{\delta\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}]}\frac{\delta\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta\Sigma_{\alpha\beta}} - \frac{\delta}{\delta\Sigma_{\alpha\beta}}\left(\sum_{\gamma,\delta}\Sigma_{\delta\gamma}\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}]\right)$$
$$= \sum_{\gamma,\delta}\Sigma_{\delta\gamma}\frac{\delta\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta\Sigma_{\alpha\beta}} - \sum_{\gamma,\delta}\left(\delta_{\alpha,\delta}\delta_{\beta,\gamma}\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}] + \Sigma_{\delta\gamma}\frac{\delta\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\gamma\delta}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta\Sigma_{\alpha\beta}}\right) = -\hat{\boldsymbol{G}}_{\boldsymbol{U},\beta\alpha}[\boldsymbol{\Sigma}]$$

となる。2 番目の等式で (3.22) の関係式を用いている。(3.25) が Legendre 変換であることから、例えば、熱力学の内部 エネルギー U(S, V, N) から Helmholtz の自由エネルギー F(T, V, N) への Legendre 変換と比較すると、

$$\hat{\Phi}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{G}] \leftrightarrow U(S) \qquad (\boldsymbol{G} \leftrightarrow S)
\hat{F}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] \leftrightarrow F(T) \qquad (\boldsymbol{\Sigma} \leftrightarrow T)$$

と対応づけることができ、以下のような関係も成立することから (3.26) は妥当な結果である。

$$\frac{1}{T} \frac{\delta \hat{F}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}]}{\delta \boldsymbol{\Sigma}} = -\hat{\boldsymbol{G}}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}] \iff \frac{\partial F(T)}{\partial T} = -S(T)$$

第3章 計算手法

3.1.2 変分クラスター近似 (VCA)

ここでは、VCA における参照系についての説明を行った後、絶対零度における熱力学ポテンシャルを導出し、Weiss 場の導入による自発的対称性の破れについても議論する。

変分を行うには、グランドポテンシャル $\hat{\Omega}_{t,U}[\Sigma]$ を計算しなければならない。グランドポテン シャルの計算には $\hat{F}_U[\Sigma]$ の計算が必要不可欠であるが、実際に $\hat{F}_U[\Sigma]$ の計算を行うのは困難であ る。そこで、LW 汎関数の性質を用いて、参照系を導入することで、グランドポテンシャル $\hat{\Omega}_{t,U}[\Sigma]$ を近似的に計算することができる。

まず、図 3.2(a) のような格子系に対するグランドポテンシャルは次のようになる。

$$\hat{\Omega}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] = -\mathrm{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{0}}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}\right)^{-1} + \hat{F}_{\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}]$$
(3.32)

で、図 3.2(b) のような少数サイトクラスターから構成される参照系を導入する。クラスターの一体部分 t' はクラスター内だけで有効であり、クラスター間のホッピングは0であることに注意する。参照系に対するグランドポテンシャルの汎関数は、

$$\hat{\Omega}_{t',U}[\boldsymbol{\Sigma}] = -\operatorname{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{t',0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}\right)^{-1} + \hat{F}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}]$$
(3.33)

と書き下せる。ここで、上の二式を比較すると、両者が同じ $\hat{F}_{U}[\Sigma]$ をもっていることがわかる。こ れは、LW 汎関数の性質 (3) により、LW 汎関数は一体部分 t に依存せずに相互作用 U だけにしか 依存しないことに起因する。そのため、相互作用の効果を含んだ $\hat{F}_{U}[\Sigma]$ は元の格子系も参照系も 同じである。そこで、 $\hat{F}_{U}[\Sigma]$ を消去すると、

$$\hat{\Omega}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] = \hat{\Omega}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] + \operatorname{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}\right)^{-1} - \operatorname{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t}',0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}\right)^{-1}$$
(3.34)

となる。ここまでは一切近似を使っていない。ここで、 $\Sigma = \Sigma_{t',U}$ とすると、(3.34) 右辺第 1 項は $\hat{\Omega}_{t',U}[\Sigma_{t',U}] = \Omega_{t',U}$ と参照系の厳密なグランドポテンシャルとなり、(3.34) 右辺第 3 項は $G_{t',0}^{-1} - \Sigma_{t',U} = G_{t',U}^{-1}$ と参照系の厳密な Green 関数となる。よって、

$$\hat{\Omega}_{\boldsymbol{t},\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}] = \hat{\Omega}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}[\boldsymbol{\Sigma}] + \operatorname{Tr}\ln\left(\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t},0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}\right)^{-1} - \operatorname{Tr}\ln\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}$$
(3.35)

となる。参照系として少数サイトクラスターを用いたことで、厳密対角化などを用いると (3.35) 式の右辺は全て計算できるようになり、グランドポテンシャル $\hat{\Omega}_{t,U}[\Sigma_{t',U}]$ は厳密に計算できる。 (3.35) 式の右辺は厳密に計算できるために、参照系の一体部分 t' の関数になっている。よって、 $\hat{\Omega}_{t,U}[\Sigma_{t',U}] \equiv \Omega(t')$ となる。

参照系を用いたことでグランドポテンシャルの計算ができるので、SFT の変分原理に基づき、

$$\frac{\partial \Omega(t')}{\partial t'} = 0 \tag{3.36}$$

となるグランドポテンシャルの停留点を探せばよい⁵。このように参照系の自己エネルギーを用い てグランドポテンシャルを計算し、SFT に基づき一体部分 **t**' を最適化させて相互作用の問題を解 く計算手法を変分クラスター近似 (VCA) と呼ぶ⁶。

⁵VCA はグランドポテンシャルを直接的に計算して停留点を探す方法である。一方、(3.36)は、

$$\frac{\partial \boldsymbol{\Sigma}_{t',U}}{\partial t'} \frac{\delta \hat{\Omega}_{t,U}[\boldsymbol{\Sigma}_{t',U}]}{\delta \boldsymbol{\Sigma}_{t',U}} = T \frac{\partial \boldsymbol{\Sigma}_{t',U}}{\partial t'} \left(\frac{1}{\boldsymbol{G}_{t,0}^{-1} - \boldsymbol{\Sigma}_{t',U}} - \boldsymbol{G}_{t',U} \right) = 0$$

とも書け、この Euler 方程式を自己無撞着に解く方法もある。それが動的平均場理論 (DMFT) である。

⁶VCA は試行自己エネルギー Σ として参照系の厳密な自己エネルギー $\Sigma_{t',U}$ を用いた近似であるため、 Σ の変分 領域は参照系に依存し制限され、計算結果はクラスターのサイズや形に依存する。また、VCA は U = 0 と原子極限 ($t_{\alpha\beta}/U \rightarrow 0(\alpha \neq \beta)$)においては厳密である。U = 0においては、 $\Sigma_{t',U} = 0$ なので、(3.35)は厳密になる。一方、原 子極限においては一体部分が t = t'となるので (3.35)の右辺第二項と第三項が打ち消し合い、 $\hat{\Omega}_{t,U}[\Sigma_{t,U}] = \Omega_{t,U}$ とな るので厳密である。



図 3.2: (a): 元の格子系。(b): 少数クラスターから構成される参照系。図中の数字はサイト番号を 表す。

次に、グランドポテンシャルを数値計算が可能になるように変形していく。まず、(3.35) 式の右 辺第二項を書き換えるために、 $V \equiv H_t - H_{t'}$ とすると、

$$G_{t,0}^{-1} - \Sigma_{t',U} = G_{t,U}^{-1} - V$$
(3.37)

となる⁷。Vを用いると (3.35) は次のように書き換えられる。

$$\Omega(\mathbf{t'}) = \Omega_{\mathbf{t'},\mathbf{U}} + \operatorname{Tr}\ln\left(\mathbf{G}_{\mathbf{t'},\mathbf{U}}^{-1} - \mathbf{V}\right)^{-1} - \operatorname{Tr}\ln\mathbf{G}_{\mathbf{t'},\mathbf{U}}^{-1}$$
$$= \Omega_{\mathbf{t'},\mathbf{U}} - \operatorname{Tr}\ln\left(\mathbf{1} - \mathbf{V}\mathbf{G}_{\mathbf{t'},\mathbf{U}}\right)^{-1}$$
(3.38)

次に *V* について調べる。参照系は元の格子を少数サイトクラスターに分割したものなので、クラスターを指定する指標を *R*,*R*'、クラスター内のサイトを指定する指標を *a*,*b*等とする。元の格子のサイト*i*を指定するには、

$$\boldsymbol{r}_i = \boldsymbol{R} + \boldsymbol{r}_a \tag{3.39}$$

とクラスター R とクラスター内のサイト a を指定すればよい。ここで、参照系の一体部分の Hamiltonian $H_{t'}$ ではクラスター間の一体部分が切れていることに注意すると、

$$H_{t'} = \sum_{ij} t'_{ij} c^{\dagger}_{i} c_{j} = \sum_{\mathbf{RR'}} \sum_{ab} \delta_{\mathbf{R},\mathbf{R'}} t'_{ab} c^{\dagger}_{\mathbf{R}a} c_{\mathbf{R'}b}$$
(3.40)

と書ける。よって V は、

$$\boldsymbol{V} = \sum_{ij} (t_{ij} - t'_{ij}) c_i^{\dagger} c_j = \sum_{\boldsymbol{RR'}} \sum_{ab} (t_{ab}^{\boldsymbol{RR'}} - \delta_{\boldsymbol{R},\boldsymbol{R'}} t'_{ab}) c_{\boldsymbol{R}a}^{\dagger} c_{\boldsymbol{R'}b} \equiv \sum_{\boldsymbol{RR'}} \sum_{ab} V_{ab}^{\boldsymbol{RR'}} c_{\boldsymbol{R}a}^{\dagger} c_{\boldsymbol{R'}b} \qquad (3.41)$$

 7 元の格子の自由 Green 関数は $G_{t,0}(z) = (z + \mu - H_t)^{-1}$ で与えられるので、

$$G_{t,0}^{-1} - \Sigma_{t',U} = (z + \mu - H_{t'} - \Sigma_{t'}) - (H_t - H_{t'}) = G_{t',U}^{-1} - V$$

と求められる。

となる。*V*は元の格子系の並進対称性を保ってはいないが、クラスターから構成される超格子に対する並進対称性は保っている。*N*をクラスターの数とすると、超格子に対する Fourier 変換は、

$$c_{\boldsymbol{R}a}^{\dagger} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\boldsymbol{Q}} c_{\boldsymbol{Q}a}^{\dagger} e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}}$$
(3.42)

で与えられる。Fourier 変換を V に用いると、

$$\boldsymbol{V} = \sum_{\boldsymbol{Q}} \sum_{ab} \left(\sum_{\boldsymbol{R}} V_{ab}^{\boldsymbol{0}\boldsymbol{R}} e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}} \right) c_{\boldsymbol{Q}a}^{\dagger} c_{\boldsymbol{Q}b} \equiv \sum_{\boldsymbol{Q}} \sum_{ab} V_{ab}(\boldsymbol{Q}) c_{\boldsymbol{Q}a}^{\dagger} c_{\boldsymbol{Q}b}$$
(3.43)

となり、VはQに対して対角的になる。ここで、

$$V_{ab}(\boldsymbol{Q}) \equiv \sum_{\boldsymbol{R}} V_{ab}^{\boldsymbol{0}\boldsymbol{R}} e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}} = \sum_{\boldsymbol{R}} t_{ab}^{\boldsymbol{0}\boldsymbol{R}} e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}} - t'_{ab}$$
(3.44)

となり、異なるクラスター間のホッピングには e^{iQ·R} が付く。

以上より、(3.35)のグランドポテンシャルは以下のように書き換えることができる8。

$$\Omega(t') = \Omega_{t',U} - T \sum_{\omega_n} \sum_{Q} \sum_{\sigma} \ln \det \left(1 - V(Q) G_{t',U}(i\omega_n) \right)$$
(3.45)

ここで、(3.45) 式の右辺第二項について、絶対零度を仮定したとき⁹、

$$I \equiv T \sum_{\omega_n} \sum_{\mathbf{Q}} \sum_{\sigma} \ln \det \left(\mathbf{1} - \mathbf{V}(\mathbf{Q}) \mathbf{G}_{t',U}(i\omega_n) \right)$$
$$= \sum_{\sigma} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\mathbf{Q}} \ln \det \left(\mathbf{1} - \mathbf{V}(\mathbf{Q}) \mathbf{G}_{t',U}(z) \right)$$
(3.46)

と周回積分を用いて書かれる¹⁰。絶対零度では Fermi 分布関数が階段関数になるので、経路 $C_<$ は 負の実軸上の極を囲む経路になっている。よって、(3.46) を書き換えると、

$$I = \sum_{\sigma} \left(\int_0^\infty \frac{dx}{\pi} \sum_{\boldsymbol{Q}} \ln |\det \left(\mathbf{1} - \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q}) \boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t}',\boldsymbol{U}}(ix) \right)| - \sum_{\boldsymbol{Q}} \frac{\operatorname{tr} \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q})}{2} \right)$$
(3.47)

となる¹¹。参照系の基底エネルギー *E*[']₀ と粒子数 *N*['] を用いると、参照系のグランドポテンシャルは、

$$\Omega_{t',U} = \frac{1}{L} (E'_0 - \mu N') \tag{3.48}$$

⁸ここでは、Tr = $T\Sigma_{\omega_n}\Sigma_k \Sigma_\sigma e^{i\omega_n 0^+}$ tr の定義と tr ln $A = \ln \det A$ の関係を用いた。

⁹有限温度では Q-matrix 法を用いる。

¹⁰Fermi 分布関数 $f(z) = 1/(e^{\beta z} + 1)$ は松原周波数 $i\omega_n$ において一位の極を持ち、

$$\lim_{z \to i\omega_n} \frac{z - i\omega_n}{e^{\beta z} + 1} = -T$$

と留数 T を持つ。留数定理を用いると、

$$T\sum_{n} g(i\omega_n) = \oint_{\Gamma} \frac{dz}{2\pi i} f(z)g(z) \xrightarrow{T=0} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} g(z)$$

となる。経路 Γ は松原周波数を時計回りに囲む経路であるが、絶対零度では Fermi 分布関数は階段関数となるので、経路 は負の実軸上の極を囲む経路 $C_{<}$ となる。

11計算の詳細は [36] を参照。

第3章 計算手法

となる。実際の計算ではサイトあたりのグランドポテンシャルを考えるので、サイト数 NL で割ってある。L は各クラスターのサイト数である。以上より、グランドポテンシャルに対応する汎関数 は次のようになる。

$$\Omega(\boldsymbol{t'}) = \frac{1}{L} (E'_0 - \mu N') - \frac{1}{NL} \sum_{\sigma} \left(\int_0^\infty \frac{dx}{\pi} \sum_{\boldsymbol{Q}} \ln |\det \left(\mathbf{1} - \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q}) \boldsymbol{G}_{\boldsymbol{t'},\boldsymbol{U}}(ix) \right)| - \sum_{\boldsymbol{Q}} \frac{\operatorname{tr} \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q})}{2} \right)$$
(3.49)

実際の計算では厳密対角化を用いて参照系の基底エネルギー E'_0 、粒子数 N' と Green 関数 $G_{t',U}(z)$ を求め、(3.49) 式を計算する。これらのステップを繰り返して、(3.36) 式を満たす停留点 $t' = t'_{OPT}$ を求め、これを CPTに適用することで、様々な物理量が計算できる。なお、V(Q) は (3.44) より 見積もり、積分には二重指数関数型数値積分公式 (DE 公式、付録 C. 参照)を用いるとよい。

次に VCA における自発的対称性の破れについて説明する。VCA は変分原理に沿っているので、 試行変分パラメーターを導入することで自発的対称性の破れを議論でき、この点が VCA の最も有 用な点になっている。ここでは二次元正方格子 Hubbard 模型における反強磁性秩序を例に、VCA における自発的対称性の破れを議論する。Hubbard 模型の Hamiltonian は、

$$H = -\sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow}$$
(3.50)

で与えられる。Half-fillingの二次元正方格子 Hubbard 模型の基底状態は反強磁性状態である。よって、反強磁性を仮定した Weiss 場



$$H_{\rm AF} = M' \sum_{i} e^{i \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (n_{i,\uparrow} - n_{i,\downarrow})$$
(3.51)

図 3.3: $L = 2 \times 2$ クラスターを用いた U/t = 8の 2 次元正方格子 Hubbard 模型の Weiss 場 M'に 対するグランドポテンシャル。 $M' = \pm M_1 \neq 0$ が最安定な停留点であるため、反強磁性秩序が安 定に存在していることがわかる。



図 3.4: 二次元正方格子 Hubbard 模型におけるグランドポテンシャルの ε 依存性 (U = 4)。黒点は 停留点を表している。

を導入する。ここで、二次元正方格子の反強磁性の秩序ベクトルは $Q = (\pi, \pi)$ である。Weiss 場 を加えた参照系の Hamiltonian は $\mathcal{H}' = \mathcal{H} + \mathcal{H}_{AF}$ となる。反強磁性秩序を議論するには、 \mathcal{H}' を用 いてグランドポテンシャル $\Omega(M')$ を計算し、 $\Omega(M')$ の最安定な停留点を探せばよい。

図 3.3 は参照系として $L = 2 \times 2$ サイトのクラスターを用いたグランドポテンシャルの計算結果 である。停留点として M' = 0 と $M' = \pm M_1 \neq 0$ の3つが存在するが、 $\Omega(M_1) < \Omega(0)$ であるこ とから、 $M' = \pm M_1$ が最安定な停留点であることがわかる。これはつまり、反強磁性秩序のない (M' = 0) 状態よりも、反強磁性秩序のある状態のほうがエネルギー的に安定に実現できることを 示している。そのため、二次元正方格子 Hubbard 模型の基底状態としては反強磁性状態が実現し ていることになる。

また、平均粒子数を調整するためのオンサイト変分項というのは、

$$H_{\rm on} = \varepsilon \sum_{i} n_i \tag{3.52}$$

と定義され¹²、二次元正方格子 Hubbard 模型における $U = 4 \operatorname{con} d = 5 \operatorname{con} c = 6$ 存性は図 3.4 のように表される。この図では $\varepsilon = 0$ が停留点となっているが、これはこの模型が $\mu = \frac{U}{2}$ で粒子ー正孔対称性が成り立っているためであり、一般にオンサイトポテンシャルでの変 分は $\varepsilon \neq 0$ で停留値を取り得る。

このように VCA では、試行変分 Hamiltonian を用いてグランドポテンシャルの停留点の安定性 を調べることで、自発的対称性の破れを議論することができる。例示した反強磁性秩序 [37] 以外 にも、スパイラル秩序 [38]、*d* 波超電導 [39]、電荷秩序 [40]、軌道秩序 [41] などの Weiss 場を加え た研究も既に存在する。

¹²オンサイト変分については、基底エネルギーが εN(N は参照系クラスターの粒子数) だけシフトするだけであり、固 有ベクトルは変化しないので、変分パラメータ ε を変えるごとに参照系クラスターの対角化を繰り返す必要はない。詳細 は [36] を参照。

3.2 クラスター摂動理論 (CPT)

クラスター摂動理論 (Cluster Perturbation Theory: CPT) [33,34] は、少数サイトクラスターの 集まりである参照系から近似的に元の格子系の Green 関数 (CPT Green 関数) を計算する方法で ある。CPT Green 関数の計算に VCA で最適化された一体部分 t' を用いることで、模型の特徴を 示す様々な物理量を得ることができるようになる。この節ではクラスターが構成する超格子の波数 に注意して、CPT Green 関数を導出し、CPT Green 関数を用いた様々な物理量の計算について解 説する。

3.2.1 CPT Green 関数

VCA では参照系の自己エネルギー $\Sigma_{t',U}$ を用いてグランドポテンシャルを計算した。このとき、 参照系の自己エネルギー $\Sigma_{t',U}$ を用いた元の格子系の Green 関数は (3.29) より、

$$\mathcal{G}(z) \equiv \hat{G}_{U}[\boldsymbol{\Sigma}_{t',U}] = (\boldsymbol{G}_{t',U}^{-1} - \boldsymbol{V})^{-1}$$
(3.53)

と定義できる。最後の等式で (3.37) の関係式を用いている。(3.39) の表記を用いると、 $\mathcal{G}_{ij}(z) = \mathcal{G}_{ab}^{RR'}(z)$ となるので、 $\mathcal{G}(z)$ に Fourier 変換を施し、波数で書き換えると、

$$\mathcal{G}(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}', z) = \frac{1}{NL} \sum_{\boldsymbol{R}\boldsymbol{R}'ab} \mathcal{G}_{ab}^{\boldsymbol{R}\boldsymbol{R}'}(z) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot(\boldsymbol{R}+\boldsymbol{r}_a)} e^{-i\boldsymbol{k}'\cdot(\boldsymbol{R}'+\boldsymbol{r}_b)}$$
(3.54)

となる。CPT は (3.54) から元の格子の波数 k に対する Green 関数を求めることになる。

ここで、クラスターが構成する超格子は並進対称性が破れていないことから、超格子の波数に 対して対角的である。そこで次に、 $\mathcal{G}_{ab}^{RR'}(z)$ を超格子に対して Fourier 変換した $\mathcal{G}_{ab}(Q,z)$ を考え る¹³。参照系の Hamiltonian はクラスターについて対角的 ($\delta_{R,R'}$) であるので、参照系の Green 関数も対角的で、

$$G_{t',U,ij}(z) = \delta_{R,R'} G_{t',U,ab}(z)$$
(3.55)

となる。参照系の Green 関数に超格子についての Fourier 変換を行うと、

$$G_{t',U,ab}(\boldsymbol{Q},z) = \sum_{\boldsymbol{R}} \delta_{\boldsymbol{0},\boldsymbol{R}} G_{t',U,ab}(z) e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{R}} = G_{t',U,ab}(z)$$
(3.56)

となり、参照系の Green 関数は波数 Q に依存しなくなる。一方、(3.43) より V も Q に対して対 角的であるため、 $\mathcal{G}_{ab}(Q, z)$ は以下のように与えられる。

$$\mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{Q}, z) = (\boldsymbol{G}_{t', \boldsymbol{U}}^{-1}(z) - \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q}))_{ab}^{-1} = \left(\frac{\boldsymbol{G}_{t', \boldsymbol{U}}(z)}{\boldsymbol{I} - \boldsymbol{V}(\boldsymbol{Q})}\right)_{ab}$$
(3.57)

 $\mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{Q}, z)$ を用いると (3.54) は

$$\mathcal{G}(\boldsymbol{k},\boldsymbol{k'},z) = \frac{1}{L} \sum_{ab} \sum_{\boldsymbol{Q}} \mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{Q},z) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_a} e^{-i\boldsymbol{k'}\cdot\boldsymbol{r}_b} \delta_{\boldsymbol{Q},\boldsymbol{k}-\tilde{\boldsymbol{k}}} \delta_{\boldsymbol{Q'},\boldsymbol{k'}-\tilde{\boldsymbol{k'}}}$$
(3.58)

$$\mathcal{G}_{ab}^{\boldsymbol{R}\boldsymbol{R'}}(z) = \frac{1}{N} \sum_{\boldsymbol{Q}} \mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{Q}, z) e^{i\boldsymbol{Q}\cdot(\boldsymbol{R}-\boldsymbol{R'})}$$

と与えられる。

 $^{{}^{13}\}mathcal{G}^{\boldsymbol{RR'}}_{ab}(z)$ の超格子に対する Fourier 変換は



図 3.5: 正方格子系 16 サイトクラスターを用いた参照系の実空間 (a) と波数空間 (b)。

となる。ここで、 $\tilde{k}, \tilde{k'}$ は超格子の並進ベクトルに対する逆格子ベクトルである。 $k-\tilde{k}=K, k'-\tilde{k'}=K'$ とすると、

$$\mathcal{G}(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k'}, z) = \frac{1}{L} \sum_{ab} \mathcal{G}_{ab}(\tilde{\boldsymbol{k}}, z) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_a} e^{i\boldsymbol{k'}\cdot\boldsymbol{r}_b} \delta_{\boldsymbol{K},\boldsymbol{K'}}$$
(3.59)

となる。 \tilde{k} は超格子に対する逆格子ベクトルであるために $e^{i\tilde{k}\cdot R} = 1$ であることを用いると、

$$V_{ab}(\boldsymbol{K}) = \sum_{\boldsymbol{R}} V_{ab}^{\boldsymbol{0}\boldsymbol{R}} e^{i(\boldsymbol{k}-\tilde{\boldsymbol{k}})\cdot\boldsymbol{R}} = \sum_{\boldsymbol{R}} V_{ab}^{\boldsymbol{0}\boldsymbol{R}} e^{i(\boldsymbol{k})\cdot\boldsymbol{R}} = V_{ab}(\boldsymbol{k})$$
(3.60)

となる。(3.57)より、 $\mathcal{G}_{ab}(\mathbf{K}, z)$ の波数依存性は V_{ab} にしかないので、

$$\mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{K}, z) = \mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{k}, z) \tag{3.61}$$

となり、 $\mathcal{G}_{ab}(K,z)$ は超格子の逆格子ベクトル \tilde{k} には依存していないことがわかる。一方で、超格子の逆格子ベクトル \tilde{k} による変更を受けるのは $\delta_{K,K'}$ の方である。ここで、 $\tilde{k} - \tilde{k'} \equiv q_s$ とすると、元の格子に対する BZ の中に q_s は L 個あるために、

$$\delta_{\boldsymbol{K},\boldsymbol{K}'} = \sum_{s=1}^{L} \delta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}_s} \tag{3.62}$$

となる。以上より、求めたい元の格子に対する Green 関数は次のようになる。

$$\mathcal{G}(\boldsymbol{k},\boldsymbol{k'},z) = \frac{1}{L} \sum_{ab} \mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{k},z) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_a} e^{i\boldsymbol{k'}\cdot\boldsymbol{r}_b} \left(\sum_{s=1}^L \delta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k'}-\boldsymbol{q}_s} \right)$$
(3.63)

CPT では参照系を用いているために、元の格子系の並進対称性を破っている。そのためGはkに対して対角的にならない。しかし、超格子の並進対称性は保っているために、波数の差が q_s になるという制限がついている。

(3.63) のままでは Green 関数は対角的でないので、L 個の q_s のうち $q_s = 0$ だけをとり、波数 の非対角項を無視する近似を行うと、

$$\mathcal{G}_{CPT}(\boldsymbol{k}, z) = \frac{1}{L} \sum_{ab=1}^{L} \mathcal{G}_{ab}(\boldsymbol{k}, z) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_a - \boldsymbol{r}_b}$$
(3.64)

となる。これを CPT Green 関数と呼ぶ。この CPT Green 関数を用いると 1 粒子スペクトルや状態密度を計算することができる。

3.2.2 CPT による物理量の計算

一粒子スペクトル $A(\mathbf{k},\omega)$ は CPT Green 関数 $\mathcal{G}_{CPT}(\mathbf{k},\omega)$ の虚部より求まる。

$$A(\boldsymbol{k},\omega) = -\frac{1}{\pi} \lim_{\eta \to 0} \operatorname{Im} \mathcal{G}_{\operatorname{CPT}}(\boldsymbol{k},\omega+i\eta)$$
(3.65)

ここで、 η はブロードニングの値で、外挿を行うことで一粒子スペクトルは正確に求まる。状態 密度 $\rho(\omega)$ は一粒子スペクトル $A(\mathbf{k},\omega)$ を元の格子系の Brillouin Zone 内の波数 \mathbf{k} で和を取れば求 まる。

$$\rho(\omega) = \sum_{\boldsymbol{k} \in \mathrm{BZ}} A(\boldsymbol{k}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \lim_{\eta \to 0} \sum_{\boldsymbol{k} \in \mathrm{BZ}} \mathrm{Im} \mathcal{G}_{\mathrm{CPT}}(\boldsymbol{k}, \omega + i\eta)$$
(3.66)

1サイトあたりの1体の演算子の平均値

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \frac{1}{NL} \sum_{\alpha\beta} \mathcal{O}_{\alpha\beta} \left\langle c_{\alpha}^{\dagger} c_{\beta} \right\rangle \tag{3.67}$$

は (3.57) の Green 関数 **G** を用いて、

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \frac{1}{NL} \operatorname{Tr} \mathcal{O} \mathcal{G} = \frac{1}{NL} \oint_{C_{\leq}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\mathbf{Q}} \operatorname{tr} [\mathcal{O} \mathcal{G}(\mathbf{Q}, z)]$$
 (3.68)

となる。ここで、経路 $C_{<}$ は負の実軸上の極を囲む経路である。また、元の格子の波数 k ではなく 超格子の波数 Q であることに注意する。例えば、粒子数の平均値 $n = \langle n_i \rangle$ については $\mathcal{O} = 1$ と なるので、以下の様に計算すればよい。

$$n = \frac{1}{NL} \sum_{i} \langle n_i \rangle = \frac{1}{NL} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\boldsymbol{Q}} \operatorname{tr}[\boldsymbol{\mathcal{G}}(\boldsymbol{Q}, z)]$$
(3.69)

VCA で最適化された一体部分 *t*_{OPT} を CPT に適用し、上記のような物理量を計算することで模型の特徴を数値的に解析することができるようになる。



図 3.6: 左図: U = 4の二次元正方格子 Hubbard 模型における一粒子スペクトル $A(\mathbf{k}, \omega)$ 。右図: 同模型における平均粒子数 n_{\circ}

第3章 計算手法

3.3 厳密対角化

この節では、VCA で用いられる参照系のグランドポテンシャル (3.48) 及び参照系のグリーン関 数 *G*_{t',U}(z) を求めるために使う厳密対角化法 (Exact Diagonalization: ED) について説明する。固 有値を求めるのに Lanczos 法がよく用いられるが、この手法のメリットは、少数サイト系の模型の 基底エネルギーを、三重対角行列の構成により効率よく計算できる点や、連分数展開の方法にも応 用可能であることから、動的物理量を簡単に求めることができるという点にある。ここではまず、 Lanczos 法を用いた固有値の計算方法について解説する。次に逆反復法と共訳勾配法を組み合わせ た固有ベクトルの計算方法を説明し、最後に連分数展開を用いた動的物理量の計算方法について説 明する [42–46]。

3.3.1 Lanczos 法

まず n 次の実対称ハミルトニアン行列 H を三重対角行列 T へ対角化していくことから始める。 行列 H を三重対角化するユニタリー行列 U を

$$U = (\boldsymbol{u}_1, \, \boldsymbol{u}_2, \, \dots, \, \boldsymbol{u}_n) \tag{3.70}$$

と設定する ($u_i(i=1,2,\ldots,n)$:列ベクトル)。ここで、 $U^{\dagger}U=1$ より、

$$\boldsymbol{u}_i \cdot \boldsymbol{u}_j = \delta_{ij} \tag{3.71}$$

すなわち、各 u_i は規格直交系である。ここで、行列H, U, Tの関係は、 $U^{\dagger}HU = T \Rightarrow HU = UT$ であるので、

$$A = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & & \mathbf{0} \\ \beta_1 & \alpha_2 & \beta_2 & & \\ & \beta_2 & \alpha_3 & \ddots & \\ & & & \beta_3 & \ddots & \beta_{n-2} \\ & & & \ddots & \alpha_{n-1} & \beta_{n-1} \\ \mathbf{0} & & & & \beta_{n-1} & \alpha_n \end{pmatrix}$$
(3.72)

とすると、解くべき方程式として、

$$H\boldsymbol{u}_1 = \alpha_1 \boldsymbol{u}_1 + \beta_1 \boldsymbol{u}_2 \tag{3.73}$$

$$H\boldsymbol{u}_{k-1} = \beta_{k-1}\boldsymbol{u}_{k-1} + \alpha_k \boldsymbol{u}_k + \beta_k \boldsymbol{u}_{k+1} (2 \le k \le n-1)$$
(3.74)

$$H\boldsymbol{u}_n = \beta_{n-1}\boldsymbol{u}_{n-1} + \alpha_n \boldsymbol{u}_n \tag{3.75}$$

が得られる。まず、適当に規格化された n 次元ベクトル u1 を用意すると、(3.71) 及び (3.73) より、

$$\alpha_1 = \boldsymbol{u}_1^{\dagger}(H\boldsymbol{u}_1)$$

$$\beta_1 = \sqrt{(H\boldsymbol{u}_1 - \alpha_1\boldsymbol{u}_1)^{\dagger}(H\boldsymbol{u}_1 - \alpha_1\boldsymbol{u}_1)}$$

$$\boldsymbol{u}_2 = \frac{H\boldsymbol{u}_1 - \alpha_1\boldsymbol{u}_1}{\beta_1}$$
(3.76)

となり、**u**₂, α₁, β₁ が求められる。他の要素及びベクトルについても以下の式で求められる。

$$\alpha_{k} = \boldsymbol{u}_{k}^{\dagger}(H\boldsymbol{u}_{k})$$
$$\beta_{k} = \sqrt{(H\boldsymbol{u}_{k} - \beta_{k-1}\boldsymbol{u}_{k-1} - \alpha_{k}\boldsymbol{u}_{k})^{\dagger}(H\boldsymbol{u}_{k} - \beta_{k-1}\boldsymbol{u}_{k-1} - \alpha_{k}\boldsymbol{u}_{k})}$$
$$\boldsymbol{u}_{k+1} = \frac{H\boldsymbol{u}_{k} - \beta_{k-1}\boldsymbol{u}_{k-1} - \alpha_{k}\boldsymbol{u}_{k}}{\beta_{k}}$$
(3.77)

以上の行程から三重対角行列Tが求められる。

3.3.2 Strum の定理

この定理は、三重対角行列 T の固有値を求める際に使用される。固有値を λ とすると、固有値 方程式は、

$$|T - \lambda I| = \begin{vmatrix} \alpha_1 - \lambda & \beta_1 & & \mathbf{0} \\ \beta_1 & \alpha_2 - \lambda & \beta_2 & & \\ & \beta_2 & \alpha_3 - \lambda & \ddots & \\ & & & \beta_3 & \ddots & \beta_{n-2} \\ & & & & \ddots & \alpha_{n-1} - \lambda & \beta_{n-1} \\ \mathbf{0} & & & & \beta_{n-1} & \alpha_n - \lambda \end{vmatrix} = 0$$
(3.78)

となる。ここでTのk行k列までの行列を T_k とし、

$$|T_k - \lambda I| = f_k(\lambda) \tag{3.79}$$

とすると、 $f_0(\lambda) = 1$ として、

$$f_0(\lambda) = 1$$

$$f_1(\lambda) = \alpha_1 - \lambda$$

$$f_2(\lambda) = (\alpha_2 - \lambda)f_1 - \beta_1^2 f_0$$

$$\vdots$$

$$f_k(\lambda) = (\alpha_k - \lambda)f_{k-1} - \beta_{k-1}^2 f_{k-2}$$

$$\vdots$$

$$f_n(\lambda) = (\alpha_n - \lambda)f_{n-1} - \beta_{n-1}^2 f_{n-2} = 0$$
(3.80)

というn+1個の関数列が得られる。ここで、 $f_k(\lambda) = 0$ を仮定すると、

$$f_{k+1}(\lambda) = -\beta_k^2 f_{k-1}$$
(3.81)

となり、 $\beta_k \neq 0$ より、 $f_{k+1}(\lambda) < 0$ となる。つまり、この関数列は次の4つの性質を満たしている。 1. $g_0(\lambda)$ は定数である。

- 2. $g_k(\lambda) \ge g_{k+1}(\lambda)$ は同時に 0 にならない。
- 3. $g_k(\lambda) = 0$ のとき、 $g_{k+1}(\lambda)$ と $g_{k-1}(\lambda)$ は異符号である。
- 4. $g_k(\lambda) = 0$ のとき、 $g'_k(\lambda)$ と $g_{k-1}(\lambda)$ は異符号である。

これらの性質を満たす関数列を Strum 関数列といい、この関数列に対して次の定理が成り立 つ。

Strumの定理. $L(x) \ge g_0(x), g_1(x), \ldots, g_k(x)$ における符号変化の回数とする。このとき、区間 [a, b]における $g_k(\lambda)$ の解の数は、L(a) - L(b) である。

この定理を用いれば、 $f_n(\lambda) = 0$ の解が求められる。区間 [a,b]を求める際は、絶対値最大の固 有値 λ_{max} を求めればよく、行列の成分を a_{ij} とすると、

$$|\lambda_{max}| = \sqrt{\sum_{i,j} a_{ij}^2} \tag{3.82}$$

が成立する。特に三重対角行列 T の場合、

$$c = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \alpha_i^2 + 2\sum_{i=1}^{n-1} \beta_i^2}$$
(3.83)

となり、a = -c、b = cとすると、n 行 n 列のTにおける n 個の固有値は、全て区間 [a,b] に収ま る。いくつかの小さい方の固有値のみを知りたい場合は、bの値を小さくし、L(a) - L(b) = m(最 小固有値の場合はm = 1)にすればよく、さらに二分法¹⁴を用いて、 $b - a \le \epsilon$ となるようにaと **b**の値を接近させればよい。

ちなみに、三重対角化を途中でやめたときにできる行列の固有値を元の行列の固有値に近似でき ることも Lanczos 法の特徴の一つであり、これにより Lanczos 法は大規模行列の固有値計算に重 宝される。

3.3.3 べき乗法

べき乗法とは、絶対値最大の固有値及びそれに伴う固有ベクトルを求めるのに使われる手法であ る。まず、n次正方行列 Aの固有値 λ_i が

$$|\lambda_1| \ge |\lambda_2| \ge \ldots \ge |\lambda_{n-1}| \ge |\lambda_n| \tag{3.84}$$

を満たすとする。また、任意の初期ベクトル $u^{(0)}$ について、 λ_i に対応した固有ベクトル x_i を用 いて、

$$\boldsymbol{u}^{(0)} = c_1 \boldsymbol{x}_1 + c_2 \boldsymbol{x}_2 + \ldots + c_n \boldsymbol{x}_n \tag{3.85}$$

とする。この式の両辺に行列 A を左からかけると、

$$A\boldsymbol{u}^{(0)} = c_1 A \boldsymbol{x}_1 + c_2 A \boldsymbol{x}_2 + \ldots + c_n A \boldsymbol{x}_n$$

= $c_1 \lambda_1 \boldsymbol{x}_1 + c_2 \lambda_2 \boldsymbol{x}_2 + \ldots + c_n \lambda_n \boldsymbol{x}_n$ (3.86)

¹⁴二分法の手順は以下のようになる。

^{1.} 中間値を $w_j = (s_j + t_j)/2$ と置く。

^{2.} $N(w_j) - N(t_j) = 1$ ならば $s_j \in w_j$ で置き換え、 $N(w_j) - N(t_j) = 0$ ならば $t_j \in w_j$ で置き換える。 3. $t_j - s_j < \epsilon$ と収束していれば固有値は $\lambda_j = w_j$ となる。収束していなければ 2. に戻る。

となり、これを k 回繰り返すことで、

$$A^{k}\boldsymbol{u}^{(0)} = c_{1}\lambda_{1}^{k}\boldsymbol{x}_{1} + c_{2}\lambda_{2}^{k}\boldsymbol{x}_{2} + \ldots + c_{n}\lambda_{n}^{k}\boldsymbol{x}_{n}$$
$$= \lambda_{1}^{k} \left[c_{1}\boldsymbol{x}_{1} + c_{2}\left(\frac{\lambda_{2}}{\lambda_{1}}\right)^{k}\boldsymbol{x}_{2} + \ldots + c_{n}\left(\frac{\lambda_{n}}{\lambda_{1}}\right)^{k}\boldsymbol{x}_{n} \right]$$
(3.87)

を得られる。よって、k が十分大きいと仮定した場合、

$$A^{k}\boldsymbol{u}^{(0)} \coloneqq c_{1}\lambda_{1}^{k}\boldsymbol{x}_{1} \tag{3.88}$$

となり、この式から絶対値最大の固有値 λ_1 及びそれに対応する固有ベクトル x_1 が求められる。また、逆行列 A^{-1} に対しては、

$$A^{-1}\boldsymbol{x}_i = \frac{1}{\lambda_i}\boldsymbol{x}_i \tag{3.89}$$

であるため、 A^{-1} に対しては、 λ_n^{-1} が絶対値最大の固有値となる。つまり、逆行列 A^{-1} を用いれば、絶対値最小の固有値 λ_n 及びそれに対応する固有ベクトル x_n が求められる。これを逆反復法という。

3.3.4 共役勾配法

共役勾配法は、Ax = bの形の連立方程式を解く手段として用いられる。ここで A は Hamiltonian 行列 H 及びその固有値 λ を用いて、

$$A = H - (\lambda - \epsilon)I \tag{3.90}$$

とし、Aが0にならないように ϵ を微小量として導入する。任意の初期ベクトル x_0 から出発して、 x_1, x_2, \ldots と逐次的に解を修正していき、最終的な漸近解を求める。m回目の解を x_m とすると き、それに対する修正ベクトルを p_m 、その大きさを α_m とすると、新しい漸近解は、

$$\boldsymbol{x}_{m+1} = \boldsymbol{x}_m + \alpha_m \boldsymbol{p}_m \tag{3.91}$$

と求められる。ここで、初期残差ベクトル $\mathbf{r}_0 = \mathbf{b} - A\mathbf{x}_0$ から生成される m 個のベクトル $\mathbf{r}_0, A\mathbf{r}_0, A^2\mathbf{r}_0, \dots, A^{m-1}\mathbf{r}_0$ が張る Krylov 空間を $\mathcal{K}_m(A, \mathbf{r}_0)$ とおくと、漸近解 \mathbf{x}_m は、

$$\boldsymbol{x}_m = \boldsymbol{x}_0 + \boldsymbol{z}_m, \ \boldsymbol{z}_m \in \mathcal{K}_m(A, \boldsymbol{r}_0)$$
(3.92)

と表すことができ、残差ベクトルは、

$$\boldsymbol{r}_m = \boldsymbol{b} - A\boldsymbol{x}_m = \boldsymbol{r}_0 - A\boldsymbol{z}_m \tag{3.93}$$

となり、 $r_m \in \mathcal{K}_{m+1}(A, r_0)$ となる。また、Galerkin 条件により、残差ベクトル r_m を、

$$\boldsymbol{r}_m = \boldsymbol{b} - A \boldsymbol{x}_m \bot \mathcal{K}_m \tag{3.94}$$

となるように選べる。よって、(3.93)及び(3.94)より、

$$\boldsymbol{r}_i \cdot \boldsymbol{r}_j = 0 \ (i \neq j) \tag{3.95}$$

となる。つまり、残差ベクトルは互いに直交する。ここで残差ベクトル
 r_{m+1} は修正ベクトル p_m を用いて、

$$\boldsymbol{r}_{m+1} = \boldsymbol{b} - A\boldsymbol{x}_{m+1}$$

= $\boldsymbol{b} - A\boldsymbol{x}_m - \alpha_m A\boldsymbol{p}_m = \boldsymbol{r}_m - \alpha_m A\boldsymbol{p}_m$ (3.96)

と表せるので、(3.95)より、

$$\boldsymbol{r}_{m+1} \cdot \boldsymbol{r}_m = (\boldsymbol{r}_m - \alpha_m A \boldsymbol{p}_m) \cdot \boldsymbol{r}_m = 0 \tag{3.97}$$

となり、 α_m は、

$$\alpha_m = \frac{\boldsymbol{r}_m \cdot \boldsymbol{r}_m}{A\boldsymbol{p}_m \cdot \boldsymbol{r}_m} = 0 \tag{3.98}$$

と決定付けられる。また、修正ベクトルについて $p_{m+1} = r_{m+1} + \beta_m p_m$ とし、

$$\boldsymbol{p}_i \cdot A \boldsymbol{p}_j = 0 \ (i \neq j) \tag{3.99}$$

となるように β_m を選ぶとすると、 p_{m+1} と Ap_m も互いに直交するので、

$$\beta_m = \frac{\boldsymbol{r}_{m+1} \cdot \boldsymbol{r}_{m+1}}{\boldsymbol{r}_m \cdot \boldsymbol{r}_m} = 0 \tag{3.100}$$

となる。これらの操作を $N 回 (N: 行列 A の次元) 繰り返すことで <math>\mathbf{r}_N = 0$ が得られ、最終的な漸近解が求められる。

3.3.5 動的物理量の計算(連分数展開)

ここでは、Lanczos 法及び逆べき乗法から求めた基底エネルギー E_0 及び $|\psi_0\rangle$ を用いて動的物理 量を計算する手法を説明する。動的物理量 C(t) は次のように与えられる。

$$C(t) = \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger}(t) \mathcal{O}(0) | \psi_0 \rangle \tag{3.101}$$

ここで、演算子 $\mathcal{O}(t)$ は $\mathcal{O}(t) = e^{iHt} \mathcal{O}e^{-iHt}$ で与えられる。この式にフーリエ変換を施すと、

$$C(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger}(t) \mathcal{O}(0) | \psi_0 \rangle$$
(3.102)

となり、さらにエネルギー固有状態 $|\psi_n\rangle$ (エネルギー E_n) の完全系ではさむと、

$$C(\omega) = \sum_{n} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger}(t) | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \mathcal{O}(0) | \psi_0 \rangle$$
$$= \sum_{n} |\langle \psi_n | \mathcal{O} | \psi_0 \rangle|^2 \delta(\omega - E_n + E_0)$$
(3.103)

となる。このままでは計算できないので、Green 関数行列

$$G(z) = \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger} \frac{1}{z - H} \mathcal{O} | \psi_0 \rangle$$
(3.104)

を用いて表す。 η を正の微小量として $z = \omega + i\eta + E_0$ と置き、この式にも完全系をはさむと、

$$G(\omega + i\eta + E_0) = \sum_{n} \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger} | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \frac{1}{\omega + i\eta + E_0 - H} \mathcal{O} | \psi_0 \rangle$$
$$= \sum_{n} \langle \psi_0 | \mathcal{O}^{\dagger} | \psi_n \rangle \frac{1}{\omega + i\eta + E_0 - E_n} \langle \psi_n | \mathcal{O} | \psi_0 \rangle$$
(3.105)

第3章 計算手法

と変形できる。ここで、

$$\frac{1}{x+i\eta} = P(\frac{1}{x}) - i\pi\delta(x) \tag{3.106}$$

を用いれば、

$$C(\omega) = -\frac{1}{\pi} \lim_{\eta \to 0} \operatorname{Im} G(\omega + i\eta + E_0)$$
(3.107)

となり、動的物理量を Green 関数行列で表せる。次に、この Green 関数行列を計算することにな るのだが、初期ベクトルとして、

$$|g_0\rangle = -\frac{|\psi_0\rangle}{\sqrt{\langle\psi_0|\mathcal{O}^{\dagger}\mathcal{O}|\psi_0\rangle}} \tag{3.108}$$

を用意する。 $(z - H)(z - H)^{-1} = I$ 、つまり、

$$\sum_{m} (z - H)_{lm} (z - H)_{mn}^{-1} = \delta_{ln}$$
(3.109)

であり、n = 0としたとき、これは $(z - H)_{m0}^{-1}$ の連立 1 次方程式である。求めたいのは、 $G(z) = (z - H)_{00}^{-1}$ なので、Cramer の公式により、

$$(z-H)_{00}^{-1} = \frac{1}{\det(z-H)} \det \begin{pmatrix} 1 & (z-H)_{10} & (z-H)_{20} & (z-H)_{30} & \cdots \\ 0 & (z-H)_{11} & (z-H)_{21} & (z-H)_{31} & \cdots \\ 0 & (z-H)_{12} & (z-H)_{22} & (z-H)_{32} & \cdots \\ 0 & (z-H)_{13} & (z-H)_{23} & (z-H)_{33} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$
(3.110)

となる。ここで、Hamiltonian 行列 H は Lanczos 法で三重対角化したもの

$$H = \begin{pmatrix} a_0 & b_0 & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ b_0 & a_1 & b_1 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & b_1 & a_2 & b_2 & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & b_2 & a_3 & b_3 & \cdots \\ 0 & 0 & 0 & b_3 & a_4 & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$
(3.111)

を扱うので、(3.110)は、

$$(z-H)_{00}^{-1} = \frac{1}{\det(z-H)} \det \begin{pmatrix} 1 & -b_0 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & z-a_1 & -b_1 & 0 & \cdots \\ 0 & -b_1 & z-a_2 & -b_2 & \cdots \\ 0 & 0 & -b_2 & z-a_3 & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$
(3.112)

となる。また、

$$D_{n} = \begin{pmatrix} z - a_{n} & b_{n} & 0 & 0 & \cdots \\ b_{n} & a_{n+1} & b_{n+1} & 0 & \cdots \\ 0 & b_{n+1} & a_{n+2} & b_{n+2} & \cdots \\ 0 & 0 & b_{n+2} & a_{n+3} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$
(3.113)

を定義すると、

$$\det D_0 = \det \left(z - H \right) \tag{3.114}$$

$$(z - H)_{00}^{-1} = \frac{\det D_1}{\det D_0}$$
(3.115)

$$\det D_n = (z - a_n) \det D_{n+1} - b_n^2 \det D_{n+2}$$
(3.116)

が得られる。従って、

$$G(z) = (z - H)_{00}^{-1} = \frac{1}{\frac{\det D_0}{\det D_1}}$$
$$= \frac{1}{z - a_0 - \frac{b_0^2}{\frac{\det D_1}{\det D_2}}}$$
$$= \frac{1}{z - a_0 - \frac{b_0^2}{\frac{z - a_0 - \frac{b_0^2}{d - \frac{b_0^2}{z - a_1 - \frac{b_1^2}{z - a_2 - \cdots}}}}$$
(3.117)

となる。この一連の手法を**連分数展開**という。実際の計算では得たい精度まで連分数展開を続け、 有限のところで計算を打ち切る。

3.3.6 二次元サーチ

ここでは、多体系の基底を二進数表示で表した後に、取りうる全ての状態に対して番号を振っ て、効率よく区別する方法を説明する。

強相関状態 (クーロン力が大きい状態) を仮定した *S* = 1/2 スピン相互作用模型 (Heisenberg 模型など) の場合、電子は全てのサイトに電子が1個ずつ埋まった状態を取る。そのため、それぞれ のサイトには↑ スピン、もしくは↓スピンのどちらかが1 個だけ埋まった状態しか取れないので、 ↑= 1、↓= 0 として、スピンを二進数表示で表してしまえばよい。

例えば、8 サイトの↑スピンと↓スピンがそれぞれ4 個ずつ存在する状態を仮定すると、3,5,6,8 番目に↑スピン、1,2,4,7 番目に↓スピンがある状態は二進数表示で、

$$|\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle = 00101101 \tag{3.118}$$

となり、さらにこれを十進数に変換すると、

$$0 \cdot 2^{8-1} + 0 \cdot 2^{7-1} + 1 \cdot 2^{6-1} + 0 \cdot 2^{5-1} + 1 \cdot 2^{4-1} + 1 \cdot 2^{3-1} + 0 \cdot 2^{2-1} + 1 \cdot 2^{1-1}$$
(3.119)

となる。このように任意の状態に番号を振ることができるが、これでは計算に必要な配列が、サイト数をnとしたときに $2^n - 1$ と指数関数的に大きくなってしまう。8 サイトの場合は $2^8 - 1 = 255$ 程度であるが、16 サイトになると $2^{16} - 1 = 65535$ と劇的に増えてしまう。そこで、必要な配列をより小さくするために使われた手法が二次元サーチである。この方法は、元の二進数を二つの二進

数に分割して、それぞれに番号を振っていくものである。元の二進数を *I* とし、これを左右半分に 分けて、左側の二進数を *I_L、右側の二進数を I_R* とすると、*n* サイト系において以下の関係が成り 立つ。

$$I = I_L \cdot 2^{\frac{n}{2}} + I_R \tag{3.120}$$

まず、二進数 *I* について取りうる最も小さな値から始め、以降はできるだけ 1 が右側に並ぶように 順に並べていく。それぞれの *I* に対して I_L 、 I_R を取り、これらを変数とする配列 $J_L(I_L)$ 、 $J_R(I_R)$ を用いて、二進数 *I* に対応する番号 $J_L + J_R$ を次の法則に従って決めるとする。

- 1. I_R のみが変化している場合は、 I_R に対応する配列 J_R の値を1だけ増加させる。
- 2. I_L が変化している場合は、 I_L に対応する配列 J_L の値を、 I_L が変化するまでに扱った状態の数を加え、 I_R に対応する配列 J_R の値を1とする。

一連の操作によって、必要な配列の大きさが $2 \cdot (2^{\frac{n}{2}} - 1)$ となり、最初の $2^n - 1$ より圧倒的に小さくなる。8 サイトの場合は $2 \cdot (2^4 - 1) = 30$ 、16 サイトの場合は $2 \cdot (2^8 - 1) = 510$ となり、このことから、扱うサイト数が多いほど、減らせる配列の数が多くなることがわかる。

表 3.1 は 8 サイトで↑2 個と↓6 個の系に二次元サーチを適用した結果である。

	¥. ~		24 1 4 · ·		
二進数表記のスピン配置	I_L	I_R	J_L	J_R	$J_L + J_R$
00000011	0	3	0	1	1
00000101	0	5	0	2	2
00000110	0	6	0	3	3
00001001	0	9	0	4	4
00001010	0	10	0	5	5
00001100	0	12	0	6	6
00010001	1	1	6	1	7
00010010	1	2	6	2	8
00010100	1	4	6	3	9
00011000	1	8	6	4	10
00100001	2	1	10	1	11
00100010	2	2	10	2	12
00100100	2	4	10	3	13
00101000	2	8	10	4	14
00110000	3	0	14	1	15
01000001	4	1	15	1	16
01000010	4	2	15	2	17
01000100	4	4	15	3	18
01001000	4	8	15	4	19
01010000	5	0	19	1	20
01100000	6	0	20	1	21
10000001	8	1	21	1	22
10000010	8	2	21	2	23
10000100	8	4	21	3	24
10001000	8	8	21	4	25
10010000	9	0	25	1	26
10100000	10	0	26	1	27
11000000	12	0	27	1	28

___表 3.1: 8 サイト↑2 個と↓6 個の場合の二次元サーチ

第4章 正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型に おける基底状態の考察

この章では次近接ホッピングの値を調節できる正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型の基底状態 に関して議論していく。この模型を扱うことのメリットは、次近接ホッピングの大きさの調節に よって、様々な格子模型を実現できるという点にある。本研究では、局所的な相互作用を厳密に 扱える変分クラスター近似 (VCA) を用いることで、この模型の金属絶縁体転移及び基底状態の磁 気秩序の変遷について考察していく。この章は、既出版論文 "Phase Diagram of the Frustrated Square-Lattice Hubbard Model: Variational Cluster Approach", K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 064711/1-7 (2016) を元に纏めたものである。

4.1 正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型

正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型のハミルトニアン H は次のように与えられる。

$$H = -t_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} - t_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} - t_2' \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle'} \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma},$$

$$(4.1)$$

 $c_{i\sigma}^{\dagger}(c_{i\sigma})$ は *i* 番目のサイトにスピン σ の電子を生成 (消滅) する演算子である。また、 $\langle i, j \rangle$ はホッ ピング t_1 をもつ最近接のサイト間を結ぶボンドを、 $\langle \langle i, j \rangle \rangle$ 及び $\langle \langle i, j \rangle \rangle'$ はそれぞれホッピング t_2 、 t_2' をもつ次近接のサイト間を結ぶ異方的なボンドを示している (図 4.1(a) を参照)。U は電子間の 斥力クーロン相互作用 (U > 0)、 μ は化学ポテンシャルである。この模型は異方的な次近接ホッ ピング t_2 、 t_2' の値を調節することによって、様々な格子模型を実現させることができる。例えば、



図 4.1: (a) 等方的な最近接ホッピング t_1 と異方的な次近接ホッピング t_2 、 t'_2 を持つ正方格子 Hubbard 模型の模式図。(b) $t_2 = t'_2 = 0$ の最近接正方格子模型。(c) $t_2 = t'_2 = t_1$ の対角線上にホッピングの 存在する正方格子模型。(d) $t_1 = t_2$ and $t'_2 = 0$ の等方的な三角格子模型。矢印は電子が局在化した ときに安定になりやすいスピンの向きを示しており、色は各副格子に対応させている。


図 4.2:本研究で用いた 12 サイト参照系。(a)Néel 反強磁性秩序。(b)collinear 秩序。(c) 左図:120° 反強磁性秩序に対応させた参照系、右図:左図に等価な三角格子の形状をとった参照系。

 $t_2 = t'_2 = 0$ としたとき、Néel 反強磁性秩序状態が基底状態として実現する最近接正方格子 Hubbard 模型になる (図 4.1(b))。また、 $t_2 = t'_2 = t_1$ としたときは collinear 秩序が実現する等方的な次近 接ホッピングを含んだ正方格子模型 (図 4.1(c))が、 $t_1 = t_2$ and $t'_2 = 0$ のときは、120° 反強磁性 秩序が実現する等方的な三角格子模型が実現する (図 4.1(d))。本研究では、これらの模型を拠点 にして、次近接ホッピング t_2 、 t'_2 を変化させて、中間領域の基底状態を調べていく。

4.2 変分クラスター近似 (VCA)

今節では、まず本研究で用いた参照系及び変分ハミルトニアンについて議論し、その後強相関領域 $(U/t_1 = 60)$ 及び中・弱相関領域 $(U/t_1 \leq 10)$ に対する計算結果をそれぞれ提示し、この模型の 基底状態について議論する。

4.2.1 参照系と変分ハミルトニアン

正方格子 $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard 模型において考察するべき磁気秩序相は、Néel 反強磁性秩序相、 collinear 秩序相及び 120° 反強磁性秩序相であることから、参照系のハミルトニアンとして、

$$H' = H + H_{\rm N} + H_{\rm C} + H_{\rm S} + H_{\rm on}$$
 (4.2)

を用いる。今回の計算では half-filling(n = 1)の状態を考える。変分ハミルトニアンについて、 H_N は Néel 反強磁性秩序相、 H_C は collinear 反強磁性秩序相、 H_S は 120° 反強磁性秩序相を調べるために導入されたものであり、それぞれ以下のように与えられる¹。

¹120°反強磁性秩序相の変分パラメータを扱うには特殊なテクニックを要する。詳細は付録 D. 参照

$$H_{\rm N} = h'_{\rm N} \sum_{i} e^{i \boldsymbol{Q}_{\rm N} \cdot \boldsymbol{r}_i} S_i^z \tag{4.3}$$

$$H_{\rm C} = h_{\rm C}' \sum_{i} e^{i \boldsymbol{Q}_{\rm C} \cdot \boldsymbol{r}_i} S_i^z \tag{4.4}$$

$$H_{\rm S} = h_{\rm S}' \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_i} \cdot \boldsymbol{S}_i \tag{4.5}$$

また、本研究では half-filling における基底状態を計算するので、粒子数 n = 1 に調整するための オンサイト変分

$$H_{\rm on} = \varepsilon \sum_{i} n_i \tag{4.6}$$

も導入した。ここで、 $h'_{\rm N}$ 、 $h'_{\rm C}$ 及び $h'_{\rm S}$ はそれぞれ Néel 反強磁性秩序相、collinear 秩序相、120° 反 強磁性秩序相を形成する Weiss 場である。また、 S_i はパウリ行列 $\sigma_{\alpha\beta}$ を用いて $S_i = c^{\dagger}_{i\alpha}\sigma_{\alpha\beta}c_{i\beta}/2$ と定義されるスピン演算子、 $Q_{\rm N} = (\pi, \pi)$ 及び $Q_{\rm C} = (\pi, 0)$ 、 $(0, \pi)$ はそれぞれ Néel 反強磁性秩序、 collinear 秩序の波数ベクトル、 e_{a_i} はサイト i における副格子番号 a_i (= 1,2,3) に応じて 120° ず つ回転している単位ベクトルである。変分パラメータ $h'_{\rm N}$ 、 $h'_{\rm C}$ 、 $h'_{\rm S}$ は自己エネルギー汎関数法に基 づき、グランドポテンシャルの停留点を求めることで最適化される。このとき、 $h' \neq 0$ に停留点が 存在することによって、それに応じた秩序状態が安定化する。

今回用いる参照系は、図 4.2 のような 12 サイトのクラスターを用いる。このクラスターは今回 扱う磁気秩序が全て実現可能なため、今回の研究においては非常に利便性の高いクラスターとい える。

4.2.2 強相関領域 $(U/t_1 = 60)$

ここでは、強相関領域 $(U/t_1 = 60)$ における計算結果について議論していくのだが、その前に本 研究で計算した物理量を紹介する。まず、粒子数は、

$$n = \frac{1}{L} \sum_{i,\sigma} \langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \rangle = \frac{1}{N_c L} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\mathbf{K}} \sum_{a,\sigma} \mathcal{G}_{aa,\sigma}(\mathbf{K}, z)$$
(4.7)

で与えられる。ここで、 N_c はクラスター内のサイト数、aはクラスター内のサイト番号、Kは超 格子の波数である。また、基底エネルギーEは $E = \Omega + \mu$ と定義でき、各種秩序変数は、

$$M_{\rm N} = \frac{2}{L} \sum_{i} e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm N}\cdot\boldsymbol{r}_{i}} \langle S_{i}^{z} \rangle = \frac{1}{N_{c}L} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\boldsymbol{K}} \sum_{a,\sigma} \sigma e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm N}\cdot\boldsymbol{r}_{a}} \mathcal{G}_{aa,\sigma}(\boldsymbol{K}, z)$$
(4.8)

$$M_{\rm C} = \frac{2}{L} \sum_{i} e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm C}\cdot\boldsymbol{r}_i} \langle S_i^z \rangle = \frac{1}{N_c L} \oint_{C_<} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\boldsymbol{K}} \sum_{a,\sigma} \sigma e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm C}\cdot\boldsymbol{r}_a} \mathcal{G}_{aa,\sigma}(\boldsymbol{K}, z)$$
(4.9)

$$M_{\rm S} = \frac{2}{L} \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_i} \cdot \langle \boldsymbol{S}_i \rangle \tag{4.10}$$

で計算される。

まずは、グランドポテンシャルの計算について議論する。ここでは $t_2/t_1 = 1$ における計算結果 を図 4.3 に示す。図 4.3 の左図では数個の t'_2/t_1 に対するグランドポテンシャルの h'_S 依存性を示 しているが、これを見ると、 $t'_2/t_1 < 0.35$ では $h'_S = 0$ 以外にも停留点を持っており、 $h'_S \neq 0$ の方 が安定であるとわかるが、 $t'_2/t_1 = 0.35$ では停留点が $h'_S = 0$ のみであることがわかる。また、停 留点が t'_2/t_1 の増加に伴って、連続的に $h'_S \to 0$ へと変化しているのがわかる。一方、図 4.3 の右



図 4.3: $t_2/t_1 = 1$ におけるグランドポテンシャルの計算結果。左図: h'_S 対 $\Omega - \Omega_0$ 、右図: h'_C 対 $\Omega - \Omega_0$ である。赤の実線は $h' \neq 0$ に最安定停留点がある場合、青の破線は h' = 0 に最安定な停留点がある場合である。

図では数個の t'_2/t_1 に対するグランドポテンシャルの h'_C 依存性を示している。 $t'_2/t_1 = 0.7, 0.8$ で は $h'_C = 0$ 以外に下に凸な停留点が一個存在するだけだが、 $t'_2/t_1 = 0.6$ では上に凸な停留点も存在 する。また、 $t'_2/t_1 = 0.55$ では安定な停留点が $h'_C = 0$ に切り替わり、 $t'_2/t_1 = 0.5$ では $h'_C \neq 0$ に おける停留点が消滅していることがわかる。ここで、最安定な停留点の変化をみると、 t'_2/t_1 の値 を減らしていくと、あるところで $h'_C \neq 0$ から $h'_C = 0$ に不連続に飛ぶことがわかる。

次に、基底エネルギー E 及び秩序変数 M の計算結果を図 4.4 に示す。今回は次の 3 つの領域を 中心に議論していく。

(i):最近接正方格子模型→等方的な次近接ホッピングを含んだ正方格子模型へと変化する領域
 (t₂/t₁ = t'₂/t₁)

まず、最近接正方格子 ($t_2 = 0$)のときは Néel 反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t_2 を導入 していくことで、Néel 反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの 値が徐々に近づいていき、 $t_2/t_1 = 0.73$ のときに、二つの値は滑らかにつながる。同時に、Néel 反 強磁性の秩序変数も連続的に 0 に減少する。これは、グランドポテンシャルの停留点が $h'_N \neq 0$ か ら $h'_N = 0$ へと連続的に変化していることに対応している。これらのことから、Néel 反強磁性秩序 相から磁気無秩序相への転移は 2 次転移であることがわかる。一方で、 $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 1$ の正方格 子のときは collinear 反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t_2 の値を減らしていくと、collinear 反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの値が徐々に近づいてい き、 $t_2/t_1 = 0.79$ のときに、二つの値は交差し、大小が逆転する。同時に、collinear 反強磁性秩序 序変数も不連続に 0 に減少する。これは、グランドポテンシャルの停留点が $h'_C \neq 0$ から $h'_C = 0$ へと不連続に変化していることに対応している。これらのことから、collinear 反強磁性秩序相から 磁気無秩序相への転移は 1 次転移であることがわかる。

(ii):最近接正方格子模型→等方的三角格子模型へと変化する領域(t'₂/t₁ = 0)

まず、最近接正方格子 ($t_2 = 0$)のときは Néel 反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t_2 を導入 していくことで、Néel 反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの 値が徐々に近づき、 $t_2/t_1 = 0.88$ のときに、二つの値は滑らかにつながる。同時に、Néel 反強磁性 の秩序変数も連続的に 0 に減少する。一方で、等方的三角格子 ($t_2/t_1 = 1$)のときは 120°反強磁 性秩序状態が基底状態であるが、基底エネルギーの値を磁気無秩序状態のそれと比較すると、Néel 反強磁性が発生している状態のときよりエネルギー差が小さいことがわかる。これは、等方的三角 格子模型には強い幾何学的フラストレーションが働いているためであると考えられる。 t_2 の値を 減らすと、 $t_2/t_1 = 0.89$ のときに基底エネルギーは滑らかにつながり、同時に、120°反強磁性の秩 序変数も連続的に0に減少する。これらのことから、磁気秩序相から磁気無秩序相への転移は共 に2次転移であることがわかる。また、磁気無秩序相の領域は、(i)と比較すると、非常に狭いこ とがわかる。

(iii):等方的三角格子模型→等方的な次近接ホッピングを含んだ正方格子模型へと変化する領域 (t₂/t₁ = 1)

まず、等方的三角格子 ($t'_2/t_1 = 0$)のときは 120°反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t'_2 を導入していくことで、120°反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの値が徐々に近づく。ちなみに、これら二つの値の差は (ii)と同様に非常に小さい。 $t'_2/t_1 = 0.34$ のときに、二つの値は滑らかにつながり、同時に、Néel反強磁性の秩序変数も連続的に0に減少する。これらのことから、120°反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移は2次転移であることがわかる。一方で、 $t'_2/t_1 = 1$ の正方格子のときは collinear反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t'_2 の値を減らしていくと、collinear反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの値が徐々に近づいていき、 $t_2/t_1 = 0.59$ のときに、二つの値は交差し、大小が逆転する。同時に、collinear反強磁性の秩序変数も不連続に0に減少する。これらのことから、collinear反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移は1次転移であることがわかる。



図 4.4: 基底エネルギー $E(\boxtimes(a),(c),(e))$ 及び秩序変数 $M(\boxtimes(b),(d),(f))$ の計算結果。(i) では最近 接正方格子→対角線ホッピングのある正方格子へと変化するパラメータ領域 $(t_2 = t_2)$ を、(ii) では 最近接正方格子→等方的三角格子へと変化するパラメータ領域 $(t_2' = 0)$ を、(iii) では等方的三角格 子→対角線ホッピングのある正方格子へと変化するパラメータ領域 $(t_2 = t_1)$ を取っている。また、 $\boxtimes(c)$ 及び (e) にある挿図は、120° 反強磁性秩序状態と無秩序状態のエネルギー差 ($\Delta E = E_S - E_D$) の計算結果であり、その他の挿図は、相境界付近でのパラメータの計算結果である。



図 4.5: (a) $(t_2/t_1, t'_2/t_1)$ 平面における基底状態の相図 $(U/t_1 = 60)$ 。(b) $(J_2/J_1, J'_2/J_1)$ 平面における基底状態の相図。白色の領域は磁気無秩序を示している。Néel 反強磁性秩序相及び 120° 反強磁性秩序相への転移は 2 次転移 (連続的な相転移) であり、collinear 秩序相への転移は 1 次転移 (不連続な相転移) である。図中の (i)、(ii)、(iii) は図 4.3 と対応している。

以上の議論により得られたものが、図 4.5 の相図である。横軸が相互作用 t_2/t_1 、縦軸が相互作 用 t'_2/t_1 の大きさを示している。まず、図 4.5(a) に着目すると、 $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (0,0)$ 周辺に Néel 反強磁性秩序相、 $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (1,1)$ 周辺に collinear 反強磁性秩序相、 $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (1,0)$ 、 (0,1)周辺に 120° 反強磁性秩序相が発生していることがわかる。そしてそれら三つの磁気秩序相 の中間に磁気無秩序相が広がっていることがわかる。

図 4.5(b) は Heisenberg モデルに切り替えた場合の相図であるが、ここで、磁気無秩序相の領域に ついて先行研究と比較して議論する。領域 (i) について、磁気無秩序相の範囲は 0.53 < J_2/J_1 < 0.63 であるが、これを $J_1 - J_2$ 正方格子 Heisenberg 模型での計算結果と比較すると、下限については、 先行研究で $J_2/J_1 = 0.40 - 0.44$ [47–51] と出ているため、本研究の参照系では Néel 反強磁性秩序 相が出すぎていると思われる。ただし、参照系を 2 × 2 の正方格子クラスターにして VCA を適用 した場合は、下限は $J_2/J_1 = 0.42$ [6] となっており、妥当な値が出ている。一方で、上限について は、先行研究で $J_2/J_1 = 0.59 - 0.62$ [47–49,51] と出ているので、本研究では妥当な値が出たと思 われる。領域 (ii) については、Néel 反強磁性秩序及び 120° 反強磁性秩序が共に $J_2/J_1 = 0.79$ 周辺 で消滅しているのだが、先行研究でも $J_2/J_1 = 0.80 - 0.87$ [52,53] の範囲で転移点が見られている ので、本研究では妥当な値が出たと考えられる。ちなみに領域 (iii) については、先行研究が存在 しないので、比較は現時点では不可能である。

4.2.3 中·弱相関領域 $(U/t_1 \leq 10)$

ここでは中・弱相関領域である $U/t_1 = 10, U/t_1 = 6, U/t_1 = 2$ における基底状態の性質について考察する。まず、図 4.6 に相図を示す。 $U/t_1 = 10$ のときは $U/t_1 = 60$ のときの相図とよく似ているが、 $U/t_1 = 6$ のときは、Néel 反強磁性秩序絶縁体相及び collinear 反強磁性秩序絶縁体相の領域が狭くなっていたり、 $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (1,0)$ 、(0,1)周辺は金属相もしくは無秩序絶縁体相が広がっていることがわかる。これはこの領域で強い幾何学的フラストレーションが働いており、磁気秩序絶縁体状態が安定しなくなっているためであると考えられる。 $U/t_1 = 2$ のときは、

 $(t_2/t_1, t_2'/t_1) = (0,0)$ 周辺に Néel 反強磁性秩序絶縁体相が残っているものの、大半が金属状態で 占めている。

さらに詳細を議論するため、一粒子ギャップ Δ 及び秩序変数 M の計算結果を図 5.2 に示す。ここでも、

- (i):最近接正方格子模型→等方的な次近接ホッピングを含んだ正方格子模型へと変化する領域
 (t₂/t₁ = t'₂/t₁)
- (ii):最近接正方格子模型→等方的三角格子模型へと変化する領域(t[']₂/t₁ = 0)
- (iii):等方的三角格子模型→等方的な次近接ホッピングを含んだ正方格子模型へと変化する領域 $(t_2/t_1 = 1)$
- の三つの領域を中心に議論する。



図 4.6: $U/t_1 = 10$ (a)、 $U/t_1 = 6$ (b)、 $U/t_1 = 2$ (c) における基底状態の相図。白色の領域は無秩序 状態である。



図 4.7: $U/t_1 = 10, 6, 2$ における一粒子ギャップ (Δ/t_1) 及び秩序変数 (M) の計算結果。(i)~(iii) の関係は図 4.3 と同様。

まず、 $U/t_1 = 10$ のとき、領域 (i) では 0.71 < $t_2/t_1 < 0.84$ で磁気無秩序な絶縁体相が発現しており、これは先行研究 [4,6](下限が $t_2/t_1 = 0.70 - 0.77$ 、上限が $t_2/t_1 = 0.82 - 0.85$)と整合している。また領域 (iii) でも磁気無秩序な絶縁体相が発現しており、その範囲は 0.42 < $t'_2/t_1 < 0.64$ である。一方で領域 (ii) では $U/t_1 = 60$ のときに存在していた磁気無秩序な絶縁体相は消滅しており、Néel 反強磁性秩序相から 120° 反強磁性秩序相への直接転移がみられているが、これは先行研究でも確認されている [28,54]。

次に、 $U/t_1 = 6$ のとき、領域 (i) では 0.66 < $t_2/t_1 < 0.86$ で磁気無秩序な絶縁体相が発現している。 U/t_1 の値が小さくなるごとに磁気無秩序な絶縁体相の領域が広がっているが、この現象は先行研究でも確認されている [3,4]。また、同様の現象が領域 (iii) でも起こっている。一方領域 (ii) では、120°反強磁性秩序相が消滅した代わりに金属相が発現しており、Néel 反強磁性秩序相と金属相の間に磁気無秩序な絶縁体相が発現している。この相については先行研究でも確認されている。

最後に、 $U/t_1 = 2$ のとき、領域 (i) 及び領域 (ii) では t_2/t_1 の小さい範囲で Néel 反強磁性秩序相が発生しているが、それ以外は磁気秩序のない金属相である。また、Néel 反強磁性秩序相に着目すると、一粒子ギャップが開いている ($\Delta \neq 0$)のは $0 \leq t_2/t_1 < 0.16$ のみで、領域 (i) では $0.16 < t_2/t_1 < 0.47$ の範囲でギャップの閉じた ($\Delta = 0$) Néel 反強磁性秩序を持った金属相であることがわかる。これは $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0$ で Fermi 面が完全に nesting していることに起因している。

4.2.4 電子相関のない極限における磁気感受率の計算

最後に、電子相関のない極限 (U = 0) における磁気感受率の計算結果について議論する。ここで は、U = 0の極限において磁気感受率が最大となる波数の特定をすることにより、短周期の磁気 秩序の出現が期待できるのかを確認することを目的としている。磁気感受率は Lindhard 関数を用 いて、

$$\chi_0(\boldsymbol{q}) = \frac{1}{L} \sum_{\boldsymbol{k}} \frac{f(\boldsymbol{\epsilon}_{\boldsymbol{k}}) - f(\boldsymbol{\epsilon}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}})}{\boldsymbol{\epsilon}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} - \boldsymbol{\epsilon}_{\boldsymbol{k}}}$$
(4.11)

と表せる [55–57]。ここで、 ϵ_k は U = 0 におけるバンド分散であり、 $f(\epsilon)$ は Fermi 分布関数

$$f(\epsilon) = \frac{1}{e^{\beta\epsilon} + 1} \tag{4.12}$$

である。本研究では絶対零度を仮定して計算しているので、温度 T は $T = 0.01t_1$ を仮定している。 つまり、 $\beta = 1/T = 100/t_1$ である。図 4.8 にいくつかの相互作用パラメータに対する磁気感受率 の計算結果を示している。 $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0.0$ では $q = (\pi, \pi)$ で感受率が著しく大きな値をとって いるが、これはフェルミ面におけるネスティングベクトルに起因しているものと考えられる。一方 それ以外のパラメータでは目立ったピークが見られていないことから、弱相関領域では磁気秩序は 見られないと考えられる。



図 4.8: 左上図: $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0.0$ 、右上図: $t_2/t_1 = 1.0$, $t'_2/t_1 = 0.0$ 、左下図: $t_2/t_1 = 1.0$, $t'_2/t_1 = 0.8$ 、右下図: $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 1.0$ における磁気感受率の波数依存性。

第5章 三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型におけ る基底状態の考察

この章では次近接ホッピングを導入した三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型の基底状態に関して議論 していく。最近接相互作用のみを考慮した三角格子模型で 120° 反強磁性秩序を形成することはご 存じのとおりであるが、強結合近似を施した Heisenberg 模型において次近接相互作用を導入する ことで、新たな磁気秩序状態が発現したり、中間状態として磁気秩序のないスピン液体状態が発現 する可能性があることが研究され、注目を集めている [58–64]。一方で、中・弱相関領域の基底状 態についてはほとんど研究されていない。本研究でも同様に、局所的な相互作用を厳密に扱える 変分クラスター近似 (VCA) を用いることで、この模型の金属絶縁体転移及び基底状態の磁気秩序 の変遷について考察していく。この章は、既出版論文 "Mott transition and magnetism of the triangular-lattice Hubbard model with next-nearest-neighbor hopping", K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **95**, 075124/1-7 (2017) を元に纏めたものである。

5.1 三角格子 $J_1 - J_2$ Heisenberg 模型

まずは強結合近似を施した三角格子 $J_1 - J_2$ Heisenberg 模型について議論する。ハミルトニアンは

$$H = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \boldsymbol{S}_i \cdot \boldsymbol{S}_j + J_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \boldsymbol{S}_i \cdot \boldsymbol{S}_j$$
(5.1)

と与えられる。ここで、 S_i は Pauli 演算子を用いて表されるスピン演算子 $S_i \equiv c_{i\alpha}^{\dagger} \sigma_{\alpha\beta} c_{i\beta}/2(S = 1/2)$ である。

この Heisenberg 模型について古典系では、次近接相互作用 J_2 の小さい領域では 120° 反強磁性秩 序が形成されるが、 $J_2/J_1 = 1/8$ を臨界点として、それより大きい領域では $S_1 + S_2 + S_3 + S_4 = 0$ を満たす縮退した四副格子状態が生成される [66](図 5.1 の左図)。しかし、量子揺らぎの導入によっ て縮退が解け、ストライプ反強磁性秩序状態がエネルギー的に安定化する [66–69]。つまり、この 模型は量子揺らぎの導入で基底状態が秩序化する order by disorder の一例である。また、様々な 計算手法の発達により、d 波スピン液体状態、ギャップレススピン液体状態、時間反転対称性のあ るスピン液体状態が 120° 反強磁性秩序状態とストライプ反強磁性秩序状態の中間に発現する可能 性が示唆されている [58–64]。

ちなみにこの Heisenberg 模型で表すことのできる物質として、 $Ba_3CoSb_2O_9$ が近年提唱され ているが、この物質は 120° 反強磁性秩序状態が基底状態となっており、相互作用パラメーターも $J_2/J_1 = 0.05$ と理論計算における結果とも合致している [65]。つまり、磁気無秩序状態もしくはス トライプ反強磁性秩序状態が安定であり、かつこの模型で表すことのできる物質はまだ発見されて いない。



図 5.1: 左図:古典系における三角格子 $J_1 - J_2$ Heisenberg 模型の基底状態の相図。 $J_2/J_1 = 1/8$ が 相転移点となる。右図:変分モンテカルロ法 (VMC)を用いた計算で導出した基底状態の相図 [60]。 古典的な相転移点 $J_2/J_1 = 1/8$ 周辺が磁気無秩序なスピン液体状態であることが示されている。



図 5.2: (a) 最近接ホッピング t₁ と次近接ホッピング t₂、t'₂ を持つ三角格子 Hubbard 模型の模式 図。(b)120° 反強磁性秩序状態。(c) ストライプ反強磁性秩序状態。矢印は電子が局在化したとき に安定になりやすいスピンの向きを示しており、色は各副格子に対応させている。

5.2 三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型

三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型のハミルトニアン H は次のように与えられる。

$$H = -t_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} - t_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma},$$
(5.2)

 $c_{i\sigma}^{\dagger}(c_{i\sigma})$ は *i* 番目のサイトにスピン σ の電子を生成 (消滅) する演算子である。また、 $\langle i, j \rangle$ はホッ ピング t_1 をもつ最近接のサイト間を結ぶボンドを、 $\langle \langle i, j \rangle \rangle$ はホッピング t_2 をもつ次近接のサイト 間を結ぶボンドを示している (図 5.2(a) を参照)。U は電子間の斥力クーロン相互作用 (U > 0)、 μ は化学ポテンシャルである。これを強結合 ($U \gg 1$) で近似したときに生成される Heisenberg 模型 は $J_1 = 4t_1^2/U$ 、 $J_2 = 4t_2^2/U$ として (5.1) 式で記述される。

前節で記述した Heisenberg 模型の先行研究により、中・弱相関領域においても、次近接相互作 用の小さい領域で 120° 反強磁性秩序状態 (図 5.2(b) を参照) が、大きい領域でストライプ反強磁 性秩序状態 (図 5.2(c) を参照) が発現し、それらの中間に磁気秩序のない状態が発現することが予 測できる。これらの先行研究を踏まえ、本研究では、次近接ホッピング t₂ を変化させて、中間領 域の基底状態を調べていくとともに、クーロン相互作用 U を小さくしていった時の金属絶縁体転 移についても調べていく。

5.3 変分クラスター近似 (VCA)

今節では、まず本研究で用いた参照系及び変分ハミルトニアンについて議論し、その後強相関領域 $(U/t_1 = 60)$ 及び中・弱相関領域 $(U/t_1 \leq 10)$ に対する計算結果をそれぞれ提示し、この模型の 基底状態の磁気秩序及び金属絶縁体転移について議論する。

5.3.1 参照系と変分ハミルトニアン

三角格子 t₁ – t₂ Hubbard 模型において考察するべき磁気秩序相は、120° 反強磁性秩序相及びス トライプ反強磁性秩序相であることから、参照系のハミルトニアンとして、

$$H' = H + H_{120^{\circ}} + H_{\rm str} + H_{\rm on} \tag{5.3}$$

を用いる。今回の計算では half-filling(n = 1)の状態を考える。変分ハミルトニアンについて、 H_{sp} は 120°反強磁性秩序相、 H_{st} はストライプ反強磁性秩序相を調べるために導入されたものであり、それぞれ以下のように与えられる。

$$H_{120^{\circ}} = h'_{120^{\circ}} \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_{i}} \cdot \boldsymbol{S}_{i}$$
(5.4)

$$H_{\rm str} = h_{\rm str}' \sum_{i} e^{i \boldsymbol{Q}_{\rm st} \cdot \boldsymbol{r}_i} S_i^z \tag{5.5}$$

また、粒子数を half-filling(n = 1) に調節するのに必要なオンサイト変分

$$H_{\rm on} = \varepsilon \sum_{i} n_i \tag{5.6}$$

も導入している。ここで、 h'_{120° 及び h'_{str} はそれぞれ 120°反強磁性秩序相、ストライプ反強磁性 秩序相を形成する Weiss 場である。また、 S_i はパウリ行列 $\sigma_{\alpha\beta}$ を用いて $S_i = c^{\dagger}_{i\alpha}\sigma_{\alpha\beta}c_{i\beta}/2$ と定 義されるスピン演算子、 $Q_{str} = (\pi, \pi/\sqrt{3}), (\pi, -\pi/\sqrt{3}), (0, -2\pi/\sqrt{3})$ はストライプ反強磁性秩序



図 5.3: (a) 本研究で用いた 12 サイト参照系。左図: 120° 反強磁性秩序を形成できる三副格子系。右 図:ストライプ反強磁性秩序を形成できる二副格子系。(b) 三角格子における first Brillouin zone。

の波数ベクトル、 e_{a_i} はサイト *i* における副格子番号 a_i (= 1,2,3) に応じて 120° ずつ回転してい る単位ベクトルである。変分パラメータ $h'_{120°}$ 、 h'_{str} は自己エネルギー汎関数法に基づき、グラン ドポテンシャルの停留点を求めることで最適化される。このとき、 $h' \neq 0$ に停留点が存在すること によって、それに応じた秩序状態が安定化する。

今回用いる参照系は、図 5.3(a) のような 12 サイトのクラスターを用いる。このクラスターは、 ↑ スピンと↓スピンの数が等しい二副格子状態 (ストライプ反強磁性秩序状態)、三種の副格子の 数が等しい三副格子状態 (120°反強磁性秩序状態) 共に生成できる非常に利便性の高い参照系であ る。ここで今回扱う模型は、より長周期なスパイラル秩序状態が発現する可能性も示唆されている が、本研究ではこのような秩序は扱えないことを留意しておく。

5.3.2 強相関領域 $(U/t_1 = 60)$

ここでは、強相関領域 $(U/t_1 = 60)$ における計算結果について議論していくのだが、その前に本 研究で計算した物理量を紹介する。まず、粒子数は、

$$n = \frac{1}{L} \sum_{i,\sigma} \langle c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \rangle = \frac{1}{N_c L} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\mathbf{K}} \sum_{a,\sigma} \mathcal{G}_{aa,\sigma}(\mathbf{K}, z)$$
(5.7)

で与えられる。ここで、 N_c はクラスター内のサイト数、aはクラスター内のサイト番号、Kは超 格子の波数である。また、基底エネルギーEは $E = \Omega + \mu$ と定義でき、各種秩序変数は、

$$M_{120^{\circ}} = \frac{2}{L} \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_{i}} \cdot \langle \boldsymbol{S}_{i} \rangle \tag{5.8}$$

$$M_{\rm str} = \frac{2}{L} \sum_{i} e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm st}\cdot\boldsymbol{r}_{i}} \langle S_{i}^{z} \rangle = \frac{1}{N_{c}L} \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\boldsymbol{K}} \sum_{a,\sigma} \sigma e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm C}\cdot\boldsymbol{r}_{a}} \mathcal{G}_{aa,\sigma}(\boldsymbol{K}, z)$$
(5.9)

で計算される。

まずは、グランドポテンシャルの計算結果を図 5.4 に示す。図 5.4 の左図では数個の t_2/t_1 に対す るグランドポテンシャルの h'_{120° 依存性を示しているが、これを見ると、 $t'_2/t_1 < 0.2$ では $h'_{120^\circ} = 0$ 以外にも停留点を持っており、 $h'_{120^\circ} \neq 0$ の方が安定であるとわかるが、 $t_2/t_1 = 0.2$ では停留点が $h'_{120^\circ} = 0$ のみであることがわかる。また、停留点が t_2/t_1 の増加に伴って、連続的に $h'_{120^\circ} \to 0$



図 5.4: グランドポテンシャルの計算結果。左図: h'_{120} 、対 $\Omega - \Omega_0$ 、右図: h'_{str} 対 $\Omega - \Omega_0$ である。 赤の実線は $h' \neq 0$ に停留点がある場合、青の破線はh' = 0に停留点がある場合である。

へと変化しているのがわかる。一方、図 5.4 の右図では数個の t_2/t_1 に対するグランドポテンシャ ルの h'_{str} 依存性を示している。 $t'_2/t_1 \ge 0.7$ では $h'_{str} = 0$ 以外に下に凸な停留点が一個存在するだ けだが、 $t_2/t_1 = 0.55, 0.6$ では上に凸な停留点も存在する。また、 $t'_2/t_1 = 0.5$ では安定な停留点が $h'_{str} = 0$ に切り替わっていることがわかる。ここで、最安定な停留点の変化をみると、 t_2/t_1 の値 を減らしていくと、あるところで $h'_{str} \ne 0$ から $h'_{str} = 0$ に不連続に飛ぶことがわかる。

次に、図 5.5 に秩序変数 (*M*) と基底エネルギー (*E*/*t*₁) の計算結果、及び相図を示す。まず、等 方的三角格子 ($t_2/t_1 = 0$) のときは 120° 反強磁性秩序状態が基底状態であるが、120° 反強磁性秩 序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの値を比較すると、その差は非常に 小さいことがわかる。これは三角格子が強い幾何学的フラストレーションを持っているためだと 考えられる。 t_2 を導入していくことで、二つの値は徐々に近づき、 $t_2/t_1 = 0.2$ のときに、二つの 値は滑らかにつながり、同時に、Néel 反強磁性の秩序変数も連続的に 0 に減少する。これらのこ とから、120° 反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移は 2 次転移であることがわかる。一方で、 $t_2/t_1 = 1$ のときはストライプ反強磁性秩序状態が基底状態であるが、 t_2 の値を減らしていくと、 ストライプ反強磁性秩序状態の基底エネルギーと磁気無秩序状態の基底エネルギーの値が徐々に近 づいていき、 $t_2/t_1 = 0.51$ のときに、二つの値は交差し、大小が逆転する。同時に、ストライプ反 強磁性の秩序変数も不連続に 0 に減少する。これらのことから、ストライプ反強磁性秩序相から磁 気無秩序相への転移は 1 次転移であることがわかる。

ここで、Heisenberg 模型における先行研究 [58–64] と比較すると、120° 反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移点は、 $0.05 \leq J_2/J_1 \leq 0.12 (0.22 \leq t_2/t_1 \leq 0.35)$ であると示されているが、本研究における計算結果とほぼ変わらない値であることがわかる。ストライプ反強磁性秩序状態一磁気無秩序相間における転移点に関しても、 $0.14 \leq J_2/J_1 \leq 0.19 (0.37 \leq t_2/t_1 \leq 0.44)$ と示されているが、これも本研究の計算結果と概ね整合していることがわかる。また、転移の次数についてであるが、変分モンテカルロ法 (VMC) を用いた研究 [60] においても、120° 反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移が 2 次転移、ストライプ反強磁性秩序相から磁気無秩序相への転移が 1 次転移であることが示されており、本研究での結果は、その点においても整合性があると思われる。



図 5.5: 強結合領域 (U/t₁ = 60) における基底状態の相図。左図:120° 反強磁性秩序及びストライ プ反強磁性秩序の秩序変数の計算結果。右図:基底エネルギーの計算結果。

第5章 三角格子 $t_1 - t_2$ Hubbard 模型における基底状態の考察

5.3.3 中・弱相関領域 $(U/t_1 \leq 10)$

ここでは中・弱相関領域である U/t₁ ≤ 10 における基底状態の性質について考察する。

まず、図 5.6 に相図を示す。この相図によると、 U/t_1 の大きい領域 (7 $\leq U/t_1 \leq 10$) においては、 120° 反強磁性秩序絶縁体相とストライプ反強磁性秩序絶縁体相、及びそれらの中間相として、磁 気無秩序絶縁体相が表れていることがわかる。このような構図は $U/t_1 = 60$ のときと全く同じであ る。一方弱相関領域 (0 $\leq U/t_1 \leq 6$) では、常磁性金属相が発達しており、その転移点は $t_2/t_1 \simeq 0.5$ のときに最も低い U_c/t_1 を持っていることがわかる。つまり、この値を境に転移点の値が減少傾向 から増加傾向に変化していることがわかる。これは次近接ホッピングを導入した正方格子模型では 見られない傾向である。これと 2 つの磁気秩序絶縁体相の間 (0 $\leq t_2/t_1 \leq 0.3, 0.4 \leq t_2/t_1 \leq 1$) に も磁気無秩序絶縁体相が発生していることがわかる。しかし、 $t_2/t_1 = 0.35$ 付近では、120° 反強磁 性秩序絶縁体相から常磁性金属相へと直接転移しており、磁気無秩序絶縁体相は発生していない。 これらの磁気無秩序絶縁体相の存在について、本研究では全ての領域を断定的に述べることはでき ないが、少なくとも、0 $\leq t_2/t_1 \leq 0.3$ については、 $t_2/t_1 = 0$ における先行研究 [28,38,54,70,71] の結果を踏まえると、妥当な結果であると考えられる。

さらに詳細を議論するため、一粒子ギャップ Δ 及び秩序変数 M の計算結果を図 5.7 に示す。ここで、金属絶縁体転移点の変動や、2 種類の磁気秩序に関する詳細を述べやすくするために、次近接相互作用の小さい領域 ($0 \le t_2/t_1 \le 0.5$) と大きい領域 ($0.5 \le t_2/t_1 \le 1$) に分けて議論する。

まず、次近接相互作用の小さい領域 (0 $\leq t_2/t_1 \leq 0.5$) についてだが、一粒子ギャップは転移点に 向けて連続的に 0 へと変化しているのだが、 t_2/t_1 を大きくすると、ギャップの閉じる転移点 U_c/t_1 の値が減少傾向になることがわかる。また、0 $\leq t_2/t_1 \leq 0.4$ において、120°反強磁性秩序の秩序 変数 $M_{\rm sp}$ が有限の値を持っていることがわかるが、 $t_2/t_1 = 0$ では連続的に 0 に変化しているの に対し、 $t_2/t_1 = 0.1, 0.2, 0.3$ では不連続に 0 に変化しているのがわかる。また、 $t_2/t_1 = 0.4$ では、 5 $\leq U/t_1 \leq 8$ 付近で秩序変数が有限であるが、両側とも秩序変数が連続的に 0 に変化しているこ とがわかる。 $t_2/t_1 = 0.35$ 付近で 120°反強磁性秩序絶縁体相から常磁性金属相への直接転移があ



図 5.6: 中・弱相関領域における基底状態の相図。白色の領域は磁気無秩序状態を示している。



図 5.7: 一粒子ギャップ Δ (上図) と秩序変数 M(下図) の計算結果。左図:次近接ホッピングの小さい領域 ($t_2/t_1 \leq 0.5$)。右図:次近接ホッピングの大きい領域 ($t_2/t_1 \geq 0.5$)。

ることも踏まえると、 $0 \leq t_2/t_1 \leq 0.3$ における磁気無秩序絶縁体と $0.4 \leq t_2/t_1 \leq 1$ における磁気 無秩序絶縁体は種類の異なるものではないかと考えられる。

次に、次近接相互作用の大きい領域 ($0.5 \leq t_2/t_1 \leq 1$) についてだが、一粒子ギャップは同様に 転移点に向けて連続的に 0 へと変化しているが、 t_2/t_1 を大きくすると、ギャップの閉じる転移点 U_c/t_1 の値が先ほどとは逆に増加していることがわかる。ここでは、秩序変数 $M_{\rm st}$ が有限な値を 持っており、連続的に 0 に変化していることがわかる。しかし、 $U/t_1 = 60$ では秩序変数は不連続 に 0 へと変化していたため、強相関領域と中・弱相関領域では秩序変数の振る舞い方が異なること がわかる。

これらの計算結果に対して特に注目している点が、次近接相互作用の導入に伴う金属絶縁体転移 点の変化が減少傾向から途中で増加傾向に変化しているという点である。このような振る舞いは次 近接相互作用を導入した正方格子模型 [3,4,72] では見られなかったものなので、非常に興味深い現 象の一つであると考えている。

5.3.4 金属絶縁体転移

金属絶縁体転移点に関する特徴的な振る舞いが見られたので、これを別の視点で議論するため に、状態密度 (Density of States: DOS) と一粒子スペクトル、運動量分布関数、及び二重占有率の 計算を行った。状態密度 $\rho(\omega)$ 及び一粒子スペクトル関数 $A(\mathbf{k},\omega)$ はそれぞれ、

$$\rho(\omega) = \frac{1}{L} \sum_{\boldsymbol{k} \in \mathrm{BZ}} A(\boldsymbol{k}, \omega)$$
(5.10)

$$A(\boldsymbol{k},\omega) = -\frac{1}{\pi} \lim_{\eta \to 0} \operatorname{Im} \mathcal{G}_{\operatorname{CPT}}(\boldsymbol{k},\omega+i\eta)$$
(5.11)

と表される。図 5.8 に DOS の計算結果、図 5.9 に一粒子スペクトルの計算結果をそれぞれ示している。

図 5.8 について DOS のピークに着目すると、 $t_2/t_1 = 0$ のときにピークが Fermi 面より正の方 ($\omega > 0$)に存在することがわかる。これは三角格子構造における van Hove 特異点によるものと考 えられる。 t_2/t_1 を大きくしていくと、ピークは徐々に Fermi 面に近づいていき、 $t_2/t_1 = 0.5$ のと き、Fermi 面に最も近づく。そこから更に t_2/t_1 を大きくしていくと、ピークは再び Fermi 面から 離れる。Fermi 面における DOS の値が高いほどエネルギー的に不安定であることから [73]、U を わずかに挿入しても、一粒子ギャップは開きやすくなる。つまり、DOS のピークが Fermi 面に最 も近い $t_2/t_1 = 0.5$ のときが弱い電子相関でも最もギャップが開きやすい状態であることがわかる。 これは、一粒子ギャップの計算結果 (図 5.6 上図)とも整合がとれている。

ー粒子スペクトルの計算からもそれに結び付くであろう特徴が得られた。バンド幅は $t_2/t_1 = 0$ のときが最も小さく、 t_2/t_1 の増加で単調に増加している。バンド幅が広いほど、広範囲のエネル ギー領域に分散されているので、金属状態が安定化しやすいはずであるが、 $0 \le t_2/t_1 \le 0.5$ ではむ しろバンド幅が広くなるにつれて絶縁化しやすくなっている。そこで、K 点でのバンドピークの動 きに着目すると、 $t_2/t_1 = 0$ では Fermi 面より正の方に、 $t_2/t_1 = 1$ では Fermi 面より負の方に位置 しており、 $t_2/t_1 = 0.5$ では Fermi 面周辺に平坦バンドを形成していることがわかる。このことも、 $t_2/t_1 = 0.5$ 付近で最も絶縁化しやすくなっている現象と関わりがあるのではないかと考えている。 運動量分布関数 $n(\mathbf{k})$ は CPT グリーン関数 Correcを 関連数 いで積分すればとく

連動量分布関数
$$n(\mathbf{k})$$
 は CPT クリーン関数 $\mathcal{G}_{\mathrm{CPT}}$ を周波数 ω で積分すれはよく、

$$n(\mathbf{k}) = \oint_{C_{<}} \frac{dz}{2\pi i} \mathcal{G}_{\rm CPT}(\mathbf{k}, z)$$
(5.12)

となる。ここで、 $C_{<}$ は負の実軸上を囲む経路である。また、二重占有率 $D_{\rm occ}(1$ サイトあたり)は

$$D_{\rm occ} = \frac{1}{N_c} \sum_{a=1}^{N_c} \langle n_{a\uparrow} n_{a\downarrow} \rangle = \frac{dE}{dU}$$
(5.13)

と表される。つまり、基底エネルギー E をクーロンポテンシャル U で微分すればよい。これらの 計算結果を図 5.10 にまとめた。

運動量分布関数の振る舞いは、金属状態のときはフェルミ波数 k_F 周辺で不連続に変化し、絶縁体状態のときはフェルミ波数周辺でもなだらかな変化をするようになる。本研究では $t_2/t_1 = 0.0, 0.5, 1.0$ において計算を行ったが、図 5.10 左図に着目すると、 $t_2/t_1 = 0.0$ のときは Γ 点と K 点の間及び K 点と Γ 点の間の計 2ヶ所に $n(\mathbf{k}) = 1.0$ を横切るポイントが存在するが、 $t_2/t_1 = 0.5$ 及び 1.0 の ときは、K 点の周辺にさらに 2ヶ所ポイントが増加していることがわかる。これは一粒子スペクト ルがフェルミ面 ($\omega = 0$)を横切る波数の数とも一致していることから、運動量分布関数からもこの 模型の特徴的な金属絶縁体転移を観測できることがわかる。

二重占有率についても $t_2/t_1 = 0.0, 0.5, 1.0$ で計算してみたが、図 5.10 右図からもわかるように、 金属絶縁体転移点付近でも連続的に変化しており、これらが二次の金属絶縁体転移であることが示 されている。これは一粒子ギャップの計算結果 (図 5.6 上図) とも整合がとれている。



図 5.8: 金属状態 (左図) 及び絶縁体状態 (右図) における状態密度 (DOS) の計算結果。Fermi 準位 を緑の実線で記述している



図 5.9: 一粒子スペクトル $A(\mathbf{k},\omega)$ の計算結果。縦軸の波数は、図 5.3(b)の点線に沿って取っている。左図の青の実線は、tight-binding 近似で求めたエネルギーバンドを示している。



図 5.10: 運動量分布関数 $n(\mathbf{k})$ (左図) 及び二重占有率 $D_{\text{occ}}($ 右図) の計算結果。右図における矢印は 金属絶縁体転移点 U_c を示している。

5.3.5 その他の参照系

VCA は自己エネルギー ∑ を近似的に扱っている計算であるため、その計算結果はクラスターの サイズや形に依存する。したがって、複数の参照系クラスターに VCA を適用して、定性的に変化 しない物性を探り当てる必要がある。そこで本節では、図 5.3(a)の参照系クラスターとは別のク ラスターを用いた VCA による計算結果について議論する。ここで用意する参照系クラスターは、 図 5.3(a)のように回転対称性を保ったり、対象となっている磁気秩序全てを扱ったりすることは できないが、部分的でも図 5.6 の相図と比較するには十分な役割を果たす。

まずは、図 5.11 に示す 6 サイト参照系を用いた計算結果を議論する。この図からもわかるよう に、正三角形状に粒子サイトを配置させているのだが、このままではクラスターを敷き詰める際に 隙間ができてしまい、元の格子系に戻せない。そこで、このクラスターを回転させたクラスターを 用意し、2 つを組み合わせて 12 サイトのスーパークラスターを作る。これにより、スーパークラ スターを敷き詰めて、元の格子系に戻すことができるようになる。

具体的な計算としては、まず Weiss 場を導入したハミルトニアンのかかった元の6サイトクラ スターに対して厳密対角化を施し、一粒子グリーン関数及びグランドポテンシャルを求める。その 後でもう一方のクラスターにおける一粒子グリーン関数を求めるのだが、今回のように元のクラス



図 5.11: (a):6 サイト参照系。(b):(a) の参照系を組み合わせて作成した 12 サイトスーパークラ スター。



図 5.12: スーパークラスターにおける 1 粒子グリーン関数。対称操作で重なる格子を選んだ場合 は、サイトの番号の入れ替えに対応させて、*G*[']₁ の行列成分の入れ替えから *G*[']₂ を作成できるので、 対角化の計算は 1 回だけでよい。



図 5.13: 左図:図 5.11 のクラスターで VCA の計算を適用してできる基底状態の相図。比較のため、図 5.6 のデータも併せて載せている。右図:図 5.11 のクラスターにおける 120° 秩序の秩序変数の計算結果。

ターを回転させたものの場合はサイトの番号、即ち行列の成分を入れ替えるだけで作成できるので、 対角化の計算は1回行えば十分である。そのあと2つの一粒子グリーン関数行列を block-diagonal に配置してスーパークラスターの一粒子グリーン関数 $G_{t',U} = G'$ を作り、(3.49)式に代入するこ とにより、元の格子系のグランドポテンシャルを計算できるようになる (図 5.12)。その際、V行 列に元の6サイトクラスターと回転させた6サイトクラスターをつなぐ相互作用項を加えることに 注意する必要がある。

このクラスターに VCA を適用して導出した基底状態の相図及び 120° 秩序の秩序変数の計算結 果を図 5.13 に示している。 $t_2/t_1 = 0$ のときは、 $U/t_1 = 9.2$ のときに 120° 秩序絶縁体相と無秩序 絶縁体相間での相転移が発生しており、秩序変数が転移点で不連続に 0 に変化していることから 1 次の相転移であることがわかるが、これは別の文献でも確認されている。 $t_2/t_1 \neq 0$ になると、転 移点の値は変化するものの、秩序変数の変化の傾向から、 $t_2/t_1 \neq 0$ でも 1 次相転移が発生してい ることがわかる。また、金属絶縁体転移については、 t_2/t_1 を変化させることで、転移点 U_c/t_1 の 値の変化が、減少傾向から増加傾向に変化することがわかり、図 5.3(a) のクラスターにおける計 算結果と定性的な変化はないことがわかる。

図 5.11 のクラスターではストライプ反強磁性を扱うことができないため、さらに別の 12 サイト クラスターを 2 種類用意した (図 5.14)。その計算結果を示したのが図 5.15 である。どちらのクラ スターも、ストライプ反強磁性絶縁体相から無秩序絶縁体相間での相転移は、秩序変数が連続的に 0 に変化する 2 次相転移であり、金属絶縁体転移も転移点 *U_c/t₁* の値の変化が、減少傾向から増加 傾向に変化することがわかった。つまり、これらも図 5.3(a) のクラスターにおける計算結果と定 性的な変化はないといえる。



図 5.14: ストライプ反強磁性秩序を扱える図 5.3(a) とは別の 12 サイトクラスター。共に 3 回回転 対称性が崩れているのがわかる。



図 5.15: 左図:図 5.14の2種類のクラスターで VCA の計算を適用してできる基底状態の相図。比較のため、図 5.6のデータも併せて載せている。右図:図 5.14の2種類のクラスターにおけるストライプ反強磁性秩序の秩序変数の計算結果。

第6章 総括

本研究では変分クラスター近似を用いて、幾何学的フラストレーションを持つ理論模型の、絶対 零度における half-filling 基底状態の磁性及び金属絶縁体転移について研究した。そのために、各 種磁気秩序に対する秩序変数や一粒子ギャップ、状態密度、一粒子スペクトル等を計算した。

まず、最近接相互作用のみの正方格子模型、次近接相互作用を導入した正方格子模型、三角格子 模型を全てをホッピング相互作用の調整によって実現できる正方格子 t1 – t2 – t5 Hubbard 模型の 絶対零度における基底状態について調べた。強結合領域においては磁気秩序相として Néel 反強磁 性秩序相、collinear 反強磁性秩序相及び 120° 反強磁性秩序相が出現し、これらの相の中間相とし て磁気無秩序相が検出された。特に幾何学的フラストレート系である次近接相互作用を導入した正 方格子模型と最近接相互作用のみの三角格子模型の中間領域で広範囲で出現したことから、幾何学 的フラストレーションの影響が強いときに磁気無秩序な絶縁体相、つまりスピン液体相が出現しや すいという、これまでの幾何学的フラストレート系の研究に対する見解に沿った結果となった。ま た、相転移の次数は Néel 反強磁性秩序相及び 120° 反強磁性秩序相と磁気無秩序相間の転移は連続 的な 2 次転移、collinear 反強磁性秩序相と磁気無秩序相間の転移は不連続的な 1 次転移であるこ とがわかった。これらの結果は Heisenberg 模型を用いたいくつかの先行研究とも整合することを 確認した。中・弱結合領域においては、上で述べた絶縁体相だけでなく、常磁性の金属相も検出さ れた。等方的な最近接三角格子模型周辺で金属相が出現しやすい一方で、最近接正方格子周辺では 弱結合領域においても Néel 反強磁性秩序相が残留していることが示唆された。この現象はゼロ相 関における磁気感受率やフェルミ面におけるネスティングベクトルの出現とも関連付けられること も明らかにした。

次に、次近接相互作用を導入した三角格子 t₁ – t₂ Hubbard 模型の絶対零度の基底状態に関する 研究を行った。強結合領域においては磁気秩序相として t₂/t₁ = 0 周辺では 120° 反強磁性秩序相、 t₂/t₁ = 1 周辺ではストライプ反強磁性秩序相が出現し、これらの相の中間相として磁気無秩序相 が検出された。また、相転移の次数は120°反強磁性秩序相と磁気無秩序相間の転移は連続的な2 次転移、collinear 反強磁性秩序相と磁気無秩序相間の転移は不連続的な1次転移であることが判 明した。これらの結果ついても Heisenberg 模型を用いたいくつかの先行研究と比較し、うまく整 合することを確認した。中・弱結合領域においては、上で述べた絶縁体相だけでなく、常磁性の金 属相も検出された。磁気無秩序相は金属相と磁気秩序を持った絶縁体相の中間にも発生した。この ことから、金属絶縁体転移点付近においても幾何学的フラストレーションの影響を受けやすいこと を明らかにした。また、金属絶縁体転移について、次近接相互作用が $0.0 \leq t_2/t_1 \leq 0.5$ の範囲で は転移点 U_c/t_1 の値が減衰していく一方で、 $0.5 \leq t_2/t_1 \leq 1.0$ の範囲では転移点 U_c/t_1 の値が増大 していくという、次近接相互作用を導入した正方格子模型では見られない特徴的な転移が検出され た。この現象について、一粒子スペクトルや状態密度等の計算結果も照らし合わせた結果、状態密 度のピークのフェルミ面に対する位置の変化や、特定の波数における一粒子スペクトルや運動量分 布関数の変化と関連付けられる可能性があることが示唆された。また、一粒子ギャップや二重占有 率の計算結果から、二次の金属絶縁体転移であることが判明した。

本論文では、幾何学的フラストレート量子系に関連する2種類の量子模型を研究したことで、こ

の分野に対する新たな知見を提示できると考えている。特に三角格子 t₁ – t₂ Hubbard 模型に関し ては、強結合近似を施した Heisenberg 模型に関する先行研究は存在するものの、中・弱相関領域 に関しては未開拓であるため、この領域を研究したのが本論文の大きな意義であると捉えている。 しかし、磁気無秩序な絶縁体相に関しては、今回は2倍、3倍の短周期な秩序の出ない相としてい るために、より長周期の磁気秩序相や非自明な磁気秩序相等を扱えておらず、本研究で出現したも のが全て磁気無秩序であると結論付けることはできない。従って、長周期の磁気秩序相を扱えるク ラスターを開発する、変分モンテカルロ法 (VMC) や密度行列繰り込み群 (DMRG) といった計算 手法を試すなどして、磁気無秩序相の領域をより精密に特定していくことは必要不可欠であると思 われる。 ここでは、三角格子系におけるスピン波理論について議論する [23,74–76]。簡単のため、模型は 最近接相互作用のみを用いた三角格子 Heisenberg 模型

$$H = \sum_{\boldsymbol{r},\delta} J_{\delta} \boldsymbol{S}_{\boldsymbol{r}} \cdot \boldsymbol{S}_{\boldsymbol{r}+\delta}$$
(A.1)

を用いる。ここで δ は三角格子における単位ベクトルを示しており、 $\delta_{\alpha} = (1,0), \delta_{\beta} = (-1/2, \sqrt{3}/2), \delta_{\beta'} = (-1/2, -\sqrt{3}/2)$ とする。また相互作用の強さは、 $J_{\beta} = J_{\beta'} = J, J_{\alpha} = J'$ と異方的に設定する (図 A.1)。

スピンの挙動については、zx 平面内でのみ自由に動き回るとし、波数 *Q* のスピン秩序を持つと 仮定すると、δ だけ変位したときのスピン演算子は、

$$S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^{x_0} = S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^x \cos\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right) + S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^z \sin\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right)$$
$$S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^{y_0} = S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^y$$
$$S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^{z_0} = -S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^x \sin\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right) + S_{\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\delta}}^z \cos\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right)$$
(A.2)

となるので、式 (A.1) は、

$$H = \sum_{\boldsymbol{r},\delta} J_{\delta} \left[S_{\boldsymbol{r}}^{y} S_{\boldsymbol{r}+\delta}^{y} + S_{\boldsymbol{r}}^{z} (-S_{\boldsymbol{r}+\delta}^{x} \sin\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right) + S_{\boldsymbol{r}+\delta}^{z} \cos\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right)) + S_{\boldsymbol{r}}^{x} (S_{\boldsymbol{r}+\delta}^{x} \cos\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right) + S_{\boldsymbol{r}+\delta}^{z} \sin\left(\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\delta}\right)) \right]$$
(A.3)

と変換できる。スピン演算子をボーズ演算子 a に変換する手法として Holstein-Primakoff 変換を



図 A.1: (a) $J_{\beta} = J_{\beta'} = J$ 、 $J_{\alpha} = J'$ と相互作用を異方的にした三角格子 Heisenberg 模型。(b) 三 角格子における first Brillouin zone。K 点: $(4\pi/3, 0)$ 、M 点: $(0, 2\pi/\sqrt{3})$ である。

用いると、

$$S^{x} = \sqrt{2S} \cdot \frac{a+a^{\dagger}}{2}, \qquad S^{y} = \sqrt{2S} \cdot \frac{a-a^{\dagger}}{2i}, \qquad S^{z} = S - a^{\dagger}a \tag{A.4}$$

となる。ここでは $S = |\mathbf{S}| \gg 1$ としている 1 。これらを (A.3) に代入すると、

$$H = \sum_{\boldsymbol{r},\delta} J_{\delta} \left[S^{2} \cos\left(\boldsymbol{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}\right) - \frac{S}{2} \left\{ 2(a_{\boldsymbol{r}}^{\dagger} a_{\boldsymbol{r}} + a_{\boldsymbol{r}+\delta}^{\dagger} a_{\boldsymbol{r}+\delta}) \cos\left(\boldsymbol{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}\right) + (a_{\boldsymbol{r}} a_{\boldsymbol{r}+\delta} + a_{\boldsymbol{r}}^{\dagger} a_{\boldsymbol{r}+\delta}^{\dagger}) \left(\cos\left(\boldsymbol{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}\right) - 1\right) - (a_{\boldsymbol{r}}^{\dagger} a_{\boldsymbol{r}+\delta} + a_{\boldsymbol{r}+\delta}^{\dagger} a_{\boldsymbol{r}}) \left(\cos\left(\boldsymbol{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}\right) + 1\right) \right\} \right]$$
(A.5)

となる。これにフーリエ変換

$$a_{\boldsymbol{r}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} a_{\boldsymbol{k}} \tag{A.6}$$

を適用すると、式 (A.5) は、

$$H = E_c + S \sum_{\delta} J_{\delta} \sum_{\mathbf{k}} \left[\{ \cos \left(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta} \right) (\cos \left(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta} \right) + 1) - 2 \cos \left(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta} \right) \} (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}}) - \cos \left(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta} \right) (\cos \left(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta} \right) - 1) (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{-\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}}) \} \right]$$

$$E_c = NS^2 \sum_{\delta} J_{\delta} \cos \left(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta} \right)$$
(A.7)

と変形できる。ここで、

$$A(\mathbf{k}) = 2S \sum_{\delta} J_{\delta} \{ \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}) (\cos(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}) + 1) - 2\cos(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}) \}$$
$$B(\mathbf{k}) = 2S \sum_{\delta} J_{\delta} \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}) (\cos(\mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\delta}) - 1)$$
(A.8)

とすると、式 (A.7) は、

$$H = E_c + \sum_{\boldsymbol{k}} \left[\frac{A(\boldsymbol{k})}{2} (a_{\boldsymbol{k}}^{\dagger} a_{\boldsymbol{k}} + a_{-\boldsymbol{k}}^{\dagger} a_{-\boldsymbol{k}}) - \frac{B(\boldsymbol{k})}{2} (a_{\boldsymbol{k}}^{\dagger} a_{-\boldsymbol{k}}^{\dagger} + a_{\boldsymbol{k}} a_{-\boldsymbol{k}}) \right]$$
(A.9)

となる。Bogoliubov 変換を用いて生成消滅演算子を

$$a_{\mathbf{k}} = u_{\mathbf{k}}\alpha_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}}\alpha^{\dagger}_{-\mathbf{k}} \tag{A.10}$$

と変換すると、非対角項 $\alpha_k \alpha_{-k}$ 及び $\alpha_k^{\dagger} \alpha_{-k}^{\dagger}$ を打ち消すために

$$A(\mathbf{k})u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} - \frac{B(\mathbf{k})}{2}(u_{\mathbf{k}}^{2} + v_{\mathbf{k}}^{2}) = 0$$
(A.11)

 ${}^1S^x$ と S^y は厳密に表すと、

$$S^{x} = \sqrt{2S} \cdot \frac{f_{S}(a)a + a^{\dagger}f_{S}(a)}{2}, \qquad S^{y} = \sqrt{2S} \cdot \frac{f_{S}(a)a - a^{\dagger}f_{S}(a)}{2i}, \qquad f_{S}(a) \equiv \sqrt{1 - \frac{a^{\dagger}a}{2S}}$$

となり、 $f_S(a)$ を1/Sの高次の項まで展開すると、

$$f_S(a) = 1 - \frac{a^{\dagger}a}{4S} - \frac{(a^{\dagger}a)^2}{32S^2} - \cdots$$

となるのだが、後の計算が面倒となるので、 $S = |\mathbf{S}| \gg 1$ とすることで $f_S(a) = 1$ と近似できる。

が成立することや、条件式 $u_{k}^{2} - v_{k}^{2} = 1$ を考慮すると、

$$u_{\mathbf{k}}^{2} + v_{\mathbf{k}}^{2} = \frac{A(\mathbf{k})}{\sqrt{[A(\mathbf{k})]^{2} - [B(\mathbf{k})]^{2}}}$$
$$2u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} = \frac{B(\mathbf{k})}{\sqrt{[A(\mathbf{k})]^{2} - [B(\mathbf{k})]^{2}}}$$
(A.12)

が成り立つ。従って (A.9) は、

$$H = E_c + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} [E(\mathbf{k}) - A(\mathbf{k})] + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} E(\mathbf{k}) (\alpha_{\mathbf{k}}^{\dagger} \alpha_{\mathbf{k}} + \alpha_{-\mathbf{k}}^{\dagger} \alpha_{-\mathbf{k}})$$
(A.13)

と変形でき、第3項がエネルギー $E(\mathbf{k}) = \sqrt{[A(\mathbf{k})]^2 - [B(\mathbf{k})]^2}$ のマグノン励起の項となる。また、 $\mathbf{k} = 0, \mathbf{Q}$ において $E(\mathbf{k}) = 0$ となり、その付近では線形分散の形をとる [23]。

ここで、波数 **Q** の値について $\mu = J'/J$ とすると、基底エネルギー E_c が最小となる値を取れば よいので、 $0 \le \mu \le 1/2$ のときは **Q** = $(0, 2\pi/\sqrt{3})$ の Collinear 秩序状態となり、 $1/2 < \mu < \infty$ の ときは **Q** = $(2\cos^{-1}(-1/2\mu), 0)$ の Spiral 秩序となる。特に、 $\mu = 1$ のときは、**Q** = $(4\pi/3, 0)$ の 120° 秩序状態を取る。基底状態の磁化 m_0

$$m_0 = \left(S + \frac{1}{2}\right) - \frac{\sqrt{3}}{2} \int_{\boldsymbol{k} \in \mathrm{BZ}} \frac{dk_x dk_y}{(2\pi)^2} \frac{A(\boldsymbol{k})}{2E(\boldsymbol{k})}$$
(A.14)

の計算結果が図 A.2 となるが、相転移点 $\mu = 1/2$ で $m_0 = 0$ となり、連続的につながっているこ とがわかる [23]。



図 A.2: 線形スピン波理論に基づいた磁化 m_0 の計算結果 [23]。横軸を $\eta = \frac{\mu}{1+\mu}$ で設定している。

付録B Lanczos法による G_{ab} の計算

ここでは、参照系クラスターにおけるグリーン関数 $G_{ab}(z)$ を数値計算可能な形式に変換していく。グリーン関数 $G_{ab}(z)$ は、

$$\begin{aligned} G_{ab}(z) &= G^e_{ab}(z) + G^h_{ab}(z) \\ G^e_{ab}(z) &= \langle \psi_0 | c_a \frac{1}{z - H' + E_0} c^{\dagger}_b | \psi_0 \rangle \\ G^h_{ab}(z) &= \langle \psi_0 | c^{\dagger}_b \frac{1}{z + H' - E_0} c_a | \psi_0 \rangle \end{aligned}$$

であるが、 $|\psi_0\rangle$ にかかる演算子と $\langle\psi_0|$ にかかる演算子は異なる、つまり、両側のベクトルが共役関係ではないので、ここで少し工夫を凝らす必要がある。まず G^e_{ab} を計算するために、次の量

$$X_{ab}^{e} = \langle \psi_{0} | (c_{a} + c_{b}) \frac{1}{z - H' + E_{0}} (c_{a}^{\dagger} + c_{b}^{\dagger}) | \psi_{0} \rangle$$
(B.1)

$$Y_{ab}^{e} = \langle \psi_{0} | (c_{a} - ic_{b}) \frac{1}{z - H' + E_{0}} (c_{a}^{\dagger} + ic_{b}^{\dagger}) | \psi_{0} \rangle$$
(B.2)

$$X_{ab}^{e} = G_{aa}^{e} + G_{bb}^{e} + G_{ab}^{e} + G_{ba}^{e}$$
(B.3)

$$Y_{ab}^{e} = G_{aa}^{e} + G_{bb}^{e} + iG_{ab}^{e} - iG_{ba}^{e}$$
(B.4)

である。従って G^e_{ab} は X^e_{ab} 、 Y^e_{ab} を用いて

$$G_{ab}^{e} = \frac{1}{2}X_{ab}^{e} - \frac{1}{4}(Y_{ab}^{e} + Y_{ba}^{e}) - \frac{i}{4}(Y_{ab}^{e} - Y_{ba}^{e})$$
(B.5)

として計算できる。G^h_{ab}も同様に、

$$X_{ab}^{h} = \langle \psi_{0} | (c_{a}^{\dagger} + c_{b}^{\dagger}) \frac{1}{z + H' - E_{0}} (c_{a} + c_{b}) | \psi_{0} \rangle$$
(B.6)

$$Y_{ab}^{h} = \langle \psi_{0} | (c_{a}^{\dagger} - ic_{b}^{\dagger}) \frac{1}{z + H' - E_{0}} (c_{a} + ic_{b}) | \psi_{0} \rangle$$
(B.7)

$$X_{ab}^{h} = G_{aa}^{h} + G_{bb}^{h} + G_{ab}^{h} + G_{ba}^{h}$$
(B.8)

$$Y_{ab}^{h} = G_{aa}^{h} + G_{bb}^{h} - iG_{ab}^{h} + iG_{ba}^{h}$$
(B.9)

から

$$G_{ab}^{h} = \frac{1}{2}X_{ab}^{h} - \frac{1}{4}(Y_{ab}^{h} + Y_{ba}^{h}) + \frac{i}{4}(Y_{ab}^{h} - Y_{ba}^{h})$$
(B.10)

として計算できる。

付 録C DE公式の算出

ここでは、被積分関数が端点で発散するような場合に精度良い計算結果を与える DE 公式と呼ば れる数値積分法について解説する。

積分の解法として基本的である台形公式を解析関数の無限空間 [−∞,∞] の積分に対して用いる と、極めて精度の良い結果を与えることが知られている。この事実に従い、DE 公式では始めに与 えられた積分

$$I = \int_{a}^{b} f(x)dx \tag{C.1}$$

を変数変換により無限空間 $[-\infty,\infty]$ の積分に直し、台形公式を適用する。この積分に対して関数 $\phi(t)$ による変数変換

$$x = \phi(t), a = \phi(-\infty), b = \phi(\infty)$$
(C.2)

を行うと、積分 I は、

$$I = \int_{-\infty}^{\infty} f(\phi(t))\phi'(t)dt$$
 (C.3)

となる。これに等間隔刻み h の台形公式を適用すると、

$$I \sim I_h^{(N)} = h \sum_{k=-N_-}^{N_+} f(\phi(kh))\phi'(kh) \quad (N = N_- + N_+ + 1)$$
(C.4)

となる。すなわち分点 $a_k = \phi(kh)$ 、重み $\omega_k = \phi'(kh)$ として、

$$I_{h}^{(N)} = h \sum_{k=-N_{-}}^{N_{+}} f(a_{k})\omega_{k}$$
(C.5)

である。ここで N は刻みの数である。つまり、N 回だけ被積分関数を計算する必要がある。

ここで重要なのが、変換 $x = \phi(t)$ として適当な関数がどういうものかということである。変換 後の被積分関数が $t \to \pm \infty$ で素早く減衰するのが望ましい。つまり、変換関数の微分 $\phi'(t)$ が素早 く減衰するものがよい。変換としていくつか例を挙げると、

$$I = \int_{-1}^{1} f(x)dx \Rightarrow x = \phi(t) = \tanh\left(\frac{\pi}{2}\sinh t\right)$$
(C.6)

$$I = \int_{0}^{\infty} f(x)dx \Rightarrow x = \phi(t) = \exp\left(\frac{\pi}{2}\sinh t\right)$$
(C.7)

$$I = \int_0^\infty f_1(x) \exp\left(-x\right) dx \Rightarrow x = \phi(t) = \exp\left(t - \exp\left(-t\right)\right)$$
(C.8)

$$I = \int_{-\infty}^{\infty} f(x)dx \Rightarrow x = \phi(t) = \sinh\left(\frac{\pi}{2}\sinh t\right)$$
(C.9)

がある。この変換を用いることで、例えば (C.6) の場合、 $t \to \infty$ のときの被積分関数は、

$$f(\phi(t))\phi'(t) \sim \exp\left(-c \exp\left|t\right|\right) \tag{C.10}$$

のように二重指数関数 (Double Exponential) 的に減衰する。この公式は、変数変換前の被積分関 数が端点で発散する (C.7)~(C.9) のような場合でも、変数変換後の強烈な減衰のために、精度の 良い積分値を与えるという利点がある。また台形公式を用いるため、積分の精度を上げるために刻 みを小さくする際、前回の積分値が利用できるという利点もある。

付 録 D VCA における 120° 反強磁性秩序 Weiss 場の扱い方について

ここでは、VCA における 120° 反強磁性秩序を与える Weiss 場の計算手法について議論する。 Néel 反強磁性秩序の場合は、

$$H_{\rm N} = h'_{\rm N} \sum_{i} e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm N}\cdot\boldsymbol{r}_{i}} S_{i}^{z}$$
$$= \frac{h'_{\rm N}}{2} \sum_{i} \sum_{\sigma} (-1)^{\sigma} e^{i\boldsymbol{Q}_{\rm N}\cdot\boldsymbol{r}_{i}} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma}$$
(D.1)

となるが、この式を見ると、スピン σ の粒子数演算子のみで表せることがわかる。一方、120°反 強磁性秩序の場合は、図 D.1(a)のように番号付けした 3 サイトの三角格子を例として考えると、

$$H_{120^{\circ}} = h'_{120^{\circ}} \sum_{i=1}^{3} \boldsymbol{e}_{i} \cdot \boldsymbol{S}_{i}$$
(D.2)

となる。ここで、 S_i はパウリ行列 $\sigma_{\alpha\beta}$ を用いて $S_i = c_{i\alpha}^{\dagger} \sigma_{\alpha\beta} c_{i\beta}/2$ と定義されるスピン演算子、 e_i はサイトiにおける副格子番号iに応じて120°ずつ回転している単位ベクトルである。これを生成(消滅)演算子 $c_i^{\dagger}(c_i)$ で書き表すために、単位ベクトル e_i をxy平面内に収めるとして、図D.1(b)のように



図 D.1: (a):正三角形 3 サイト参照系。120° 反強磁性秩序は 3 倍周期の秩序なので、参照系として 扱うクラスターのサイト数も 3 の倍数となる。(b):120° 反強磁性秩序 Weiss 場に含まれる単位ベク トル。 θ_i は単位ベクトルの x 軸に対する角度を表しており、 $\theta_1 = 0$ 、 $\theta_2 = \frac{2}{3}\pi$ 、 $\theta_3 = -\frac{2}{3}\pi$ である。 (c):6 サイトスピンレスフェルミオン系。120° 反強磁性秩序 Weiss 場をかけることは、フェルミオ ンが同色のサイト間を飛び移ることと同義である。

$$\boldsymbol{e}_1 = \cos\theta_1 \boldsymbol{e}_x + \sin\theta_1 \boldsymbol{e}_y = \boldsymbol{e}_x \tag{D.3}$$

$$\boldsymbol{e}_2 = \cos\theta_2 \boldsymbol{e}_x + \sin\theta_2 \boldsymbol{e}_y = -\frac{1}{2}\boldsymbol{e}_x + \frac{\sqrt{3}}{2}\boldsymbol{e}_y \tag{D.4}$$

$$\boldsymbol{e}_3 = \cos\theta_3 \boldsymbol{e}_x + \sin\theta_3 \boldsymbol{e}_y = -\frac{1}{2}\boldsymbol{e}_x - \frac{\sqrt{3}}{2}\boldsymbol{e}_y \tag{D.5}$$

と定めると $(heta_1=0, \ heta_2=rac{2}{3}\pi, \ heta_3=-rac{2}{3}\pi), \$ 式 (D.2) は、

$$\begin{aligned} H_{120^{\circ}} &= h'_{120^{\circ}}(e_{1} \cdot S_{1} + e_{2} \cdot S_{2} + e_{3} \cdot S_{3}) \\ &= \frac{h'_{120^{\circ}}}{2}(c_{1\uparrow}^{\dagger}c_{1\downarrow} + c_{1\downarrow}^{\dagger}c_{1\uparrow} + (-\frac{1}{2} + \frac{\sqrt{3}}{2}i)c_{2\uparrow}^{\dagger}c_{2\downarrow} + (-\frac{1}{2} - \frac{\sqrt{3}}{2}i)c_{2\downarrow}^{\dagger}c_{2\uparrow} \\ &+ (-\frac{1}{2} - \frac{\sqrt{3}}{2}i)c_{3\uparrow}^{\dagger}c_{3\downarrow} + (-\frac{1}{2} + \frac{\sqrt{3}}{2}i)c_{3\downarrow}^{\dagger}c_{3\uparrow}) \\ &= \frac{h'_{120^{\circ}}}{2}\sum_{a=1}^{3}(e^{i\theta_{a}}c_{a\uparrow}^{\dagger}c_{a\downarrow} + e^{-i\theta_{a}}c_{a\downarrow}^{\dagger}c_{a\uparrow}) \end{aligned}$$
(D.6)

となる。この式を見ると、スピンの向きが切り替わるスピンフリップ項が含まれていることがわかる。従って、基底状態は↑スピン及び↓スピン各々の数も含めて取りうる全ての状態を考慮しなければならない。そこで、図 D.1(c) のように 6 サイトのスピンレスフェルミオン系とみなすと、 $c_{i\uparrow}^{\dagger} \rightarrow c_{i}^{\dagger} (c_{i\uparrow} \rightarrow c_{i}), c_{i\downarrow}^{\dagger} \rightarrow c_{i+3}^{\dagger} (c_{i\downarrow} \rightarrow c_{i+3})$ となるので、式 (D.6) は、

$$H_{120^{\circ}} = \frac{h'_{120^{\circ}}}{2} \sum_{a=1}^{3} (\langle e^{i\theta_a} c_a^{\dagger} c_{a+3} + e^{-i\theta_a} c_{a+3}^{\dagger} c_a \rangle)$$
(D.7)

となる。従って、120° 反強磁性秩序を与える Weiss 場はスピンレスフェルミオンのホッピング相 互作用とみなして扱うことができる。また、120° 反強磁性秩序変数についても同様にスピンレス フェルミオンを用いて、

$$M_{120^{\circ}} = \frac{1}{3} \sum_{a=1}^{3} (\langle e^{i\theta_a} c_a^{\dagger} c_{a+3} + e^{-i\theta_a} c_{a+3}^{\dagger} c_a \rangle)$$

$$= \frac{1}{3N_c} \oint_{C_{\leq}} \frac{dz}{2\pi i} \sum_{\mathbf{K}} \sum_{a=1}^{3} (\langle e^{i\theta_a} \mathcal{G}_{aa+3,\sigma}(\mathbf{K}, z) + e^{-i\theta_a} \mathcal{G}_{a+3a,\sigma}(\mathbf{K}, z) \rangle)$$
(D.8)

と表すことができる。

ここで、スピンレスフェルミオン系を厳密対角化で扱う場合の注意点を言及する。例えば、12 サ イト系の half-filling 状態を考える場合、反強磁性の Weiss 場を考慮する場合は、最もエネルギー の低い↑6 個、↓6 個の状態のみを考えればよく、取りうる状態数は ₁₂C₆ *₁₂ C₆ = 853776 通りで あるが、120° 反強磁性秩序の Weiss 場を考慮する場合は、24 サイトのスピンレス系に 12 個の粒 子を入れるパターンを考えなければならないので、取りうる状態数は ₂₄C₁₂ = 2704156 通りであ る。つまり、スピンレスにすることにより厳密対角化で扱う行列のサイズがより大きくなる。その ため、厳密対角化で扱えるクラスターのサイト数の限界値が、各スピンの数を固定した基底状態を 計算するときよりも小さくなることを考慮しなければならない。

66

謝辞

本学位論文は千葉大学大学院理学研究科太田幸則教授のもとでまとめられたものです。太田教授 には学部4年の研究室配属から博士後期課程修了までの6年間に渡り、物理学に対する取り組み方 や研究の進め方、論文執筆やプレゼンテーションの仕方などについて熱心に指導して頂きました。 また、国内外の物理学会へ積極的に参加するようご指導頂いたおかげで、貴重な体験をすることが できました。物理学研究者の道に進むか就職するか悩んでいた際にも相談に乗って頂きました。心 より深く感謝致します。

理化学研究所の金子竜也氏には太田研究室に在籍中の頃から変分クラスター近似 (VCA) の開発 の手助けをして頂いたり、物理学的な見方に対して非常に有益なアドバイスを頂きました。また、 論文執筆の際も様々なサポートをして頂きました。計算手法の開発に関しましては、太田研究室の 先輩でもあります白川知功博士、関和弘氏、八巻慎也氏から教えて頂いたことも本研究を進める上 では欠かせない基礎となっております。心より深く感謝致します。

この学位論文は主査として音賢一教授、副査として太田幸則教授、中山隆史教授、北畑裕之准教 授、外部審査員として理化学研究所の柚木清司准主任研究員に審査して頂きました。先生方から は、予備審査及び本審査の際に有益な助言を頂きました。審査員の先生方に心より深く感謝致し ます。

学部4年間から博士後期課程修了までの9年間で同期となっている宮腰祥平氏には数値計算や物 理学的な相談に乗って頂いただけでなく、他愛のない雑談にも付き合っていただいて、筆者の精神 的な支えにもなって頂きました。また、博士後期課程在学中は自分のことで手一杯になってしまっ たために、ポスドクの杉本高大氏と共に後輩達のサポートを全て任せてしまうという結果になって しまいました。深くお詫び申し上げると共に、心より深く感謝致します。また、研究に関して碌な サポートもすることができなかった後輩の諸氏にも深くお詫び申し上げるとともに、研究に集中で きる環境を作って頂いたことに心より深く感謝致します。

最後になりますが、私のこれまでの大学及び大学院での研究生活を支えて下さったご両親に心よ り深く感謝致します。

参考文献

- [1] L. Balents, Nature (London) **464**, 199 (2010).
- [2] P. A. Lee, N. Nagaosa, and X. -G. Wen, Rev. Mod. Phys. 78, 17 (2006).
- [3] T. Mizusaki and M. Imada, Phys. Rev. B 74, 014421 (2006).
- [4] A. H. Nevidomskyy, C. Scheiber, D. Sénéchal, and A. -M. S. Tremblay, Phys. Rev. B 77, 064427 (2008).
- [5] Z. -Q. Yu and L. Yin, Phys. Rev. B 81, 195122 (2010).
- [6] S. Yamaki, K. Seki, and Y. Ohta, Phys. Rev. B 87, 125112 (2013).
- [7] P. Carretta, N. Papinutto, C. B. Azzoni, M. C. Mozzati, E. Pavarini, S. Gonthier, and P. Millet, Phys. Rev. B 66, 094420 (2002).
- [8] R. Melzi, P. Carretta, A. Lascialfari, M. Mambrini, M. Troyer, P. Millet, and F. Mila, Phys. Rev. Lett. 85, 1318 (2000).
- [9] T. Komatsu, N. Matsukawa, T. Inoue, and G. Saito, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 1340 (1996).
- [10] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. 91, 107001 (2003).
- [11] Y. Kurosaki, Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. 95, 177001 (2005).
- [12] R. S. Manna, M. de Souza, A. Brühl, J. A. Schlueter, and M. Lang, Phys. Rev. Lett. 104, 016403 (2010).
- [13] Y. Okamoto, H. Yoshida, and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn. 78, 033701 (2009).
- [14] P. Anderson, Mater. Res. Bull. 8, 153 (1973).
- [15] P. Sindzingre, P. Lecheminant, and C. Lhuillier, Phys. Rev. B 50, 3108 (1994).
- [16] A. L. Chernyshev and M. E. Zhitomirsky, Phys. Rev. B 79, 144416 (2009).
- [17] T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa, M. Tamura, and R. Kato, Phys. Rev. B 77, 104413 (2008).
- [18] M. Yamashita, N. Nakata, Y. Senshu, M. Nagata, H. M. Yamamoto, R. Kato, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Science 328, 1246 (2010).

- [19] K. Miyagawa, K. Kawamoto, Y. Nakazawa, and K. Kanoda, Phys. Rev. Lett. 75, 1174 (1995).
- [20] S. Elsässer, D. Wu, M. Dressel, and J. A. Sculueter, Phys. Rev. B 86, 155150 (2012).
- [21] H. C. Kandpal, I. Opahle, Y. -Z. Zhang, H. O. Jeschke, and R. Valenti, Phys. Rev. Lett. 103, 067004 (2009).
- [22] J. Merino, M. Holt, and B. J. Powell, Phys. Rev. B 89, 245112 (2014).
- [23] A. E. Trumper Phys. Rev. B 60, 2987 (1999).
- [24] J. Merino, R. H. McKenzie, J. B. Marston, and C. H. Chung, J. Phys.: Condens. Matter 11, 2965 (1999).
- [25] Z. Weihong, R. H. McKenzie, and R. R. P. Singh, Phys. Rev. B 59, 14367 (1999).
- [26] P. Hauke, T. Roscilde, V. Murg, J. Cirac, and R. Schmied, New J. Phys. 13, 075017 (2011).
- [27] P. Hauke, Phys. Rev. B 87, 014415 (2013).
- [28] M. Laubach, R. Thomale, C. Platt, W. Hanke, and G. Li, Phys. Rev. B 91, 245125 (2015).
- [29] M. Potthoff, M. Aichhorn, and C. Dahnken, Phys. Rev. Lett. 91, 206402 (2003).
- [30] M. Potthoff, Eur. Phys. J. B **32**, 429 (2003).
- [31] M. Potthoff, Eur. Phys. J. B **36** 335 (2003).
- [32] M. Potthoff, in Strongly Correlated Systems Theoretical Methods, edited by A. Avella and F. Manicini (Springer, Berlin, 2012), Springer Series in Solid-State Sciences 171, pp. 303-339.
- [33] D. Sénéchal, D. Perez, and M. Pioro-Ladriere, Phys. Rev. Lett. 84, 522 (2000).
- [34] D. Sénéchal, in Strongly Correlated Systems Theoretical Methods, edited by A. Avella and F. Manicini (Springer, Berlin, 2012), Springer Series in Solid-State Sciences 171, pp. 237-270.
- [35] J. M. Luttinger and J. C. Ward: Phys. Rev. 118, 1417 (1960).
- [36] 関和弘「2次元ヘリウム原子系の異常量子物性に関する理論的研究」修士論文 (2010).
- [37] C. Dahnken, M. Aichhorn, W. Hanke, E. Arrigoni, and M. Potthoff, Phys. Rev. B 70, 245110 (2004).
- [38] P. Sahebsara and D. Sénéchal, Phys. Rev. Lett. 100, 136402 (2008).
- [39] D. Sénéchal, P. L. Lavertu, M. A. Marois, and A. -M. S. Tremblay, Phys. Rev. Lett. 94, 156404 (2005).
- [40] M. Aichhorn, H. G. Evertz, W. von der Linden, and M. Potthoff, Phys. Rev. B 70, 235107 (2004).

- [41] X. Lu and E. Arrigoni, Phys. Rev. B 79, 245109 (2009).
- [42] E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. 66, 763 (1994).
- [43] 白川 知功 「ドープされた半導体における超電導の理論」 博士論文 (2008).
- [44] R. M. Noack and S. R. Manmana: cond-mat/0510321.
- [45] 夏目 雄平 「計算物理 I」 (朝倉書店,2002).
- [46] 高橋 陽一郎 修士論文 (2011).
- [47] R. Darradi, O. Derzhko, R. Zinke, J. Schulenburg, S. E. Krüger, and J. Richter, Phys. Rev. B 78, 214415 (2008).
- [48] J. F. Yu and Y. J. Kao, Phys. Rev. B 85, 094407 (2012).
- [49] H.-C. Jiang, H. Yao, and L. Balents, Phys. Rev. B 86, 024424 (2012).
- [50] S. -S. Gong, W. Zhu, D. N. Sheng, O. I. Motrunich, and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. 113, 027201 (2014).
- [51] S. Morita, R. Kaneko, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 84, 024720 (2015).
- [52] M. Q. Weng, D. N. Sheng, Z. Y. Weng, and R. J. Bursill, Phys. Rev. B 74, 012407 (2006);
 A. Weichselbaum and S. R. White, *ibid.* 84, 245130 (2011).
- [53] R. F. Bishop, P. H. Y. Li, D. J. J. Farnell, and C. E. Campbell, Phys. Rev. B 79, 174405 (2009).
- [54] A. Yamada, Phys. Rev. B 89, 195108 (2014).
- [55] J. E. Hirsch, Phys. Rev. B **31**, 4403 (1985);
- [56] N. Bulut, D. J. Scalapino, and S. R. White, Phys. Rev. B 47, 2742 (1993).
- [57] A. Sherman and M. Schreiber, Phys. Rev. B 76, 245112 (2007).
- [58] L. O. Manuel and H. A. Ceccatto, Phys. Rev. B 60, 9489 (1999).
- [59] R. V. Mishmash, J. R. Garrison, S. Bieri, and C. Xu, Phys. Rev. Lett. 111, 157203 (2013).
- [60] R. Kaneko, S. Morita, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 83, 093707 (2014).
- [61] P. H. Y. Li, R. F. Bishop, and C. E. Campbell, Phys. Rev. B 91, 014426 (2015).
- [62] Z. Zhu and S. R. White, Phys. Rev. B 92, 041105 (2015).
- [63] W. -J. Hu, S. -S. Gong, W. Zhu, and D. N. Sheng, Phys. Rev. B 92, 140403 (2015).
- [64] Y. Iqbal, W. -J. Hu, R. Thomale, D. Poilblanc, and F. Becca, Phys. Rev. B 93, 144411 (2016).
- [65] J. Ma, Y. Kamiya, T. Hong, H. B. Cao, G. Ehlers, W. Tian, C. D. Batista, Z. L. Dun, H. D. Zhou, and M. Matsuda, Phys. Rev. Lett. 116, 087201 (2016).
- [66] T. Jolicoeur, E. Dagotto, E. Gagliano, and S. Bacci, Phys. Rev. B 42, 4800 (1990).
- [67] A. V. Chubukov and T. Jolicoeur, Phys. Rev. B 46, 11137 (1992).
- [68] R. Deutscher and H. U. Everts, Z. Phys. B 93, 77 (1993).
- [69] P. Lecheminant, B. Bernu, C. Lhuillier, and L. Pierre, Phys. Rev. B 52, 6647 (1995).
- [70] T. Yoshioka, A. Koga, and N. Kawakami, Phys. Rev. Lett. 103, 036401 (2009).
- [71] T. Yoshioka, A. Koga, and N. Kawakami, Phys. Stat. Sol. (b) 247, 635 (2010).
- [72] A. Yamada, K. Seki, R. Eder, and Y. Ohta, Phys. Rev. B 88, 075114 (2013).
- [73] P. Fazekas, Lecture Notes on Electron Correlation and Magnetism, Vol. 5 of Series in Modern Condensed Matter Physics (World Scientific, Singapore, 1999).
- [74] T. Jolicoeur and J. C. Le Guillou, Phys. Rev. B 40, 2727 (1989).
- [75] S. J. Miyake, J. Phys. Soc. Jpn. 61, 983 (1992).
- [76] A. V. Chubukov, S. Sachdev, and T. Senthil, J. Phys.: Condens. Matter 6, 8891 (1994).

参考資料

以下に本論文に関連する論文及び資料を掲載する。まず既公表論文として以下のものを載せる。

- "Phase Diagram of the Frustrated Square-Lattice Hubbard Model: Variational Cluster Approach", K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 064711/1-7 (2016).
- "Mott transition and magnetism of the triangular-lattice Hubbard model with next-nearestneighbor hopping", K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, Phys. Rev. B 95, 075124/1-7 (2017).
- また、以下の参考論文も併せて掲載する。
- "Frustration and magnetic orderings in the square-lattice Hubbard model with anisotropic next-nearest-neighbor hopping", K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, J. Phys.: Conf. Ser. 592, 012113/1-6 (2015).
- 最後に、研究論文審査会で用いた発表資料を添付する。

Phase Diagram of the Frustrated Square-Lattice Hubbard Model: Variational Cluster Approach

Kazuma Misumi, Tatsuya Kaneko, and Yukinori Ohta

Department of Physics, Chiba University, Chiba 263-8522, Japan

(Received April 7, 2015; accepted April 15, 2016; published online May 27, 2016)

The variational cluster approximation is used to study the frustrated Hubbard model at half filling defined on the twodimensional square lattice with anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters. We calculate the ground-state phase diagrams of the model in a wide parameter space for a variety of lattice geometries, including square, crossedsquare, and triangular lattices. We examine the Mott metal–insulator transition and show that, in the Mott insulating phase, magnetic phases with Néel, collinear, and spiral orders appear in relevant parameter regions, and in an intermediate region between these phases, a nonmagnetic insulating phase caused by the quantum fluctuations in the geometrically frustrated spin degrees of freedom emerges.

1. Introduction

The effect of geometrical frustration in strongly correlated electron systems has been one of the major issues of condensed matter physics. In particular, a spin-liquid state caused by the frustration has been interpreted as an exotic state of matter, where the magnetic long-range order is destroyed, yielding a quantum paramagnetic (or nonmagnetic) state at zero temperature¹⁾ or even exotic mechanisms of high-temperature superconductivity.²⁾ The Hubbard, Heisenberg, and related models defined on two-dimensional square and triangular lattices with geometrical frustration have been studied in this respect to find novel quantum disordered states by a variety of theoretical methods.

In the square-lattice cases, the J_1-J_2 Heisenberg model with the nearest-neighbor (J_1) and next-nearest-neighbor (J_2) exchange interactions have been studied for more than two decades.^{3–32)} At $J_2 = 0$, where the frustration is absent, the model is known to have the Néel-type antiferromagnetic longrange order. With increasing J_2 , the frustration increases, but at $J_2 = J_1$, the model again has the ground state with the collinear antiferromagnetic long-range order. The strongest frustration occurs around $J_2/J_1 = 0.5$, where nonmagnetic states such as a valence bond state^{4,6,8,10,11,14–16,18,22,29)} and a spin-liquid state^{12,24-28)} have been suggested to appear, the region of which has recently been studied further in detail.^{31,32)} The t_1-t_2-U Hubbard model with the nearestneighbor (t_1) and next-nearest-neighbor (t_2) hopping parameters and the on-site repulsive interaction U has also been studied, where it has been shown that the critical interaction strength U_c of the metal-insulator transition increases monotonically with increasing t_2/t_1^{33-35} and that the ground state has the Néel order at a small t_2/t_1 and a collinear order around $t_2 = t_1$.^{33,35)} Then, the nonmagnetic insulating state appears between these ordered states.^{34,36)}

In the triangular-lattice cases, the anisotropic J-J' triangular Heisenberg model has been studied. In the isotropic case (J = J'), the 120° spiral ordered phase is known to be stable.³⁷⁾ In the anisotropic case, the Néel order is realized when J'/J is small and the spiral order is realized around J'/J = 1,^{38–48)} and between these phases, a dimer ordered phase³⁹⁾ or a spin-liquid phase^{46,47)} has been predicted to appear. The anisotropic t-t'-U triangular Hubbard model has also been studied,^{49–55)} where it has

been shown that U_c increases with increasing t'/t: at a small t'/t a metal-insulator transition occurs from the metallic phase to the Néel ordered phase, whereas at $t'/t \simeq 1$ a nonmagnetic insulating phase appears between the metallic and spiral ordered phases.^{54,55} Recently, the magnetic orders in the triangular-lattice Heisenberg model with J_1 and J_2 have also been studied, where a nonmagnetic insulating phase is shown to appear between the spiral and collinear phases.⁵⁶⁻⁶⁰

In this paper, motivated by the above developments in the field, we study the frustrated square-lattice Hubbard model at half filling with the isotropic nearest-neighbor and anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters and clarify the metal-insulator transition, the appearance of possible magnetic orderings, and the emergence of a nonmagnetic insulating phase. The search is made in a wide parameter space including square, crossed-square, and triangular lattices, as well as in weak to strong electron correlation regimes. We use the variational cluster approximation (VCA) based on self-energy functional theory (SFT),⁶¹⁻⁶³⁾ which enables us to take into account the quantum fluctuations of the system, so that we can study the effect of geometrical frustration on the spin degrees of freedom and determine the critical interaction strength for the spontaneous symmetry breaking of the model. We examine the entire regime of the strength of electron correlations at zero temperature, of which little detail is known. In particular, we compare our results in the strong correlation regime with those of the Heisenberg model, for which many studies have been carried out. We also compare our results with those in the weak correlation limit via the generalized magnetic susceptibility calculation and with those of the classical Heisenberg model calculation where the quantum spin fluctuations are absent.

We will thereby show that magnetic phases with Néel, collinear, and spiral orders appear in relevant regions of the parameter space of our model and that a nonmagnetic insulating phase, caused by the quantum fluctuations in the frustrated spin degrees of freedom, emerges in a wide parameter region between the ordered phases obtained. The orders of the phase transitions will also be determined. We will summarize our results as a ground-state phase diagram in a full two-dimensional parameter space. This phase diagram will make the characterization of the nonmagnetic insulating phase more approachable, although this is beyond the scope of the present paper.



Fig. 1. (Color online) (a) Schematic representation of the square-lattice Hubbard model with the isotropic nearest-neighbor hopping parameter t_1 and anisotropic next-nearest-neighbor parameters t_2 and t'_2 . (b) Isotropic square lattice at $t_2 = t'_2 = 0$. (c) Crossed square lattice at $t_2 = t'_2 = t_1$. (d) Isotropic triangular lattice at $t_1 = t_2$ and $t'_2 = 0$. The arrows represent the directions of the electron spins. The sublattices are indicated by different colors.

2. Model and Method

We consider the frustrated Hubbard model defined on the two-dimensional square lattice at half filling as illustrated in Fig. 1. The Hamiltonian is given by

$$H = -t_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} - t_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} - t'_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle'} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma}, \quad (1)$$

where $c_{i\sigma}^{\dagger}$ is the creation operator of an electron with spin σ at site *i* and $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma}$. $\langle i, j \rangle$ indicates the nearest-neighbor bonds with an isotropic hopping parameter t_1 , and $\langle \langle i, j \rangle \rangle$ and $\langle \langle i, j \rangle \rangle'$ indicate the next-nearest-neighbor bonds with anisotropic hopping parameters t_2 and t'_2 , respectively [see Fig. 1(a)]. *U* is the on-site Coulomb repulsion between electrons and μ is the chemical potential maintaining the system at half filling. In the large-*U* limit, the model can be mapped onto the frustrated spin-1/2 Heisenberg model

$$H = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} S_i \cdot S_j + J_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} S_i \cdot S_j + J'_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle'} S_i \cdot S_j \quad (2)$$

in the second-order perturbation of the hopping parameters with $S_i = \sum_{\alpha,\beta} c_{i\alpha}^{\dagger} \sigma_{\alpha\beta} c_{i\beta}/2$, where $\sigma_{\alpha\beta}$ is the vector of Pauli matrices. The exchange coupling constants are given by $J_1 = 4t_1^2/U$, $J_2 = 4t_2^2/U$, and $J'_2 = 4t_2'^2/U$ for the lattice shown in Fig. 1(a). We will compare our results of the Hubbard model in the strong correlation regime with those of the frustrated Heisenberg model, for which related studies have been carried out.

We treat a wide parameter space of $0 \le t_2/t_1 \le 1$ and $0 \le t'_2/t_1 \le 1$, including three limiting cases: (i) at $t_2 = t'_2 = 0$ [square lattice, see Fig. 1(b)], where the Néel order is realized, (ii) at $t_2 = t'_2 = t_1$ [crossed square lattice, see



Fig. 2. (Color online) Left: twelve-site square-lattice cluster used as a reference system in our analysis. Right: equivalent triangular-lattice cluster, where the three sites 1, 2, and 3 form an equilateral triangle. The anisotropic triangular lattice is defined as $t'_2 = 0$ and $t_1 \neq t_2$.

Fig. 1(c)], where the collinear order is realized, and (iii) at $t_2 = t_1$ and $t'_2 = 0$ [triangular lattice, see Fig. 1(d)], where the 120° spiral order is realized. We will calculate how the above three ordered phases change when the hopping parameters are varied in the ranges $0 \le t_2 \le t_1$ and $0 \le t'_2 \le t_1$.

We employ the VCA, which is a quantum cluster method based on SFT,^{61–63)} where the grand potential Ω of the original system is given by a functional of the self-energy. By restricting the trial self-energy to that of the reference system Σ' , we obtain the grand potential in the thermodynamic limit as

$$\Omega[\Sigma'] = \Omega' + \operatorname{Tr} \ln(G_0^{-1} - \Sigma')^{-1} - \operatorname{Tr} \ln G', \qquad (3)$$

where Ω' and G' are the exact grand potential and Green function of the reference system, respectively, and G_0 is the noninteracting Green function. The short-range electron correlations within the cluster of the reference system are taken into account exactly.

The advantage of the VCA is that the spontaneous symmetry breaking can be treated within the framework of the theory. Here, we introduce the Weiss fields for magnetic orderings as variational parameters. The Hamiltonian of the reference system is then given by $H' = H + H_N + H_C + H_S$ with

$$H_{\rm N} = h'_{\rm N} \sum_{i} e^{i \mathcal{Q}_{\rm N} \cdot \mathbf{r}_i} S_i^z, \tag{4}$$

$$H_{\rm C} = h_{\rm C}' \sum_{i} e^{i \mathcal{Q}_{\rm C} \cdot \mathbf{r}_i} S_i^z, \tag{5}$$

$$H_{\rm S} = h'_{\rm S} \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_i} \cdot \boldsymbol{S}_i, \tag{6}$$

where $h'_{\rm N}$, $h'_{\rm C}$, and $h'_{\rm S}$ are the strengths of the Weiss fields for the Néel, collinear, and spiral orders, respectively. The wave vectors are defined as $Q_{\rm N} = (\pi, \pi)$ for the Néel order and $Q_{\rm C} = (\pi, 0)$ or $(0, \pi)$ for the collinear order. For the spiral order, the unit vectors e_{a_i} are rotated by 120° to each other, where a_i (= 1, 2, 3) is the sublattice index of site *i*. The variational parameter is optimized on the basis of the variational principle $\partial \Omega / \partial h' = 0$ for each magnetic order. The solution with $h' \neq 0$ corresponds to the ordered state.

We use the twelve-site cluster shown in Fig. 2 as the reference system. This cluster is convenient because we can treat the two-sublattice states (Néel and collinear states) with an equal number of up and down spins and, at the same time, the three-sublattice state (spiral state) with an equal number of three sublattice sites. Note that longer-period phases such



Fig. 3. (Color online) (a) Calculated ground-state phase diagram of our model at $U/t_1 = 60$ in the $(t_2/t_1, t'_2/t_1)$ plane and (b) converted phase diagram in the $(J_2/J_1, J'_2/J_1)$ plane. The uncolored region corresponds to the nonmagnetic insulating phase. The transition to the collinear phase is of the first order (or discontinuous) and the transitions to the Néel and spiral phases are of the second order (or continuous). The phases along dashed lines (i), (ii), and (iii) shown in (a) are circumstantiated in Fig. 4.

as a spiral phase mentioned in a different system⁵³) and incommensurate ordered phases are difficult to treat in the present approach.

3. Results of Calculations

3.1 Strong correlation regime

First, let us discuss the phase diagram of our model in the strong correlation regime $U/t_1 = 60$. The result is shown in Fig. 3, where the result for our Hubbard model in the $(t_2/t_1, t'_2/t_1)$ plane as well as the same result converted to the Heisenberg model parameters $(J_2/J_1, J'_2/J_1)$ are shown. We find three ordered phases: the Néel ordered phase around $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (0, 0)$, the collinear ordered phase around $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (1, 1)$, and the spiral ordered phase around $(t_2/t_1, t'_2/t_1) = (1, 0)$ and (0, 1). The nonmagnetic insulating phase, which is absent in the classical Heisenberg model (see Appendix A), appears in an intermediate region between the three ordered phases. Thus, the quantum fluctuations in the frustrated spin degrees of freedom are essential in the emergence of the nonmagnetic insulating phase. As shown below, the phase transition to the collinear phase is of the first order (or discontinuous) and the phase transitions to the Néel and spiral phases are of the second order (or continuous). This phase diagram is determined on the basis of the calculated ground-state energies $E = \Omega + \mu$ (per site) and magnetic order parameters M (per site) defined as $M_{\rm N} = (2/L) \sum_{i} e^{i Q_{\rm N} \cdot r_i} \langle S_i^z \rangle$ for the Néel order, $M_{\rm C} =$ $(2/L) \sum_{i} e^{i Q_{\rm C} \cdot r_i} \langle S_i^z \rangle$ for the collinear order, and $M_{\rm S} =$ $(2/L) \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_i} \cdot \langle \boldsymbol{S}_i \rangle$ for the spiral order, where $\langle \cdots \rangle$ stands for the ground-state expectation value and L is the number of sites in the system. In the following, we will circumstantiate

the obtained phases, particularly along lines (i), (ii), and (iii) drawn in Fig. 3(a), whereby we will discuss some details of our calculated results in comparison with other studies.

Along line (i): The results are shown in the left panels of Fig. 4, where we assume $t_2 = t'_2$. At $t_2 = 0$, the ground state is the Néel order, and with increasing t_2 , the energy of the Néel order gradually approaches the energy of the nonmagnetic state. At $t_2/t_1 = 0.73$, the energy of the Néel order continuously reaches the energy of the nonmagnetic state and the Néel order disappears. The calculated order parameter indicates a continuous phase transition. At $t_2/t_1 = 1$, on the other hand, the ground state is the collinear order. The ground-state energy of the collinear order increases with decreasing t_2 , and at $t_2/t_1 = 0.79$, it crosses to the nonmagnetic state, resulting in a discontinuous phase transition, as indicated by the calculated order parameter. The nonmagnetic insulating state thus appears at $0.73 < t_2/t_1 <$ 0.79, which corresponds to the region $0.53 < J_2/J_1 < 0.63$ in the Heisenberg model parameters. In comparison with previous studies on the J_1 - J_2 square-lattice Heisenberg model, which have estimated the transition point between the Néel and nonmagnetic phases to be at $J_2/J_1 = 0.40-$ 0.44,^{17,22,24,31,32)} our result slightly overestimates the stability of the Néel order. This overestimation may be caused by the cluster geometry used in our calculations; if we use the 2×2 site cluster as the reference system, the transition occurs at $J_2/J_1 = 0.42^{36}$, which is in good agreement with the previous studies. The transition point between the collinear and nonmagnetic phases, on the other hand, has been estimated to be at $J_2/J_1 = 0.59-0.62$,^{17,22,24,32} which is in good agreement with our result.

Along line (ii): The results are shown in the middle panels of Fig. 4, where we assume $t'_2 = 0$. With increasing t_2 from $t_2 = 0$, at which the ground state is the Néel order, the energy of the Néel order gradually approaches the energy of the nonmagnetic state, and at $t_2/t_1 = 0.88$, the Néel order disappears continuously. The calculated order parameter indicates the continuous phase transition. At $t_2/t_1 = 1$, on the other hand, the ground state is the spiral order, although the energy difference between the spiral and nonmagnetic states is very small [see the inset of Fig. 4(c)] due to the strong geometrical frustration of the triangular lattice. With decreasing t_2 from $t_2/t_1 = 1$, the ground-state energy of the spiral order increases gradually and approaches the energy of the nonmagnetic state, and at $t_2/t_1 = 0.89$, the spiral order disappears continuously, in agreement with the calculated order parameter. Thus, the nonmagnetic phase appears in a very narrow region of $0.88 < t_2/t_1 < 0.89$. The corresponding Heisenberg model parameters at which the Néel and spiral orders disappear are around $J_2/J_1 = 0.79$. The previous studies for the anisotropic triangular-lattice Heisenberg model^{42,44)} have given values around $J_2/J_1 =$ 0.80-0.87 for the transition point, which are in good agreement with our result.

Along line (iii): The results are shown in the right panels of Fig. 4, where we assume $t_2 = t_1$. At $t'_2 = 0$, the ground state is the spiral order, although the energy difference from the nonmagnetic state is very small [see the inset of Fig. 4(e)]. With increasing t'_2 , the energy of the spiral order gradually approaches the energy of the nonmagnetic state, and at $t'_2/t_1 = 0.34$, the spiral order disappears continuously,



Fig. 4. (Color online) Calculated ground-state energies (upper panels) and order parameters (lower panels) for the Néel, collinear, spiral, and nonmagnetic insulating phases as a function of t_2/t_1 or t'_2/t_1 . The left, middle, and right panels correspond to lines (i), (ii), and (iii) in Fig. 3(a), where we assume $t_2 = t'_2$, $t'_2 = 0$, and $t_2 = t_1$, respectively. The inset in (c) and (e) displays the energy difference between the spiral and nonmagnetic insulating phases ΔE , and other insets enlarge the region near the phase boundary.



Fig. 5. (Color online) Calculated ground-state phase diagrams of our model in the $(t_2/t_1, t'_2/t_1)$ plane at (a) $U/t_1 = 10$, (b) $U/t_1 = 6$, and (c) $U/t_1 = 2$. The uncolored regions in (a) and (b) correspond to the nonmagnetic insulating phase. The phases along dashed lines (i), (ii), and (iii) shown in (a) are circumstantiated in Fig. 6.

in agreement with the calculated order parameter. On the other hand, with decreasing t'_2 from $t'_2/t_1 = 1$, at which the collinear order is stable, the ground-state energy of the collinear order increases and crosses to the nonmagnetic state at $t'_2/t_1 = 0.59$. The transition is thus discontinuous, in agreement with the calculated order parameter. The nonmagnetic state therefore appears at $0.34 < t'_2/t_1 < 0.59$,

which corresponds to the region $0.11 < J'_2/J_1 < 0.34$ if we use the Heisenberg model parameters. To our knowledge, no comparable calculations have been made for the frustrated Heisenberg model in this parameter region.

3.2 Intermediate to weak correlation regime

Next, let us discuss the phase diagram of our model in the intermediate to weak correlation regime. The results at $U/t_1 = 10, 6$, and 2 are shown in Fig. 5. The detailed results for the calculated single-particle gap and order parameters are also shown in Fig. 6 along lines (i), (ii), and (iii) defined above.

At $U/t_1 = 10$, we find that the results are qualitatively similar to those at $U/t_1 = 60$, except for the transition between the Néel and spiral orders: the nonmagnetic insulating phase appears between these orders at $U/t_1 = 60$ but a direct first-order transition occurs at $U/t_1 = 10^{54,55}$ with a double minimum structure in the grand potential. The nonmagnetic insulating phase appears at $0.71 < t_2/t_1 < 0.84$ along line (i), which is in good agreement with the previous studies,^{34,36} where the values $t_2/t_1 = 0.70-0.77$ for the transition between the Néel and nonmagnetic phases and $t_2/t_1 = 0.82-0.85$ for the transition between the collinear and nonmagnetic phases were reported. The nonmagnetic phase also appears at $0.42 < t'_2/t_1 < 0.64$ along line (iii).

At $U/t_1 = 6$, we find that the spiral phase disappears and a paramagnetic metallic phase appears in the triangular lattice geometry at $(t_2/t_1, t'_2/t_1) \simeq (1, 0)$ or (0, 1). The nonmagnetic insulating phase appears at $0.66 < t_2/t_1 < 0.86$ along line (i), the region of which becomes wider with decreasing value of U/t_1 from 60 to 10 and 6, which is again in good agreement with the previous studies.^{33,34} The region of the nonmagnetic insulating phase also becomes wider along line (iii), which occurs between the collinear and paramagnetic metallic phases. Along line (ii), the nonmagnetic



Fig. 6. (Color online) Calculated results for the order parameters *M* (pink, green, and red dots) of the Néel, collinear, and spiral phases and the single-particle gap Δ/t_1 (black crosses) at $U/t_1 = 10$ (upper panels), $U/t_1 = 6$ (middle panels), and $U/t_1 = 2$ (lower panels). The left, middle, and right panels correspond to the lines (i), (ii), and (iii) defined in Fig. 5(a), where we assume $t_2 = t'_2$, $t'_2 = 0$, and $t_2 = t_1$, respectively.

insulating phase with a small charge gap appears again, which is between the Néel and paramagnetic metallic phases.^{54,55)}

At $U/t_1 = 2$, the paramagnetic metallic phase overwhelms the collinear and nonmagnetic insulating phases, retaining only the Néel ordered phase around $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0$. Within the Néel phase, the charge gap opens only at $0 < t_2/t_1 <$ 0.16 and the metallic Néel ordered phase appears at 0.16 $< t_2/t_1 < 0.41$ along line (i) and at 0.16 $< t_2/t_1 < 0.47$ along line (ii). The perfect Fermi surface nesting at $t_2/t_1 =$ $t'_2/t_1 = 0$ and its deformation away from $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0$ are responsible for these results.³⁴⁾ The generalized magnetic susceptibility $\chi_0(q)$ calculated in the noninteracting limit of our model [Eq. (1)] explains this result (see Appendix B). The transition between the Néel ordered metallic phase and the paramagnetic metallic phase is continuous along line (i) and discontinuous along line (ii).

4. Summary

We have used the VCA based on SFT to study the twodimensional frustrated Hubbard model at half filling with the isotropic nearest-neighbor and anisotropic next-nearestneighbor hopping parameters. We have particularly focused on the effect of geometrical frustration on the spin degrees of freedom of the model in a wide parameter space including square, crossed-square, and triangular lattices in a wide range of the interaction strength at zero temperature. We have thereby investigated the metal–insulator transition, the magnetic orders, and the emergence of the nonmagnetic insulating phase, although the phases with incommensurate orders or with longer-period orders than the cluster size used have not been taken into account owing to the limitation of the VCA. We have also calculated the ground-state phase diagram of the corresponding classical Heisenberg model as well as the generalized magnetic susceptibility in the noninteracting limit.

We have thus determined the ground-state phase diagram of the model and found that, in the strong correlation regime, magnetic phases with the Néel, collinear, and spiral orders appear in the parameter space, and a nonmagnetic insulating phase, caused by the effect of quantum fluctuations in the frustrated spin degrees of freedom, emerges in the wide parameter region between these three ordered phases. We have also found that the phase transition from the Néel and spiral orders to the nonmagnetic phase is continuous (or a second-order transition), whereas the transition from the collinear order to the nonmagnetic phase is discontinuous (or a first-order transition). We have compared our results with the results of the corresponding Heisenberg model calculations that have been made so far and found that the agreement is good whenever the comparison is possible. We have also found that, in the intermediate correlation regime, the paramagnetic metallic phase begins to appear in the triangular lattice geometry, which overwhelms the collinear and nonmagnetic insulating phases in the weak correlation regime, retaining only the Néel ordered phase in the square



Fig. A·1. (Color online) Calculated ground-state phase diagram of the corresponding classical Heisenberg model.

lattice geometry. We hope that our results for the phase diagram obtained in the wide parameter space will encourage future studies on the characterization of the nonmagnetic insulating phase as well as on its experimental relevance.

Acknowledgments

We thank S. Miyakoshi for useful discussions. T.K. acknowledges support from a JSPS Research Fellowship for Young Scientists. This work was supported in part by a Grant-in-Aid for Scientific Research (No. 26400349) from the Japan Society for the Promotion of Science.

Appendix A: Ground-State Phase Diagram of the Classical Heisenberg Model

Here, we present the ground-state phase diagram of the classical Heisenberg model, which is defined as in Eq. (2) but its quantum spins S_i are replaced by the classical vectors \tilde{S} , so that quantum fluctuations of the system are completely suppressed although the frustrative features in the spin degrees of freedom are present. The Hamiltonian is given by $H = \sum_q J(q) \tilde{S}_{-q} \cdot \tilde{S}_q$ in momentum space, where

$$J(q) = J_1(\cos q_x + \cos q_y) + J_2 \cos(q_x + q_y) + J'_2 \cos(q_x - q_y).$$
(A.1)

The ground states of the system are calculated⁶⁴ and the phase diagram is obtained as shown in Fig. A·1. We find that the magnetically ordered ground states appear in the entire parameter space examined, which include the Néel order $[\mathbf{q} = (\pi, \pi)]$, collinear order $[\mathbf{q} = (\pi, 0)]$, and spiral orders $[\mathbf{q} = (q, q) \text{ and } (q', -q') \text{ with } q = \cos^{-1}(-J_1/2J_2) \text{ and } q' = \cos^{-1}(-J_1/2J_2')]$. Therefore, comparing with the results given in the main text, we may conclude that the quantum fluctuations in the geometrically frustrated spin degrees of freedom are essential in the emergence of the nonmagnetic insulating phase discussed in the main text.

Appendix B: Generalized Susceptibility in the Noninteracting Limit

Here, we present the generalized magnetic susceptibility (or Lindhard function) at zero frequency, $^{65-67)}$

$$\chi_0(q) = \frac{1}{L} \sum_k \frac{f(\epsilon_k) - f(\epsilon_{k+q})}{\epsilon_{k+q} - \epsilon_k}, \qquad (B.1)$$

calculated for our model [Eq. (1)] in the noninteracting limit, where ϵ_k is the corresponding noninteracting band disperson



Fig. B·1. (Color online) Calculated generalized magnetic susceptibility defined in Eq. (B·1) at (a) $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0.0$, (b) $t_2/t_1 = 1.0$, $t'_2/t_1 = 0.0$, (c) $t_2/t_1 = 1.0$, $t'_2/t_1 = 0.8$, and (d) $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 1.0$. The corresponding Fermi surface is shown in each panel.

and $f(\epsilon)$ is the Fermi function. The calculated results at temperature $0.01t_1$ are shown in Fig. B·1, where we find that a diverging behavior appears only at $q = (\pi, \pi)$ in Fig. B·1(a) due to perfect Fermi surface nesting, which yields the Néel ordered state at $t_2/t_1 = t'_2/t_1 = 0.0$ in the presence of a small but finite interaction strength *U*. There are characteristic features of $\chi_0(q)$ but no other diverging behaviors are found, indicating the absence of other magnetic orderings in the weak correlation limit.

- 1) L. Balents, Nature (London) 464, 199 (2010).
- 2) P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, Rev. Mod. Phys. 78, 17 (2006).
- 3) P. Chandra and B. Doucot, Phys. Rev. B 38, 9335(R) (1988).
- 4) S. Sachdev and R. N. Bhatt, Phys. Rev. B 41, 9323 (1990).
- 5) M. J. de Oliveira, Phys. Rev. B 43, 6181 (1991).
- 6) A. V. Chubukov and T. Jolicoeur, Phys. Rev. B 44, 12050(R) (1991).
- 7) J. Oitmaa and Z. Weihong, Phys. Rev. B 54, 3022 (1996).
- 8) M. E. Zhitomirsky and K. Ueda, Phys. Rev. B 54, 9007 (1996).
- A. E. Trumper, L. O. Manuel, C. J. Gazza, and H. A. Ceccatto, Phys. Rev. Lett. 78, 2216 (1997).
- R. R. P. Singh, Z. Weihong, C. J. Hamer, and J. Oitmaa, Phys. Rev. B 60, 7278 (1999).
- 11) L. Capriotti and S. Sorella, Phys. Rev. Lett. 84, 3173 (2000).
- L. Capriotti, F. Becca, A. Parola, and S. Sorella, Phys. Rev. Lett. 87, 097201 (2001).
- 13) G. M. Zhang, H. Hu, and L. Yu, Phys. Rev. Lett. 91, 067201 (2003).
- 14) K. Takano, Y. Kito, Y. Ono, and K. Sano, Phys. Rev. Lett. 91, 197202 (2003).
- J. Sirker, Z. Weihong, O. P. Sushkov, and J. Oitmaa, Phys. Rev. B 73, 184420 (2006).
- 16) M. Mambrini, A. Läuchli, D. Poilblanc, and F. Mila, Phys. Rev. B 74, 144422 (2006).
- R. Darradi, O. Derzhko, R. Zinke, J. Schulenburg, S. E. Krüger, and J. Richter, Phys. Rev. B 78, 214415 (2008).
- 18) L. Isaev, G. Ortiz, and J. Dukelsky, Phys. Rev. B 79, 024409 (2009).
- 19) K. S. D. Beach, Phys. Rev. B 79, 224431 (2009).
- 20) J. Richter and J. Schulenburg, Eur. Phys. J. B 73, 117 (2010).
- 21) J. Reuther and P. Wölfle, Phys. Rev. B 81, 144410 (2010).

- 22) J. F. Yu and Y. J. Kao, Phys. Rev. B 85, 094407 (2012).
- 23) L. Wang, Z. C. Gu, F. Verstraete, and X. G. Wen, arXiv:1112.3331.
- 24) H.-C. Jiang, H. Yao, and L. Balents, Phys. Rev. B 86, 024424 (2012).
- 25) F. Mezzacapo, Phys. Rev. B 86, 045115 (2012).
- 26) T. Li, F. Becca, W. J. Hu, and S. Sorella, Phys. Rev. B 86, 075111 (2012).
- 27) L. Wang, D. Poilblanc, Z. C. Gu, X. G. Wen, and F. Verstraete, Phys. Rev. Lett. 111, 037202 (2013).
- 28) W. J. Hu, F. Becca, A. Parola, and S. Sorella, Phys. Rev. B 88, 060402 (2013).
- 29) R. L. Doretto, Phys. Rev. B 89, 104415 (2014).
- 30) Y. Qi and Z. C. Gu, Phys. Rev. B 89, 235122 (2014).
- S.-S. Gong, W. Zhu, D. N. Sheng, O. I. Motrunich, and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. 113, 027201 (2014).
- 32) S. Morita, R. Kaneko, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 84, 024720 (2015).
- 33) T. Mizusaki and M. Imada, Phys. Rev. B 74, 014421 (2006).
- 34) A. H. Nevidomskyy, C. Scheiber, D. Sénéchal, and A.-M. S. Tremblay, Phys. Rev. B 77, 064427 (2008).
- 35) Z.-Q. Yu and L. Yin, Phys. Rev. B 81, 195122 (2010).
- 36) S. Yamaki, K. Seki, and Y. Ohta, Phys. Rev. B 87, 125112 (2013).
- P. Sindzingre, P. Lecheminant, and C. Lhuillier, Phys. Rev. B 50, 3108 (1994).
- 38) J. Merino, R. H. McKenzie, J. B. Marston, and C. H. Chung, J. Phys.: Condens. Matter 11, 2965 (1999).
- 39) Z. Weihong, R. H. McKenzie, and R. R. P. Singh, Phys. Rev. B 59, 14367 (1999).
- 40) A. E. Trumper, Phys. Rev. B 60, 2987 (1999).
- 41) S. Yunoki and S. Sorella, Phys. Rev. B 74, 014408 (2006); D. Heidarian, S. Sorella, and F. Becca, Phys. Rev. B 80, 012404 (2009).
- M. Q. Weng, D. N. Sheng, Z. Y. Weng, and R. J. Bursill, Phys. Rev. B 74, 012407 (2006); A. Weichselbaum and S. R. White, Phys. Rev. B 84, 245130 (2011).
- 43) O. A. Starykh and L. Balents, Phys. Rev. Lett. 98, 077205 (2007).
- 44) R. F. Bishop, P. H. Y. Li, D. J. J. Farnell, and C. E. Campbell, Phys. Rev. B 79, 174405 (2009).
- 45) J. Reuther and R. Thomale, Phys. Rev. B 83, 024402 (2011).

- 46) P. Hauke, T. Roscilde, V. Murg, J. Cirac, and R. Schmied, New J. Phys. 13, 075017 (2011).
- 47) P. Hauke, Phys. Rev. B 87, 014415 (2013).
- 48) J. Merino, M. Holt, and B. J. Powell, Phys. Rev. B 89, 245112 (2014).
- 49) H. Morita, S. Watanabe, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 71, 2109 (2002).
- 50) P. Sahebsara and D. Seńećhal, Phys. Rev. Lett. 97, 257004 (2006).
- 51) T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. Inoue, Phys. Rev. B 77, 214505 (2008).
- 52) L. F. Tocchio, A. Parola, C. Gros, and F. Becca, Phys. Rev. B 80, 064419 (2009).
- 53) L. F. Tocchio, H. Feldner, F. Becca, R. Valenti, and C. Gros, Phys. Rev. B 87, 035143 (2013).
- 54) A. Yamada, Phys. Rev. B 89, 195108 (2014).
- 55) M. Laubach, R. Thomale, C. Platt, W. Hanke, and G. Li, Phys. Rev. B 91, 245125 (2015).
- 56) R. V. Mishmash, J. R. Garrison, S. Bieri, and C. Xu, Phys. Rev. Lett. 111, 157203 (2013).
- 57) R. Kaneko, S. Morita, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 83, 093707 (2014).
- 58) P. H. Y. Li, R. F. Bishop, and C. E. Campbell, Phys. Rev. B 91, 014426 (2015).
- 59) Z. Zhu and S. R. White, Phys. Rev. B 92, 041105(R) (2015).
- 60) W.-J. Hu, S.-S. Gong, W. Zhu, and D. N. Sheng, Phys. Rev. B 92, 140403(R) (2015).
- M. Potthoff, M. Aichhorn, and C. Dahnken, Phys. Rev. Lett. 91, 206402 (2003).
- M. Potthoff, Eur. Phys. J. B 32, 429 (2003); M. Potthoff, Eur. Phys. J. B 36, 335 (2003).
- 63) C. Dahnken, M. Aichhorn, W. Hanke, E. Arrigoni, and M. Potthoff, Phys. Rev. B 70, 245110 (2004).
- 64) J. M. Luttinger and L. Tisza, Phys. Rev. 70, 954 (1946).
- 65) J. E. Hirsch, Phys. Rev. B **31**, 4403 (1985).
- 66) N. Bulut, D. J. Scalapino, and S. R. White, Phys. Rev. B 47, 2742 (1993).
- 67) A. Sherman and M. Schreiber, Phys. Rev. B 76, 245112 (2007).

Mott transition and magnetism of the triangular-lattice Hubbard model with next-nearest-neighbor hopping

Kazuma Misumi, Tatsuya Kaneko, and Yukinori Ohta

Department of Physics, Chiba University, Chiba 263-8522, Japan (Received 5 May 2016; revised manuscript received 12 January 2017; published 13 February 2017)

The variational cluster approximation is used to study the isotropic triangular-lattice Hubbard model at half filling, taking into account the nearest-neighbor (t_1) and next-nearest-neighbor (t_2) hopping parameters for magnetic frustrations. We determine the ground-state phase diagram of the model. In the strong-correlation regime, the 120° Néel- and stripe-ordered phases appear, and a nonmagnetic insulating phase emerges in between. In the intermediate correlation regime, the nonmagnetic insulating phase expands to a wider parameter region, which goes into a paramagnetic metallic phase in the weak-correlation regime. The critical phase boundary of the Mott metal-insulator transition is discussed in terms of the van Hove singularity evident in the calculated density of states and single-particle spectral function.

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.075124

I. INTRODUCTION

The physics of geometrical frustration in strongly correlated electron systems has long attracted much attention [1-3]. In particular, the possible absence of magnetic long-range orders at zero temperature in the Heisenberg and Hubbard models defined on frustrated lattices, or the realization of a spin-liquid phase as an exotic state of matter, has been one of the major issues in this field. The Mott metal-insulator transition is also a fundamental phenomenon in the field of strongly correlated electron systems [4,5], which has attracted much experimental and theoretical interest as well. As one of the simplest models with geometrical frustration and Mott transition, we therefore study the Hubbard model at half filling defined on the triangular lattice in this paper, where not only the nearest-neighbor hopping parameters but also the next-nearest-neighbor ones are included.

Much effort has so far been devoted in the study of the triangular-lattice Hubbard model with *anisotropic* nearest-neighbor hopping parameters [6–14], which was motivated by experimental findings of possible spin-liquid states in some organic Mott insulators such as κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ [15–18] and EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ [19,20]. The triangular-lattice Heisenberg model with the anisotropic exchange interactions has also been studied to find a variety of ordered phases such as Néel and spiral orders, as well as the quantum disordered (or spin-liquid) phases in between [21–23].

However, to the best of our knowledge, the *isotropic* triangular-lattice Hubbard model with both the nearest-neighbor (t_1) and next-nearest-neighbor (t_2) hopping parameters has not yet been addressed, the study of which will therefore provide useful information on the physics of magnetic frustrations and Mott metal-insulator transition in strongly correlated electron systems.

The isotropic Heisenberg model with the nearest-neighbor (J_1) and next-nearest-neighbor (J_2) exchange interactions, which may be derived by the second-order perturbation of the above-mentioned Hubbard model in the strong-correlation limit, has, on the other hand, been studied much in detail, mostly from the theoretical point of view [24]. In the classical Heisenberg model where the spins are treated as classical vectors, it is known that a single phase transition occurs at

 $J_2/J_1 = 1/8$ between the three-sublattice 120° Néel-ordered state and an infinitely degenerate four-sublattice magnetically ordered state [25]. This degeneracy is lifted by quantum fluctuations, thereby selecting a two-sublattice stripe-ordered state through the so-called order-by-disorder mechanism [25–28]. One may then expect in the corresponding quantum Heisenberg model that an intermediate phase can appear near the classical critical point at $J_2/J_1 = 1/8$, for which many studies have been carried out to predict that the nonmagnetic disordered phase bordered by the 120° Néel-ordered phase at $J_2/J_1 \simeq 0.05$ –0.12 and the stripe-ordered phase at $J_2/J_1 \simeq$ 0.14-0.19 actually emerges. In particular, recent studies actually predict the emergence of either a gapless or gapped spin-liquid phase in this intermediate region [29–35]. These results of the Heisenberg model may be compared with those of our Hubbard model in the strong-correlation limit (as we see below).

In this paper, motivated by the above developments in the field, we study the triangular-lattice Hubbard model at half filling with the isotropic nearest-neighbor and next-nearestneighbor hopping parameters in its entire interaction strength. We use the variational cluster approximation (VCA), one of the quantum cluster methods based on the self-energy functional theory (SFT) [36-40], which enables us to take into account the quantum fluctuations of the model with geometrically frustrated spin degrees of freedom. We thereby calculate the grand potential of the system as a function of the Weiss fields for spontaneous symmetry breakings; here, we take the 120° Néel and stripe magnetic orders and evaluate the order parameters and critical interaction strengths. We also calculate the charge gap as well as the density of states (DOS) and single-particle spectral function using the cluster perturbation theory (CPT) [40] and determine the ground-state phase diagram of the model in its entire parameter region.

We thereby show that in the strong-correlation regime the 120° Néel- and stripe-ordered phases appear and, in between, the nonmagnetic insulating phase caused by the quantum fluctuations in the frustrated spin degrees of freedom emerges, in agreement with the Heisenberg model studies. We also show that in the intermediate-correlation regime the nonmagnetic insulating phase expands to wider parameter regions located

around $0 \le t_2/t_1 \le 0.3$ and $0.4 \le t_2/t_1 \le 1$, which go into a paramagnetic metallic phase in the weak-correlation regime via the second-order Mott transition. The characteristic behavior of the critical phase boundary of the Mott transition is discussed in terms of the van Hove singularity appearing in the calculated DOS and single-particle spectral function.

The rest of the paper is organized as follows. In Sec. II, we introduce the model and discuss the method of calculation briefly. In Sec. III A, we present our results obtained in the strong-correlation regime and compare them with those of the Heisenberg model. In Sec. III B, we present our results obtained in the intermediate- to weak-correlation regime and discuss the phase diagram of our model. The critical phase boundary of the Mott transition is also discussed. A summary of the paper is given in Sec. IV.

II. MODEL AND METHOD

We consider the triangular-lattice Hubbard model [see Fig. 1(a)] defined by the Hamiltonian

$$H = -t_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} - t_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \sum_{\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma}, \qquad (1)$$

where $c_{i\sigma}^{\dagger}(c_{i\sigma})$ creates (annihilates) an electron with spin σ at site *i*, and $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^{\dagger}c_{i\sigma}$. $\langle i, j \rangle$ indicates the nearest-neighbor bonds with the hopping parameter t_1 and $\langle \langle i, j \rangle$ indicates the next-nearest-neighbor bonds with the hopping parameter t_2 . We consider the parameter region $0 \leq t_2/t_1 \leq 1$, including two limiting cases, $t_2 = 0$ (isotropic triangular lattice) and $t_2 = t_1$. *U* is the on-site Coulomb repulsion between two electrons and μ is the chemical potential maintaining the system at half filling.

In the large-U limit, this model may be mapped onto the triangular-lattice Heisenberg model of spin-1/2 defined by the Hamiltonian

$$H = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 \sum_{\langle \langle i,j \rangle \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$$
(2)

with the exchange coupling constants of $J_1 = 4t_1^2/U$ and $J_2 = 4t_2^2/U$ for the nearest-neighbor and next-nearest-neighbor



FIG. 1. Schematic representations of (a) the triangular-lattice Hubbard model with the nearest-neighbor (t_1) and next-nearestneighbor (t_2) hopping parameters, (b) the 120° Néel order, and (c) the stripe order. The arrows represent the directions of electron spins on the A, B, and C sublattices defined by different colors.

bonds, respectively. The spin operator is given by $S_i = \sum_{\alpha\beta} c^{\dagger}_{i\alpha} \sigma_{\alpha\beta} c_{i\beta}/2$ with the vector of Pauli matrices $\sigma_{\alpha\beta}$. The results obtained for the Hubbard model [Eq. (1)] in the strong-correlation regime are compared with those of the Heisenberg model [Eq. (2)].

Let us describe the VCA briefly, which is a many-body variational method based on the SFT, where the grand potential of the system is formulated as a functional of the self-energy [36–38]. The ground state of the original system in the thermodynamic limit can thus be obtained via the calculation of the grand potential Ω of the system with the exact self-energy. Then, in the VCA, restricting the trial self-energy to the self-energy of the reference system Σ' , we obtain the approximate grand potential as

$$\Omega[\Sigma'] = \Omega' + \operatorname{Tr} \ln \left(G_0^{-1} - \Sigma' \right)^{-1} - \operatorname{Tr} \ln \left(G_0^{\prime - 1} - \Sigma' \right)^{-1},$$
(3)

where Ω' is the grand potential of the reference system, and G_0 and G'_0 are the noninteracting Green's functions of the original and reference systems, respectively. The Hamiltonian of the reference system, H', is defined below. Note that the short-range correlations within the clusters of the reference system are taken into account exactly. See Refs. [39,40] for recent reviews of the method.

The advantage of the VCA is that the spontaneous symmetry breaking can be treated within the framework of the theory, where we introduce the Weiss fields as variational parameters. In the present case, the Hamiltonian of the reference system is taken as $H' = H + H_M$ with the Weiss fields

$$H_{\rm M} = H_{120^\circ} + H_{\rm str},$$
 (4)

$$H_{120^{\circ}} = h'_{120^{\circ}} \sum_{i} \boldsymbol{e}_{a_{i}} \cdot \boldsymbol{S}_{i}, \qquad (5)$$

$$H_{\rm str} = h'_{\rm str} \sum_{i} e^{i \, \mathcal{Q}_{\rm str} \cdot \boldsymbol{r}_i} S_i^z, \tag{6}$$

where $h'_{120^{\circ}}$ and h'_{str} are the strengths of the Weiss fields for the 120° Néel- and stripe-ordered states, respectively. For the Néel order, the unit vectors e_{a_i} are rotated by 120° to each other, where a_i (=1,2,3) is the sublattice index of site *i*. For the stripe order, the wave vectors can be taken equivalently as $Q_{\text{str}} = (\pi, \pi/\sqrt{3})$, $(\pi, -\pi/\sqrt{3})$, or $(0, -2\pi/\sqrt{3})$. The variational parameters are optimized on the basis of the variational principle, i.e., $\partial \Omega/\partial h' = 0$, for each magnetic order, where the solution with $h' \neq 0$ corresponds to the ordered state.

In our VCA calculations, we use the 12-site cluster shown in Fig. 2 as the reference system. This is the best appropriate and feasible choice of the reference cluster because we can treat the two-sublattice order (stripe order) with an equal number of up- and down-spin electrons and the three-sublattice order (120° Néel order) with an equal number of the three sublattice sites $a_i = 1$, 2, and 3. The cluster-size and cluster-shape dependencies of our results are discussed in the Appendix. Note that longer period phases such as the spiral phase mentioned in a different system [11] cannot be treated in the present approach; in our analysis, we fix the pitch angle of the spiral order to be 120° (or the three-sublattice of $a_i = 1, 2, 3$) even for $t_2 \neq 0$. The charge orderings discussed in the extended



FIG. 2. (a) The reference system of the 12-site cluster used in our analysis; the three-sublattice system corresponding to the 120° Néel order (left) and the two-sublattice system corresponding to the stripe order (right). (b) The first Brillouin zone of our triangular-lattice Hubbard model: $\Gamma(0,0)$, K(4 $\pi/3$,0), and M($\pi,\pi/\sqrt{3}$).

Hubbard model with intersite Coulomb repulsions [41] are also neglected. To our knowledge, no other orders have been predicted in the present triangular-lattice Hubbard and Heisenberg models.

III. RESULTS OF CALCULATION

A. Strong-correlation regime

First, let us discuss the strong-correlation regime, $U/t_1=60$. We calculate the ground-state energies $E = \Omega + \mu$ (per site) and magnetic order parameters M defined as $M_{120^\circ} = (2/L) \sum_i e_{a_i} \langle S_i \rangle$ for the 120° Néel order and $M_{\text{str}} = (2/L) \sum_i e^i Q_{\text{str}} r_i \langle S_i^z \rangle$ for the stripe order, where $\langle \cdots \rangle$ stands for the ground-state expectation value. The results are shown in Fig. 3, where we find three phases: the 120° Néel-ordered phase around $t_2/t_1 = 0$, the stripe-ordered phase in between.

At $t_2/t_1 = 0$, the 120° Néel-ordered state has the lowest energy and with increasing t_2/t_1 it approaches the energy of the nonmagnetic disordered state gradually. Then, at $t_2/t_1 = 0.20$, the 120° Néel-ordered state disappears continuously. The calculated order parameter M_{120° also indicates the continuous (or second-order) phase transition. On the other hand, at $t_2/t_1 = 1.0$, the stripe-ordered state has the lowest energy and, with decreasing t_2/t_1 , the energy of the stripe order crosses to that of the nonmagnetic state at $t_2/t_1 = 0.50$, indicating the discontinuous (or first-order) transition between the stripe and disordered phases. The calculated order parameter $M_{\rm str}$ also disappears discontinuously at $t_2/t_1 = 0.50$.

These results may be compared with the previous studies on the J_1 - J_2 triangular-lattice Heisenberg model [29–34]. The transition point between the 120° Néel and nonmagnetic phases has been estimated to be $J_2/J_1 = 0.05-0.12$, which corresponds to $t_2/t_1 = 0.22-0.35$ of our Hubbard model parameters. A reasonable agreement is thus obtained. The transition point between the stripe and nonmagnetic phases has also been estimated to be $J_2/J_1 = 0.14-0.19$, which corresponds to $t_2/t_1 = 0.37 - 0.44$ of our Hubbard model parameters. We again find a reasonable agreement with our estimation. The orders of the phase transitions, i.e., the second order for the 120° Néel phase and the first order for the stripe phase, are also in agreement with the previous study of the Heisenberg model [31]. We may point out that the strong quantum fluctuations in the frustrated spin degrees of freedom cause this nonmagnetic phase because the classical spin model



FIG. 3. Calculated ground-state phase diagram of our model in the strong-correlation regime $(U/t_1 = 60)$. Top: the order parameters of the 120° Néel- and stripe-ordered phases. Solid (open) symbols indicate that the state is stable (metastable). Bottom: the ground-state energies (per site) of the ordered phases compared with that of the disordered phase. Inset: the enlargement of the energy difference ΔE between the 120° ordered and disordered phases.

predicts either the 120° Néel or four-sublattice ordered phase without any intermediate nonmagnetic phases [25–28].

B. Intermediate- to weak-correlation regime

Next, let us discuss the intermediate- to weak-correlation regime $0 \leq U/t_1 \leq 10$. We here calculate the total energies, order parameters, and charge gaps of the model, as well as the grand potential as a function of the Weiss fields, and summarize them as the ground-state phase diagram in the parameter space $(t_2/t_1, U/t_1)$, as shown in Fig. 4. We find four phases: the 120° Néel- and stripe-ordered phases at large U/t_1 , which are continuous to the phases at $U/t_1 = 60$ discussed above, and the nonmagnetic insulating phase in between, as well as the paramagnetic metallic phase in the weak-correlation regime. In the intermediate-correlation regime, the nonmagnetic insulating phase expands to wider parameter regions, which are around $0 \leq t_2/t_1 \leq 0.3$ and around $0.4 \leq t_2/t_1 \leq 1$. We note that the presence of the nonmagnetic insulating phase around $0 \le t_2/t_1 \le 0.3$ is in agreement with previous studies of the triangular-lattice Hubbard model at $t_2/t_1 = 0$ [12,13,42–46].

The calculated order parameters of the 120° Néel and stripe phases are shown in Fig. 5 as a function of U/t_1 for several values of t_2/t_1 . We find that the transition to the stripe-ordered phase is continuous, irrespective of t_2/t_1 , up to a large value of $U/t_1 \sim 30$, but it changes to the discontinuous transition as



FIG. 4. Calculated ground-state phase diagram of our model in the intermediate- to weak-correlation regime, which includes the 120° Néel-ordered, stripe-ordered, nonmagnetic insulating, and paramagnetic metallic phases. The circle and triangle at $U/t_1 = 60$ indicate the calculated phase boundaries of the 120° Néel order and stripe order, respectively, shown in Fig. 3.

seen in Fig. 3 at $U/t_1 = 60$. We also find that the transition to the 120° Néel-ordered phase is discontinuous at $0 < t_2/t_1 \le 0.35$ for $U/t_1 \simeq 6$ but it is continuous for larger values of U/t_1 . The transition at $U/t_1 = 60$ is also continuous (see Fig. 3). These behaviors are observed also in the calculated Weiss-field dependence of the grand potentials of our model.

The charge gap is evaluated from the total number of electrons as a function of μ (see Fig. 5) to examine the Mott metal-insulator transition of the system. We find that the transition is continuous (or second order) and the phase boundary is located around $U/t_1 \simeq 4 - 6$, as shown in Fig. 4. We note that the phase boundary decreases (shifts to a lower U/t_1 side) with increasing t_2/t_1 up to $t_2/t_1 \simeq 0.5$, but it increases for larger values of t_2/t_1 . This behavior is in contrast



FIG. 5. Calculated charge gap Δ (top) and order parameters $M_{120^{\circ}}$ and M_{str} (bottom) of our model as a function of U/t_1 .



FIG. 6. Calculated DOS of our model in the metallic state (left) and insulating state without long-range magnetic orders (right). $\eta/t_1 = 0.1$ is assumed. The vertical line in each panel indicates the Fermi level.

to that of the square-lattice Hubbard model with the nextnearest-neighbor hopping parameters, where a monotonous increase in the critical interaction strength is observed [47–49], which is due to the monotonous increase in the bandwidth of the model.

To find out the origin of this behavior, we calculate the DOS $\rho(\omega)$ and single-particle spectral function $A(\mathbf{k},\omega)$ in the paramagnetic state of the system using the CPT, which are defined as

$$\rho(\omega) = \frac{1}{L} \sum_{k} A(k, \omega), \tag{7}$$

$$A(\boldsymbol{k},\omega) = -\frac{1}{\pi} \lim_{\eta \to 0} \operatorname{Im} \mathcal{G}_{\operatorname{CPT}}(\boldsymbol{k},\omega+i\eta), \qquad (8)$$

with the CPT Green's function [40]

$$\mathcal{G}_{\text{CPT}}(\boldsymbol{k},\omega) = \frac{1}{L_c} \sum_{i,j=1}^{L_c} \mathcal{G}_{ij}(\boldsymbol{k},\omega) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot(\boldsymbol{r}_i - \boldsymbol{r}_j)}, \qquad (9)$$

where we define the $L_c \times L_c$ matrices for the cluster of size L_c as $\mathcal{G}(\mathbf{k},\omega) = [G'^{-1}(\omega) - V(\mathbf{k})]^{-1}$ with $V(\mathbf{k}) = G_0'^{-1} - G_0^{-1}$. The exact Green's function of the reference system $G'(\omega)$ is given by

$$G'_{ij}(\omega) = \langle \psi_0 | c_{i\sigma} \frac{1}{\omega - H' + E_0} c^{\dagger}_{j\sigma} | \psi_0 \rangle + \langle \psi_0 | c^{\dagger}_{j\sigma} \frac{1}{\omega + H' - E_0} c_{i\sigma} | \psi_0 \rangle, \qquad (10)$$



FIG. 7. Calculated single-particle spectral function $A(\mathbf{k},\omega)$ in the paramagnetic state of our model. The wave vector \mathbf{k} is chosen along the line connecting Γ , K, and M points of the Brillouin zone [see Fig. 2(b)]. $\eta/t_1 = 0.1$ is assumed. The noninteracting band dispersion is also shown by a thin solid curve in each of the upper panels. The Fermi level (indicated by the vertical line) is set at $\omega/t_1 = 0$.

where $|\psi_0\rangle$ and E_0 are the ground state and ground-state energy of H'.

The calculated results for the DOS and single-particle spectral function of our model are shown in Figs. 6 and 7, respectively. We find that the sharp peak appearing above the Fermi level at $t_2/t_1 = 0$, which is caused by the van Hove singularity in the triangular lattice, shifts to the lower-energy side with increasing t_2/t_1 , and at $t_2/t_1 = 0.5$, the peak position



FIG. 8. Calculated generalized magnetic susceptibility in the noninteracting limit $\chi_0(q)$ defined in Eq. (11). The corresponding Fermi surface is shown in each panel, where the first Brillouin zone is indicated by a hexagon.

coincides with the Fermi level (see Fig. 6). This situation of the high DOS at the Fermi level is energetically unstable [50], so that the band gap opens to gain in the band energy in the presence of the Hubbard interaction U. With further increasing t_2/t_1 , the peak shifts to the higher-energy side again. The Hubbard band gap is then the largest at $t_2/t_1 = 0.5$ as seen in Figs. 5 and 6. This singularity is also seen in the single-particle spectral function as the presence of the flat-band region around the K point of the Brillouin zone (see Fig. 7). This behavior thus explains why the critical interaction strength becomes small at around $t_2/t_1 \simeq 0.5$.

To confirm the absence of any magnetic instability in our model in the weak-correlation regime, we here calculate the generalized susceptibility (or Lindhard function) in the noninteracting limit, which is defined as

$$\chi_0(\boldsymbol{q}) = \frac{1}{L} \sum_{\boldsymbol{k}} \frac{f(\varepsilon_{\boldsymbol{k}}) - f(\varepsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}})}{\varepsilon_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} - \varepsilon_{\boldsymbol{k}}},\tag{11}$$

where ε_k is the corresponding noninteracting band dispersion and $f(\varepsilon)$ is the Fermi function. The calculated results at temperature $0.01t_1$ are shown in Fig. 8, where we find that, in accordance with the absence of significant Fermi-surface nesting features, no singular behaviors actually appear in $\chi_0(q)$, indicating the absence of magnetic long-range orders in the weak-correlation limit. This result supports the validity of our phase diagram shown in Fig. 4 in the weak-correlation regime.

IV. SUMMARY

We have studied the Mott metal-insulator transition and magnetism of the triangular-lattice Hubbard model at half filling in the entire region of the interaction strength, taking into account the next-nearest-neighbor hopping parameters for the effects of magnetic frustrations. We have employed the method of VCA based on the SFT, which has not been used for the present purposes. We have thereby calculated the grand potential of the system as a function of the Weiss fields for the 120° Néel and stripe magnetic orders, and have determined the order parameters. We have also calculated the DOS and single-particle spectral function as well as the charge gap of the system. These results have been summarized as the ground-state phase diagram of the system.

We have found four phases: In the strong-correlation regime, there appear (i) the 120° Néel-ordered phase in a wide parameter region around $t_2/t_1 \simeq 0$ and (ii) the stripe-ordered phase in a wide parameter region around $t_2/t_1 \simeq 1$, and, in between, (iii) the nonmagnetic insulating phase caused by the quantum fluctuations in the geometrically frustrated spin degrees of freedom emerges. The obtained phase boundaries in the strong-correlation limit have been compared with those of the corresponding Heisenberg model to find a reasonable agreement. The orders of the phase transitions of the two magnetically ordered phases have also been determined. In the intermediate-correlation regime, the nonmagnetic insulating phase expands to a wider parameter region of t_2/t_1 . Then, decreasing the interaction strength further, the system turns into (iv) the paramagnetic metallic phase in the weak-correlation regime via the second-order Mott metal-insulator transition. The characteristic behavior of the critical phase boundary of the Mott transition has also been discussed in terms of the shift in the van Hove singularity due to the presence of t_2 , as seen in the calculated DOS and single-particle spectral function.

We suggest that the phase diagram obtained here may contain different types of nonmagnetic insulator (or spinliquid) states depending on the region in the parameter space. The characterization of the states is, however, beyond the scope of the VCA approach based on the self-energy (or single-particle Green's function), for which we hope that our results will encourage future studies.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank S. Miyakoshi for enlightening discussions and K. Seki for careful reading of our manuscript. This work was supported in part by a Grant-in-Aid for Scientific Research (No. 26400349) from JSPS of Japan. T.K. acknowledges support from the JSPS Research Fellowship for Young Scientists.

APPENDIX: CLUSTER DEPENDENCE OF THE PHASE BOUNDARIES

In the VCA, or in any other quantum cluster methods, we can in principle calculate the physical quantities in the thermodynamic limit, but the calculated results necessarily depend on the size and shape of the solver cluster. Thus, the choice of the solver cluster is important in the present approach. In the main text, we have chosen the 12-site cluster shown in Fig. 2, which is the most appropriate one because it is first of all computationally feasible and also because it fits with both the three-sublattice 120° order and the two-sublattice



FIG. 9. (a) Cluster-size and cluster-shape dependencies of the phase boundaries between the 120° Néel-ordered, stripe-ordered, nonmagnetic insulating, and paramagnetic metallic phases. Unlabeled lines are the results shown in Fig. 4. (b) Schematic representations of the clusters used in the calculations; in the six-site cluster calculation, we combine two of them to reproduce the 120° Néel order.

stripe order without introducing unnecessary frustrations. However, it seems instructive to check the cluster-size and cluster-shape dependencies of our results presented in the main text.

Here, we choose several clusters [see Fig. 9(b)] that fit either with the 120° order or with the stripe order, and we calculate the phase boundaries to check the solver cluster dependence of the ground-state phase diagram shown in Fig. 4. The calculated results for the phase boundaries are shown in Fig. 9(a). We thus find that the phase boundary between the 120° Néel-ordered and nonmagnetic insulating phases is located around $0 \leq t_2/t_1 \lesssim 0.4$ in an intermediate to large $U/t_1 \gtrsim 6$ region and that the phase boundary between the stripe-ordered and nonmagnetic insulating phases is located around $0.5 \leq t_2/t_1 \leq 1$ in an intermediate to large $U/t_1 \geq 0$ region, irrespective of the appropriate choices of the solver cluster. We also find that the phase boundary of the Mott metalinsulator transition is located around $U/t_1 \simeq 4-6$ with a minimum at $t_2/t_1 \simeq 0.5$, irrespective of the choices of the solver cluster.

MOTT TRANSITION AND MAGNETISM OF THE ...

- [1] P. Anderson, Mater. Res. Bull. 8, 153 (1973).
- [2] L. Balents, Nature (London) 464, 199 (2010).
- [3] P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, Rev. Mod. Phys. 78, 17 (2006).
- [4] N. Mott, *Metal-Insulator Transitions* (Taylor & Francis, London, 1990).
- [5] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. 70, 1039 (1998).
- [6] H. Morita, S. Watanabe, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 71, 2109 (2002).
- [7] P. Sahebsara and D. Sénéchal, Phys. Rev. Lett. 97, 257004 (2006).
- [8] T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. Inoue, Phys. Rev. B 77, 214505 (2008).
- [9] T. Ohashi, T. Momoi, H. Tsunetsugu, and N. Kawakami, Phys. Rev. Lett. **100**, 076402 (2008).
- [10] L. F. Tocchio, A. Parola, C. Gros, and F. Becca, Phys. Rev. B 80, 064419 (2009).
- [11] L. F. Tocchio, H. Feldner, F. Becca, R. Valenti, and C. Gros, Phys. Rev. B 87, 035143 (2013).
- [12] A. Yamada, Phys. Rev. B 89, 195108 (2014).
- [13] M. Laubach, R. Thomale, C. Platt, W. Hanke, and G. Li, Phys. Rev. B 91, 245125 (2015).
- [14] K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 064711 (2016).
- [15] T. Komatsu, N. Matsukawa, T. Inoue, and G. Saito, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 1340 (1996).
- [16] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. 91, 107001 (2003).
- [17] Y. Kurosaki, Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. 95, 177001 (2005).
- [18] R. S. Manna, M. de Souza, A. Brühl, J. A. Schlueter, and M. Lang, Phys. Rev. Lett. **104**, 016403 (2010).
- [19] T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa, M. Tamura, and R. Kato, Phys. Rev. B 77, 104413 (2008).
- [20] M. Yamashita, N. Nakata, Y. Senshu, M. Nagata, H. M. Yamamoto, R. Kato, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Science 328, 1246 (2010).
- [21] Zheng Weihong, R. H. McKenzie, and R. R. P. Singh, Phys. Rev. B 59, 14367 (1999).
- [22] P. Hauke, T. Roscilde, V. Murg, J. Cirac, and R. Schmied, New J. Phys. 13, 075017 (2011).
- [23] P. Hauke, Phys. Rev. B 87, 014415 (2013).
- [24] A rare exception is Ba₃CoSb₂O₉, which was reported to be an almost perfect realization of a spin-1/2 equilateral triangular-lattice antiferromagnet. See, e.g., J. Ma, Y. Kamiya, T. Hong, H. B. Cao, G. Ehlers, W. Tian, C. D. Batista, Z. L. Dun, H. D. Zhou, and M. Matsuda, Phys. Rev. Lett. 116, 087201 (2016).
- [25] T. Jolicoeur, E. Dagotto, E. Gagliano, and S. Bacci, Phys. Rev. B 42, 4800 (1990).

- [26] A. V. Chubukov and T. Jolicoeur, Phys. Rev. B 46, 11137 (1992).
- [27] R. Deutscher and H. U. Everts, Z. Phys. B 93, 77 (1993).
- [28] P. Lecheminant, B. Bernu, C. Lhuillier, and L. Pierre, Phys. Rev. B 52, 6647 (1995).
- [29] L. O. Manuel and H. A. Ceccatto, Phys. Rev. B 60, 9489 (1999).
- [30] R. V. Mishmash, J. R. Garrison, S. Bieri, and C. Xu, Phys. Rev. Lett. 111, 157203 (2013).
- [31] R. Kaneko, S. Morita, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 83, 093707 (2014).
- [32] P. H. Y. Li, R. F. Bishop, and C. E. Campbell, Phys. Rev. B 91, 014426 (2015).
- [33] Z. Zhu and S. R. White, Phys. Rev. B 92, 041105 (2015).
- [34] W.-J. Hu, S.-S. Gong, W. Zhu, and D. N. Sheng, Phys. Rev. B 92, 140403 (2015).
- [35] Y. Iqbal, W.-J. Hu, R. Thomale, D. Poilblanc, and F. Becca, Phys. Rev. B 93, 144411 (2016).
- [36] M. Potthoff, M. Aichhorn, and C. Dahnken, Phys. Rev. Lett. 91, 206402 (2003).
- [37] M. Potthoff, Eur. Phys. J. B 32, 429 (2003); 36, 335 (2003).
- [38] C. Dahnken, M. Aichhorn, W. Hanke, E. Arrigoni, and M. Potthoff, Phys. Rev. B 70, 245110 (2004).
- [39] M. Potthoff, in *Strongly Correlated Systems—Theoretical Methods*, Springer Series in Solid-State Sciences Vol. 171 (Springer-Verlag, Berlin, 2012), Chap. 10, pp. 303–339.
- [40] D. Sénéchal, in Strongly Correlated Systems—Theoretical Methods, Springer Series in Solid-State Sciences Vol. 171 (Springer-Verlag, Berlin, 2012), Chap. 8, pp. 237–270.
- [41] L. F. Tocchio, C. Gros, X.-F. Zhang, and S. Eggert, Phys. Rev. Lett. 113, 246405 (2014).
- [42] P. Sahebsara and D. Sénéchal, Phys. Rev. Lett. 100, 136402 (2008).
- [43] T. Yoshioka, A. Koga, and N. Kawakami, Phys. Rev. Lett. 103, 036401 (2009).
- [44] T. Yoshioka, A. Koga, and N. Kawakami, Phys. Status Solidi B 247, 635 (2010).
- [45] H.-Y. Yang, A. M. Läuchli, F. Mila, and K. P. Schmidt, Phys. Rev. Lett. 105, 267204 (2010).
- [46] T. Shirakawa, T. Tohyama, J. Kokalj, S. Sota, and S. Yunoki, arXiv:1606.06814.
- [47] T. Mizusaki and M. Imada, Phys. Rev. B **74**, 014421 (2006).
- [48] A. H. Nevidomskyy, C. Scheiber, D. Sénéchal, and A.-M. S. Tremblay, Phys. Rev. B 77, 064427 (2008).
- [49] A. Yamada, K. Seki, R. Eder, and Y. Ohta, Phys. Rev. B 88, 075114 (2013).
- [50] P. Fazekas, *Lecture Notes on Electron Correlation and Magnetism*, Series in Modern Condensed Matter Physics Vol. 5 (World Scientific, Singapore, 1999).



Home Search Collections Journals About Contact us My IOPscience

Frustration and magnetic orderings in the square-lattice Hubbard model with anisotropic nextnearest-neighbor hopping

This content has been downloaded from IOPscience. Please scroll down to see the full text. 2015 J. Phys.: Conf. Ser. 592 012113 (http://iopscience.iop.org/1742-6596/592/1/012113) View the table of contents for this issue, or go to the journal homepage for more

Download details:

IP Address: 133.82.248.28 This content was downloaded on 04/11/2016 at 06:58

Please note that terms and conditions apply.

You may also be interested in:

Charge instabilities of the two-dimensional Hubbard model with attractive nearest neighbour
interaction
Raymond Frésard, Kevin Steffen and Thilo Kopp
Negativity in the Extended Hubbard Model under External Magnetic Field
Yang Zhen and Ning Wen-Qiang
Fermionic Concurrence in the Extended Hubbard Model
Deng Shu-Sa and Gu Shi-Jian
Algebraic Bethe ansatz for integrable extended Hubbardmodels
Anthony J Bracken, Xiang-Yu Ge, Mark D Gould et al.
Quantum fluctuations in the one dimensional doped Hubbard model
Norikazu Tomita
Physics of the Hubbard model and high temperature superconductivity
T Yanagisawa
Algebraic Bethe ansatz for integrable one-dimensional extended Hubbard models
Xiang-Yu Ge and Mark D Gould

Frustration and magnetic orderings in the squarelattice Hubbard model with anisotropic nextnearest-neighbor hopping

Kazuma Misumi, Tatsuya Kaneko and Yukinori Ohta

Department of Physics, Chiba University, Chiba 263-8522, Japan

E-mail: 12sm2124@chiba-u.jp

Abstract. Magnetic orders of the square-lattice Hubbard model with the anisotropic nextnearest-neighbor hopping parameters at half filling are studied by the variational cluster approximation based on the self-energy functional theory. We show that in the strong correlation region at zero temperature the disordered phase appears between the collinear-ordered and 120° ordered phases due to frustration in the spin degrees of freedom of the model. We also show that the phase transitions to the two ordered phases from the disordered phase are of the first order.

1. Introduction

Physics of geometrical frustration in strongly correlated electron systems has attracted much attention. In particular, magnetic orders of the triangular-lattice Hubbard and related models have been one of the major issues in this field. Here, the presence of the spin-liquid phase has been of great interest. Experimentally, the organic charge-transfer salts κ -(BEDT-TTF)₂X are a good example of such systems: the compound with $X=Cu[N(CN)_2]Cl$ displays a long-range antiferromagnetic order in its Mott-insulating phase [1, 2] and the compound with $X=Cu_2(CN)_3$ exhibits spin-liquid behaviors at low temperatures, where the bulk spin susceptibility is strongly suppressed by the effects of frustration in the spin degrees of freedom [3, 4].

The emergence of the spin-liquid phase has been studied using a number of theoretical methods for the isotropic and anisotropic triangular-lattice Hubbard models with hopping parameters t and t' and on-site Hubbard repulsion U. The isotropic and anisotropic Heisenberg models have also been studied. In the isotropic case, the 120° ordered phase was shown to be stable for the Heisenberg model in the linear spin-wave theory (LSWT) [5, 6], but it was reported that a spin-liquid phase can exist in the model when the parameters are close to the metal-insulator transition [7, 8, 9]. In the anisotropic case, the existence of the spin-liquid phase was predicted to occur in the model with the anisotropic hopping parameters t'/t < 1, which was not found by the LSWT [5, 6]; many numerical techniques were employed including the path-integral renormalization group (PIRG) method [10], dynamical mean-field theory (DMFT) [11], exact diagonalization (ED) method [12, 13], and the finite-temperature Lanczos method [14]. A wider range of t'/t was studied by the variational Monte Carlo (VMC) [15] method, which indicated possible existence of the spin-liquid phase in a large-U region. The variational cluster approximation (VCA) was also used to show that the metal-insulator transition from the

Content from this work may be used under the terms of the Creative Commons Attribution 3.0 licence. Any further distribution (cc` of this work must maintain attribution to the author(s) and the title of the work, journal citation and DOI. Published under licence by IOP Publishing Ltd 1



Figure 1. Schematic representations of the square-lattice Hubbard model with the isotropic nearest-neighbor hopping parameter t_1 and the anisotropic next-nearest-neighbor hipping parameters t_2 and t'_2 . Illustrated are (a) the isotropic triangular lattice with $t_1 = t_2 = t$ and $t'_2 = t' = 0$, (b) the anisotropic lattice with the next-nearest-neighbor hopping parameters $t_2 = t_1 = t$ and $t'_2 = t'$, and (c) the square lattice with the isotropic next-nearest-neighbor hopping parameters $t_2 = t_1 = t$ and $t'_2 = t'$, and (c) the square lattice with the isotropic next-nearest-neighbor hopping parameters $t_2 = t_1 = t$. The arrows represent the directions of the electron spins on the A, B and C sublattices defined by colors.

metallic phase to the nonmagnetic insulating phase occurs [16, 17]. The spin-liquid phase in the triangular-lattice Heisenberg model with the next-nearest-neighbor exchange couplings was also studied recently by VMC [18], where the spin-liquid phase appears between the 120° ordered phase and stripe antiferromagnetic ordered (or collinear ordered) phase.

In this paper, motivated by such developments in the field, we study the effects of frustration in the spin degrees of freedom on the magnetic behaviors of the square-lattice Hubbard model at half filling, where the anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters are included. We in particular focus on the region of strong electron correlations at a large U/t value. We employ the method of VCA based on the self-energy functional theory (SFT) [19, 20, 21], which is useful for predicting the presence of the spontaneous symmetry breaking of the model. We will thereby show that the nonmagnetic disordered phase appears between the collinear-ordered and 120°-ordered phases and that the phase transitions to the two ordered phases from the disordered phase are of the first order.

2. Model and method

The Hubbard model we consider is defined on the square lattice with the isotropic nearestneighbor hopping parameter t_1 and anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters t_2 and t'_2 , as is illustrated in Fig. 1. The Hamiltonian is given by

$$H = -t_1 \sum_{\langle i_1 j_1 \rangle, \sigma} c^{\dagger}_{i_1 \sigma} c_{j_1 \sigma} - t_2 \sum_{\langle i_2 j_2 \rangle, \sigma} c^{\dagger}_{i_2 \sigma} c_{j_2 \sigma} - t'_2 \sum_{\langle i'_2 j'_2 \rangle, \sigma} c^{\dagger}_{i'_2 \sigma} c_{j'_2 \sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow},$$

where $\langle i_1 j_1 \rangle$ indicates the nearest-neighbor bonds, and $\langle i_2 j_2 \rangle$ and $\langle i'_2 j'_2 \rangle$ indicate the nextnearest-neighbor bonds. $c_{i\sigma}$ is the annihilation operator of an electron with spin σ at site i, and $n_{i\sigma} = c^{\dagger}_{i\sigma} c_{i\sigma}$ is the number operator. U is the on-site Coulomb repulsion. In this paper, we consider the case at half filling and the large U region assuming a value $U/t_1 = 60$, where the Mott insulating phase is realized. We choose this value of U/t because we are interested in the frustration in the spin degrees of freedom of the model and want to avoid the metal-insulator transition occurring at smaller U/t values. We should moreover mention that the method of VCA cannot be applied to the Hesenberg-like spin models. We in particular consider the case at $t_1 = t_2 = t$ and $t'_2 = t'$ [see Fig. 1(b)], including the two limiting cases at $t_1 = t_2 = t$ and $t'_2 = t' = 0$ [isotropic triangular lattice, see Fig. 1(a)] and at $t_1 = t_2 = t'_2 = t = t'$ [square lattice with the isotropic next-nearest-neighbor hopping parameters, see Fig. 1(c)]. It has been reported that the 120° ordered phase is realized for the isotropic triangular lattice shown in Fig. 1(a) [7] and the collinear ordered phase is realized for the lattice shown in Fig. 1(c) [22]. In this paper, we will discuss how the above two ordered phases change when the hopping parameters $t_1 = t_2 = t$ and $t'_2 = t'$ are varied as 0 < t' < t, which has not been studied so far.

We employ the method of VCA based on the self-energy functional theory [19, 20, 21]. The advantage of VCA is that the spontaneous symmetry breaking can be treated within the framework of the theory. The stability of the ground state of the original system can be examined via the calculation of the grand potential Ω of the system from the exact self-energy. The grand potential Ω is expressed as a functional of the self-energy Σ based on the self-energy functional theory:

$$\Omega[\Sigma] = \Omega' + \operatorname{Tr} \ln(G_0^{-1} - \Sigma)^{-1} - \operatorname{Tr} \ln G',$$

where Ω' is the exact grand potential of the reference system and G_0 is the noninteracting Green function. We use the exact self-energy Σ' of the reference system, which is replaced by the Green function of the reference system $G'^{-1} = G'_0^{-1} - \Sigma'$. To investigate the spontaneous symmetry breaking in VCA, we introduce the Weiss fields as variational parameters. In the present case, the Hamiltonian of the reference system is given by $H' = H + H_{\rm tri} + H_{\rm col}$ with

$$\begin{split} H_{\text{tri}} &= h_{\text{tri}} \left[\sum_{i \in \mathcal{A}} \boldsymbol{e}_{\mathcal{A}} \cdot \boldsymbol{S}_{i} + \sum_{i \in \mathcal{B}} \boldsymbol{e}_{\mathcal{B}} \cdot \boldsymbol{S}_{i} + \sum_{i \in \mathcal{C}} \boldsymbol{e}_{\mathcal{C}} \cdot \boldsymbol{S}_{i} \right] \\ H_{\text{col}} &= h_{\text{col}} \sum_{i} e^{i \boldsymbol{Q}_{\text{col}} \cdot \boldsymbol{r}_{i}} (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow}), \end{split}$$

where e_A , e_B and e_C are the unit vectors rotated each other by 120° defined on the A, B and C sublattices, respectively, and S_i is the spin operator at site *i* [16, 17]. h_{tri} and h_{col} are the strengths of the Weiss fields for the 120° ordered and collinear ordered states, respectively. We define Q_{col} to be either $(\pi, 0)$ or $(0, \pi)$. We use the clusters of the size $L_c = 2 \times 3 = 6$ sites for calculating the 120° ordered phase and $L_c = 2 \times 2 = 4$ sites for calculating the collinear ordered phases such as the spiral phase mentioned in a different system [15] cannot be treated in the present approach.

3. Results of calculation

Figures 2 (a) and (b) show the calculated results for the grand potential $\Omega - \Omega_0$ (per site) as a function of the Weiss field, where Ω_0 is the grand potential at zero Weiss fields. We find that the grand potentials of both the 120° ordered and collinear ordered states have two minima at h = 0 and $h \neq 0$ and a maximum between the two minima, indicating that the stable point of $h_{\rm col}$ and $h_{\rm tri}$ changes discontinuously from zero to a finite value at the critical point of t'/t. More quantitatively, we find that $h_{\rm tri} \neq 0$ at t'/t < 0.214 and $h_{\rm col} \neq 0$ at t'/t > 0.589, and that the nonmagnetic disordered phase appears at $0.214 \leq t'/t \leq 0.589$. These results indicate that both of the magnetic phase transitions from the disordered phase are discontinuous, or of the first order, with respect to the parameter t'/t.

Figures 2 (c) and (d) show the calculated ground-state energies $E = \Omega + \mu$ (per site) of the 120° ordered and collinear ordered phases compared with the energy of the disordered phase as a function of t'/t. We find that the critical point of the 120° ordered phase is located at t'/t = 0.214 and that of the collinear ordered phase is located at t'/t = 0.589, and the disordered



Figure 2. Calculated results for (a) the grand potential (per site) as a function of the Weiss field $h_{\rm tri}$, (b) that of the Weiss field $h_{\rm col}$, (c) the ground-state energy (per site) of the 120° ordered phase compared with that of the disordered phase as a function of t'/t, and (d) that of the collinear ordered phase. In (a) and (b), the stationary points are marked by black dots. In (c) and (d), the inset enlarges the region near the critical point.

phase appear in-between at $0.214 \le t'/t \le 0.589$. The ground-state energies of the ordered and disordered phases cross at the critical point [see the insets of Figs. 2 (c) and (d)], indicating again that the two magnetic phase transitions are of the first order.

Finally, let us calculate the magnetic order parameters of the 120° ordered and collinear ordered phases in VCA. The order parameter M may be defined as the expectation value of the one-body operator \mathcal{O} as

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \frac{1}{L_c} \sum_{\alpha,\beta} \mathcal{O}_{\alpha\beta} \left\langle c_{\alpha}^{\dagger} c_{\beta} \right\rangle = \frac{1}{L_c} \sum_{\boldsymbol{Q}} \int_C \frac{dz}{2\pi i} \operatorname{Tr} \big[\mathcal{O}\mathcal{G}(\boldsymbol{Q}, z) \big],$$

where \mathcal{G} is the one-particle Green function $\mathcal{G} = (G_0^{-1} - \Sigma')^{-1}$ calculated in VCA and the path C in the contour integrals encloses the poles of the integrand on the real axis below the chemical potential. The one-body operator for the 120° ordered phase is defined as $\mathcal{O}_{tri} = \sum_i \boldsymbol{e}_{\alpha_i} \cdot \boldsymbol{S}_i$ for the three sublattices α_i (= A, B and C) of the triangular lattice. The one-body operator for the collinear ordered phase is defined as $\mathcal{O}_{col} = \frac{1}{2} \sum_i e^{i\boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{r}_i} (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow})$ with $\boldsymbol{Q} = (\pi, 0)$ or $(0, \pi)$.

Figure 3 shows the calculated ground-state phase diagram as a function of t'/t, where the order parameters $M_{\rm tri}$ for the 120° ordered phase and $M_{\rm col}$ for the collinear ordered phase are given. The 120° ordered phase appears at $0 \le t'/t \le 0.214$, which vanishes abruptly at t'/t = 0.214. The collinear ordered phase appears at $0.589 \le t'/t \le 1.0$, which vanishes abruptly



Figure 3. Calculated ground-state phase diagram of the square-lattice Hubbard model at half filling with the anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters, where the order parameters (or sublattice magnetizations) $M_{\rm tri}$ and $M_{\rm col}$ are shown as a function of t'/t.

at t'/t = 0.589. The disordered phase then appears in-between. The phase transitions to the two magnetic phases from the disordered phase is thus of the first order.

Note that the present Hubbard model in the strong correlation limit may be mapped onto the frustrated spin-1/2 Heisenberg model defined on the same lattices with the exchange coupling constants of $J_{ij} = 4t_{ij}^2/U$ for the bonds with the hopping amplitude t_{ij} . Assuming $J = 4t^2/U$ and $J' = 4t'^2/U$ at U/t = 60, we predict that the 120° ordered phase appears at $0 \le J'/J \le 0.045$, the collinear ordered phase appears at $0.347 \le J'/J \le 1.0$, and the nonmagnetic disordered phase appears in-between, i.e., at $0.045 \le J'/J \le 0.347$. We note that the metastable magnetic phases exist at $0.214 \le t'/t \le 0.239$ (or $0.045 \le J'/J \le 0.045$) for the 120° ordered phase. The corresponding Heisenberg-model calculations have not been carried out as far as we know, which should be done in future and compared with the present results.

4. Summary

We have employed the method of VCA based on SFT to study the effects of frustration in the spin degrees of freedom on the magnetic orders of the square-lattice Hubbard model at half filling with the anisotropic next-nearest-neighbor hopping parameters at zero temperature. We have focused in particular on the strong correlation region of the model and have shown that the disordered phase appears between the collinear-ordered and 120°-ordered phases. We have also shown that the phase transitions to the two ordered phases from the disordered phase are of the first order.

Although we have restricted ourselves to the study of the Hubbard model at $t_1 = t_2$ in this paper, the full magnetic phase diagram of the $t_1 - t_2 - t'_2$ Hubbard model in its entire parameter space needs to be clarified for future study, including the presence of the spin-liquid phase caused by the frustration in the spin degrees of freedom.

Acknowledgments

This work was supported in part by a Grant-in-Aid for Scientific Research (No. 26400349) from JSPS of Japan. T K acknowledges support from the JSPS Research Fellowship for Young

International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014 (SCES2014) IOP Publishing Journal of Physics: Conference Series **592** (2015) 012113 doi:10.1088/1742-6596/592/1/012113

Scientists.

References

- [1] Miyagawa K, Kawamoto A, Nakazawa Y and Kanoda K 1995 Phys. Rev. Lett. 75 1174.
- [2] Lefebvre S, Wzietek P, Brown S, Bourbonnais C, Jérome D, Mézière C, Fourmigué M, and Batail P 2000 Phys. Rev. Lett. 85 5420.
- [3] Shimizu Y, Miyagawa K, Kanoda K, Maesato M and Saito G 2003 Phys. Rev. Lett. 91 107001.
- [4] Manna R S, Souza de M, Brühl A, Schlueter A J and Lang M 2010 Phys. Rev. Lett. 104 016403.
- [5] Merino J, McKenzie R H, Marston J B and Chung C H 1999 J. Phys.: Condens. Matter 11 2965.
- [6] Trumper A E 1999 Phys. Rev. B 60 2987.
- [7] Sahebsara P and Sénéchal D 2008 Phys. Rev. Lett. 100 136402.
- [8] Yoshioka T, Koga A and Kawakami N 2010 Phys. Rev. Lett. 103 036401.
- [9] Yang H-Y, Läuchli A M, Mila F and Schmidt K P 2010 Phys. Rev. Lett. 105 267204.
- [10] Morita H, Watanabe S and Imada M 2002 J. Phys. Soc. Jpn. 71 2109.
- [11] Kyung B and Tremblay A-M S 2006 Phys. Rev. Lett. 97 046402.
- [12] Koretsune T, Motome Y and Furusaki A 2007 J. Phys. Soc. Jpn. 76 074719.
- [13] Clay R T, Li H and Mazumdar S 2008 Phys. Rev. Lett. 101 166403.
- [14] Kokalj J and McKenzie R H 2013 Phys. Rev. Lett. 110 206402.
- [15] Tocchio L F, Feldner H, Becca F, Valenti R and Gros C 2013 Phys. Rev. B 87 035143.
- [16] Laubach M, Thomale R, Hanke W and Li G arXiv:1401.8198.
- [17] Yamada A 2014 Phys. Rev. B 89 195108.
- [18] Kaneko R, Morita S and Imada M 2014 J. Phys. Soc. Jpn. 83 093707.
- [19] Potthoff M, Aichhorn M and Dahnken C 2003 Phys. Rev. Lett. 91 206402.
- [20] Dahnken C, Aichhorn M, Hanke W, Arrigoni E and Potthoff M 2004 Phys. Rev. B 70 245110.
- [21] Potthoff M 2003 Eur. Phys. J. B 32 429 and 36 335.
- [22] Nevidomskyy A H, Scheiber C, Sénéchal D and Tremblay A-M S 2008 Phys. Rev. B 77 064427.



理学研究科 強相関電子系理論研究室 14SD2102 三角 一真

学位論文本審査会概要

イントロダクション ・幾何学的フラストレーションに関する説明

三角格子系有機導体κ-(BEDT-TTF)₂X塩の研究紹介

フラストレート系の基底状態に関する理論的研究

・絶縁体状態における磁気秩序の解明

- ・金属絶縁体転移点付近での磁気無秩序状態の解析
- ・金属絶縁体転移に関する次近接ホッピングt₂の効果
 (②のみ)

① 2次元正方格子*t*₁-*t*₂-*t*₂'ハバード模型

② 2次元三角格子t₁-t₂ハバード模型

1. イントロダクション

フラストレーションとは?



強磁性状態







スピンが反強磁性的に 相互作用しているとき に、スピンの方向が定 まらないサイトが存在 する。

幾何学的な条件により、磁気秩序状態が実現しない格子系

→ 「

幾何学的フラストレーション」を

持つ格子系



三角格子模型とスピン液体

Andersonにより、三角格子系の基底状態として RVB状態が提唱される。

→ 長距離秩序のないスピン液体

P. W. Anderson, Mat. Res. Bull 8, 153 (1973).

スピン波理論の発展などにより、120°秩序状態 ($q = (2\pi/3, 2\pi/3)$ のスピン波状態)が基底状態と して提唱される。

→ 磁気的フラストレーションの解消





極低温においても長距離的な磁気秩序を示さない物質($(BEDT-TTF)_2X$ 塩、 $X[Pd(dmit)_2]$ 塩)が発見されたことで、三角格子系におけるスピン液体の発現の 可能性について再度注目を集めている。

κ-(BEDT-TTF)₂X塩

構造:BEDT-TTF分子の層と陰イオンXの層が積み重なり、前者が三角格子構造を 持つ分子性導体。



T. Komatsu et al., J. Phys. Soc. Jpn. 65, 1340 (1996).

κ-(BEDT-TTF)₂X塩の物性 X=Cu₂(CN)₃, Cu₂[N(CN)₂]Cl 帯磁率 NMRスペクトル



電気抵抗 10⁶ κ-(BEDT-TTF), Cu₂(CN), 10⁵ κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl 10⁴ $\rho_{dc} \left(\Omega \text{ cm}\right)$ 10³ 10² 10 10⁰ 10 0 100 200 300 Temperature (K)

S. Elsässer *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 155150 (2012).



Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).



異方的三角格子ハバードモデル





(ET)

 $X = Cu_2(CN)_3 : U/t = 7.3, t'/t = 0.83 \pm 0.08 \implies \frac{122}{Not}$

磁気秩序のない絶縁体状態 Non-Magnetic Insulator (NMI) フラストレート系の一つである三角格子構造を持つ物質におけ る磁気秩序を持たない絶縁体状態の発現が現在も議論されて いる。



関連模型を用いて、金属状態から磁気秩序のない絶縁体状態への転移を議論できないか?



- •正方格子t₁-t₂-t₂[']Hubbard模型
- •三角格子 t_1 - t_2 Hubbard模型

変分クラスター近似(VCA)による計算

2.フラストレート量子系における 基底状態の解析





変分クラスター近似(VCA)



$$t', \varepsilon, h ($$
変分パラメータ) $rac{\partial \Omega_{t,U}[\Sigma]}{\partial t'} = 0$

熱力学極限の グランドポテンシャル Ω 熱力学極限の物理量
参照系ハミルトニアン: $H' = H + H_{af} + H_{col} + H_{tri} + H_{on}$ 変分ハミルトニアン

AFM
$$H_{\mathrm{af}} = h_{\mathrm{af}} \sum_{i} e^{\mathrm{i} \boldsymbol{Q}_{\mathrm{af}} \cdot \boldsymbol{r}_{i}} (n_{i,\uparrow} - n_{i,\downarrow}) \quad \boldsymbol{Q}_{\mathrm{af}} = (\pi,\pi)$$

collinear
$$H_{col} = h_{col} \sum_{i} e^{i\mathbf{Q}_{col} \cdot \mathbf{r}_{i}} (n_{i,\uparrow} - n_{i,\downarrow}) \qquad \mathbf{Q}_{col} = (\pi, 0)$$

120° Spiral $H_{tri} = h_{tri} \left[\sum_{i \in \mathcal{A}} \mathbf{e}_{\mathcal{A}} \cdot \mathbf{S}_{i} + \sum_{i \in \mathcal{B}} \mathbf{e}_{\mathcal{B}} \cdot \mathbf{S}_{i} + \sum_{i \in \mathcal{C}} \mathbf{e}_{\mathcal{C}} \cdot \mathbf{S}_{i} \right] \qquad \mathbf{e}_{\mathcal{B}} \qquad \mathbf{e}_{\mathcal{C}}$

onsite $H_{\text{on}} = \varepsilon_{\text{on}} \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \longrightarrow$ 粒子数調整 (n = 1)





金属相から磁気無秩序な絶縁体相への転移あり

・粒子ギャップ、秩序変数(①)



粒子ギャップ、秩序変数(2)



・粒子ギャップ、秩序変数(③)









*U/t*₁を大きくすることで 金属相から無秩序絶縁体相への 転移がみられる領域が存在する



古典系との比較



量子揺らぎの導入によって、磁気無秩序な絶縁体相が発生している。



まとめ

 $t_2/t_1 = 1.0$

120°スパイラル相 ⇒ 無秩序相 ⇒ Collinear秩序相

 t_2 の増加 \Longrightarrow 金属絶縁体転移点 U_c の値減少傾向



•金属絶縁体転移

 U/t_1 を大きくする \implies 金属相から無秩序絶縁体相への転移





K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 064711 (2016).

2-2. 三角格子t₁-t₂ハバード模型 $H = -t_1 \sum c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} - t_2 \sum c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} + U \sum n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$ t_2 $\langle \langle ij \rangle \rangle$ $\langle ij \rangle$ 次近接相互作用たを導入した三角格子ハバード模型

ハイゼンベルグ模型
$$H = J_1 \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 \sum_{\langle \langle ij \rangle \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$$

古典解



先行研究(ハイゼンベルグ模型)



120°反強磁性秩序相と ストライプ反強磁性秩序相 との間に磁気秩序の出ない相 が発生している。

R. Kaneko et al., J. Phys. Soc. Jpn. 83, 093707 (2014).

・次近接相互作用を導入したときの金属絶縁体転移は?

・金属絶縁体転移点付近で磁気無秩序相が出現するのか?

⇒ VCAを用いた計算で解明する

参照系ハミルトニアン: $H' = H + H_{ m sp} + H_{ m st} + H_{ m on}$ 変分ハミルトニアン

120° 秩序
$$H_{\rm sp} = h_{\rm sp} \left[\sum_{i \in \mathcal{A}} \mathbf{e}_{\mathcal{A}} \cdot \mathbf{S}_i + \sum_{i \in \mathcal{B}} \mathbf{e}_{\mathcal{B}} \cdot \mathbf{S}_i + \sum_{i \in \mathcal{C}} \mathbf{e}_{\mathcal{C}} \cdot \mathbf{S}_i \right]$$

$$\mathbf{e}_{B}$$
 \mathbf{e}_{C}

Stripe

$$H_{\rm st} = h_{\rm st} \sum_{i} e^{i \boldsymbol{Q}_{\rm st} \cdot \boldsymbol{r}_{i}} (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow}) \qquad \boldsymbol{Q}_{\rm st} = (\pi, 0)$$

onsite

$$H_{\rm on} = \varepsilon_{\rm on} \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \longrightarrow$$
 粒子数調整 (n = 1)



左図:120°秩序 右図:Stripe秩序

-





 $0.0 \le t_2/t_1 \le 0.20 \quad (0.0 \le J_2/J_1 \le 0.04):$ 120° 秩序, 2次転移

 $0.51 \le t_2/t_1 \le 1.0 (0.26 \le J_2/J_1 \le 1.0)$: ストライプ秩序,1次転移

 $0.20 \le t_2/t_1 \le 0.51 (0.04 \le J_2/J_1 \le 0.26)$: 無秩序状態

2種の磁気秩序状態間に無秩序状態が出現

・粒子ギャップ、秩序変数



相図



- ・無秩序な絶縁体相が金属相と 磁気秩序絶縁体相の間に存在 している。
- ・金属絶縁体転移点のUの値が $0.0 \le t_2/t_1 \le 0.5$ の間で減少 している。

次近接正方格子の場合



A. H. Nevidomskyy *et al.*, Phys. Rev. B **77**, 064427 (2008).



・K点付近のバンドの形状が変化している。

・DOSのピークの位置が $t_2/t_1 = 0.5$ 付近で最もフェルミ面に近くなる。 $\implies t_2/t_1 = 0.5$ で金属状態が不安定になりやすい

まとめ

•強結合領域($U/t_1 = 60$)

 120° 反強磁性相 \Rightarrow 無秩序相 \Rightarrow ストライプ 反強磁性相

・ハバード模型(U/t₁≤10)

金属相から<mark>無秩序絶縁体相</mark>への転移が 広範囲で見られる。

 $0.0 \le t_2/t_1 \le 0.5$: 金属絶縁体転移点 U_c の値減少

・金属絶縁体転移点U_cの変化
 エネルギーバンドや状態密度の形状

⇒ 金属状態の不安定性

Phys. Rev. B に現在投稿中

K. Misumi, T. Kaneko, and Y. Ohta









幾何学的フラストレート量子系

- •正方格子*t*₁-*t*₂-*t*₂['] Hubbard模型 •三角格子*t*₁-*t*₂ Hubbard模型
- ・金属絶縁体転移点付近における非磁性な絶縁体相の出現
- ・ユニークな金属絶縁体転移の発現(後者)

フラストレート量子系の金属絶縁体転移や磁性に対して新たな知見を提供した。