

学位論文

1次元強相関電子系における静電場に対する 非線形応答に関する研究

小山 幸伸

奈良先端科学技術大学院大学

物質創成科学研究科

複雑系解析学講座

平成 18 年 2 月 27 日

目次

第1章	序論	3
1.1	研究背景と目的	3
1.2	本論文の構成	6
第2章	変分モンテカルロ法	7
2.1	変分原理	7
2.2	ハバードハミルトニアン	7
2.3	状態ベクトル	8
2.3.1	一体のハミルトニアンの基底状態 (第0近似)	8
2.3.2	変分試行関数の適用 (第1近似)	8
2.3.3	ハミルトニアンのべき乗 (第2近似)	9
2.4	変分モンテカルロ法による期待値計算	11
2.4.1	変分モンテカルロ法による期待値計算	11
2.4.2	モンテカルロサンプリング	12
2.4.3	内積計算	12
2.4.4	変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p=0$)	15
2.4.5	変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p=1$)	15
2.4.6	変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p=2$)	18
2.4.7	線形結合係数の決定	19
2.5	アクセプト比計算の高速化	20
2.5.1	$\left \frac{\langle \alpha' \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha \Psi_0 \rangle} \right ^2$ の評価	21
2.5.2	$\left \langle \alpha \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' \Psi_0 \rangle \right ^2$ の評価	23
2.5.3	1電子状態のみを変化させる利点	25
2.6	ハミルトニアンのべき乗計算の高速化	25
第3章	変分モンテカルロ法と数値厳密対角化の比較	27
3.1	相関エネルギー比	27
3.2	エネルギー期待値の ξ 依存性	30
3.3	相関関数	33
3.3.1	1次元系のスピン相関関数	33
3.3.2	1次元系の電荷相関関数	35
3.3.3	2次元系のスピン相関関数	36

3.3.4	2次元系の電荷相関関数	38
第4章	静電場印加による非線形分極効果	40
4.1	電子と静電場が結合したハバードハミルトニアン	40
4.2	状態ベクトル	41
4.2.1	一体のハミルトニアンの基底状態 (第0近似)	41
4.2.2	変分試行関数の適用 (第1近似)	41
4.3	結果	42
4.3.1	1次元	42
4.3.2	2次元	54
4.4	結論	56
第5章	結論	58

第1章 序論

1.1 研究背景と目的

低次元強相関電子系はモット絶縁体 [1]、高温超伝導 [2]、さらに本論文がテーマとする光学的性質においても巨大光学的非線型性 [3] や極めて速い緩和 [4, 5] 等の様々な興味深い性質を持ち、現在盛んに研究が行なわれている [6, 7, 8]。低次元強相関電子系においては、強い電子相関のために平均場近似が有効ではなく、さらには電子相関を摂動的に扱うフェルミ液体理論も光励起状態のような電荷数が小さい場合には有効ではないと考えられている [6, 7, 8]。そこで多体問題を取り扱うための数値計算手法が重要となる。代表的な数値解析手法として数値厳密対角化法、量子モンテカルロ法、密度行列繰り込み群および本論文の扱う変分モンテカルロ法を挙げることが出来る。以下これらの方法の特徴について述べる。

数値厳密対角化法は、数値的にシュレディンガー方程式の解を厳密に求める方法である。この方法を用いて強相関電子系の標準モデルであるハバードモデル等の多体ハミルトニアンで計算した場合、計算機資源上の制約から、現時点で最大 20 サイトのモデルしか扱うことが出来ない [9]。このように非常に小さなモデルを用いての数値解析では強相関電子系における長距離相関等の議論も困難であり、結果は有限サイズ効果の影響を大きく受ける。また強相関電子系特有の集団現象をごく少数の電子で議論する点にも問題がある。これらの問題を克服する為に電子相関効果を十分に採り入れつつ数値厳密解よりもはるかに大きな系の計算が可能な手法を検討する必要がある。

このシステムサイズ問題をクリアした手法のひとつとして量子モンテカルロ法がある。この方法では 100 サイト程度の計算が可能である。量子モンテカルロ法は、有限温度における物理量の平均値をモンテカルロ法で求めるもので、統計誤差を除けば厳密な結果が得られる。温度を下げるとモンテカルロ法の収束が悪くなり、この方法の適用は高温に限られる。さらにこの方法はモンテカルロ計算の精度が著しく悪くなる負符号問題を抱える。本論文で議論するハバードモデルにおいて、この負符号問題は 2 次元系の計算を行った際に顕著になる [10]。さらに電子間相互作用が大きい場合にもこの負符号問題がより顕著になることが知られており、このような理由から量子モンテカルロ法は 1、2 次元系共に電子相関が強い場合には統計誤差が極めて大きくなる。加えて本論文では取り扱っていないが開殻問題を解く際にもこの負符号問題が顕著になり、これは強相関系にドーピングした際の興味深い現象を調べる解析が困難になることを意味する [11]。

量子モンテカルロ法以外にも大きな系 (100 サイト程度) を扱うことができる手法として密度行列繰り込み群がある [12, 13]。この方法は比較的小さい系のハミルトニアンを厳密対角化し、これを出発点とし重要なエネルギー固有状態で張られる空間のみを考える。この空間とサイズをわずかに拡大した部分の空間の直積を考え、この空間でのハミルトニアンを厳密対角化する。これを繰り返すことにより、より大きな系を計算するという手法である。この手法は 2,3 次元系に適用するのが難しく、次元性依存性を考察するのには適さない。また、系のサイズを次第に大きくしていくことから、長い距離スケールを持つ現象は記述出来ない可能性がある。さらにドーピングした系の計算を行う場合、ドーピング濃度一定のまま繰り込みを行うことができず、この方法を適用できない。同様のことが光で電荷を注入した場合に起る可能性がある。

以上を踏まえて数値厳密解よりも大きな系を取り扱え、量子モンテカルロ法が抱える負符号問題も無く、密度行列繰り込み群ほど境界条件の影響を受けないことが期待される変分モンテカルロ法を導入した。この変分モンテカルロ法は、変分パラメータを持つ特定の波動関数 (変分関数) を仮定し、エネルギー期待値をモンテカルロ法で求める。さらにエネルギー期待値が最小となる変分パラメータを決め、この変分パラメータを持つ波動関数で基底状態を近似する。ハバードモデル等に用いられる変分関数の代表として、Gutzwiller 波動関数 [14] と Jastrow 波動関数 [15, 16] が挙げられる。Gutzwiller 波動関数 $|\Psi_G\rangle$ と Jastrow 波動関数 $|\Psi_J\rangle$ は各々、

$$\begin{aligned} |\Psi_G\rangle &= F_G |\phi\rangle, \\ |\Psi_J\rangle &= F_J |\phi\rangle, \end{aligned}$$

と表される。ここで $|\phi\rangle$ は第 0 近似状態ベクトルで、通常はハミルトニアンの一部分の基底状態をとる。また F_G と F_J は各々 Gutzwiller 因子、Jastrow 因子と呼ばれ、

$$\begin{aligned} F_G &= \exp \left(-\frac{1}{2} \sum_i \xi \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow} \right), \\ F_J &= \exp \left(-\frac{1}{2} \sum_i \xi \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow} - \frac{1}{2} \sum_{i,j,\sigma,\sigma'}^{i \neq j} \xi_{i,j} \hat{n}_{i,\sigma} \hat{n}_{j,\sigma'} \right), \end{aligned}$$

と定義される。ここで $\hat{n}_{i,\sigma} = c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$ であり、 $c_{i,\sigma}$ はサイト i 、スピン σ の電子の消滅演算子である。Gutzwiller 因子においては ξ が変分パラメータで、また Jastrow 因子においては $\xi_{i,j}, \xi$ が変分パラメータである。

変分モンテカルロ法の問題点は、特定の波動関数を仮定しているため、いずれの波動関数を採用した場合においても近似に限界があることである。Gutzwiller 因子や Jastrow 因子は、ハバードモデルにおいては、電子相関効果をうまく取り入れることが可能であり、変分モンテカルロ法を組み合わせ、幅広い問題に使われ

てきた [17, 18, 19]。しかし、いくつかの問題点も指摘されている。この問題点を克服するために、E. S. Heeb と T. M. Rice の論文 [20] に記載されたハミルトニアンへのベキ乗を Gutzwiller 状態ベクトルに組み合わせる方法で改良を試みた。これは Gutzwiller 型の状態ベクトルに 2 次までのハミルトニアンのベキ乗を作用させ、それらの線形結合をとりエネルギー期待値が最小となるように線形結合係数を決定するという手法である。E. S. Heeb と T. M. Rice による論文では第 0 近似の d 波 RVB 状態ベクトルにベキ乗を作用させた波動関数を考え、ハミルトニアンにはハイゼンベルクハミルトニアンを用いているのに対し、本研究ではハバードモデルを考察し、ハバードハミルトニアンの 1 体部分の基底状態に Gutzwiller 因子を作用させた状態ベクトルにハミルトニアンのベキ乗を作用させて線形結合を取った点が異なる点である。E. S. Heeb と T. M. Rice の論文ではハミルトニアンのベキ乗のかかった状態ベクトルを採用することで第 0 近似の”バイアス”によらない良質な解が得られると述べている。この興味深い結果を元に、本研究のハバードハミルトニアンと Gutzwiller 型波動関数に適用した。E. S. Heeb と T. M. Rice の計算においては、2 次のベキ乗計算はわずか数点しか計算されておらず、本研究ではより変分パラメータの刻みを小さくし 1, 2 次のベキ乗を作用させた際の効果を、エネルギー期待値と各種相関関数を計算することで確認した。このベキ乗を組み合わせる手法は計算量を増大させるため、並列計算を導入し計算時間を短縮することが重要である。上記の計算手法を用いて、まず周期的境界条件下の非常に小さな系における近似計算の妥当性に関する計算を行った。

以上述べたように変分モンテカルロ法は弱相関から強相関まで幅広い領域で、かつ全ての次元で計算が可能で、他の数値計算手法に比べて非常に大きな系の計算も可能な強力な計算手法であるが、この計算手法を採用するに当たってダイナミクスの解析をあきらめる必要があったことを追記する。ダイナミクスの解析は強相関電子系の光励起の効果を調べる上でたいへん魅力的であるが、大きな系において行うことは非常に困難である。強相関電子系における興味深い対象のひとつである光励起の効果を直接取り扱わずに、その光励起効果研究の為の基礎的な位置づけとして、静電場による非線形効果の研究を行った。本研究は複雑系解析学講座の別グループが研究している数値厳密解による解析手法と共に、強相関電子系を解明する為の数値計算手法の両輪の一端をなすものとしての意味合いを持ち、今後より大きな系で光によるドーピング効果等を調べる上で、本論文に記載する静電場解析が重要となる。

低次元強相関電子系の重要な性質として、巨大な非線形光学感受率 $\chi^{(3)}$ が挙げられるが、その起源としてこの系におけるエキゾチックな電荷の性質が指摘されている [21, 22]。この議論は数値厳密対角化等を用いた極めて小さな系での結果に基づいており、ハバードモデル [23] や共役高分子系の研究 [24, 25] により、システムサイズに強く依存することが知られている $\chi^{(3)}$ の解析としては不十分である。そこで巨大な非線形感受率の起源を考察するため、数値厳密解よりも十分大きな系を取り扱える上述の変分モンテカルロ法を用い、静電場と結合した 1/2 フィールド

のハバードハミルトニアンに外部電場を印加した際の非線形分極応答について解析を行った。

前述の論文 [21, 22] では光励起した際の巨大な $\chi^{(3)}$ を取り扱っているのに対し、本論文では静電場印加時のそれを取り扱ったが、これらの物理量の関連について説明する。例として第3高調波ならびに静電場印加における $\chi^{(3)}$ を示すことで説明する。第3高調波による角振動数 ω における $\chi^{(3)}$ は、

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \propto \sum_{a,b,c} \langle g | \hat{P} | a \rangle \langle a | \hat{P} | b \rangle \langle b | \hat{P} | c \rangle \langle c | \hat{P} | g \rangle \times f_{a,b,c}(\omega, \omega, \omega),$$

$$f_{a,b,c}(\omega, \omega, \omega) = \begin{aligned} & [(\omega_{ag} - \omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{cg} - 3\omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{ag} - \omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{cg} + \omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{ag} - \omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{cg} + \omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{ag} + 3\omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{cg} + \omega)]^{-1}, \end{aligned}$$

と表される。ここで $\hat{P}$ は分極の演算子、 $|g\rangle$ は基底状態、 $|a\rangle, |b\rangle$ および $|c\rangle$ は励起状態である。 $f_{a,b,c}(\omega, \omega, \omega)$ は、共鳴もしくは非共鳴励起であるかを決定する項である。例えば $\omega_{ag} \approx \omega$ であれば $(\omega_{ag} - \omega)$ が小さな値をとり、 $f_{a,b,c}$ は非常に大きな値となる。これが共鳴励起である。次にデバイスへの応用に重要な非共鳴励起を考える。非共鳴励起の場合も、準位 a, b, c によって得られる $f_{a,b,c}$ の値は異なる。しかし共鳴励起の $f_{a,b,c}$ のように特定の a, b, c において突出して大きくなることはない。つまり非共鳴励起において大きな $\chi^{(3)}$ が得られたということは、 $f_{a,b,c}$ よりむしろ $\hat{P}$ の期待値自体が大きいことに起因すると考えられる。

他方、本研究で取り扱う静電場印加時の $\chi^{(3)}$ は $\omega = 0$ であることから、

$$\chi^{(3)}(0, 0, 0) \propto \sum_{a,b,c} \langle g | \hat{P} | a \rangle \langle a | \hat{P} | b \rangle \langle b | \hat{P} | c \rangle \langle c | \hat{P} | g \rangle \times f_{a,b,c}(0, 0, 0),$$

と書き表すことが出来る。 $\omega = 0$ における $f_{a,b,c}(0, 0, 0)$ は非共鳴であり突出したものはない。従って非共鳴励起を考えた場合に、3光子励起ならびに静電場印加共に分極 P の期待値が大きいことが大きな $\chi^{(3)}$ の要因であると考えられる。上記の理由から、非共鳴光励起における非線形光学応答と静電場印加のそれには密接な関連があり、本研究は巨大な光学的非線形性を議論する上で重要な位置を占めると考えられる。

1.2 本論文の構成

第2章では本研究で採用した変分モンテカルロ近似について記述する。第3章では、開発した変分モンテカルロプログラムによる結果とその妥当性を考察する。第4章では第2, 3章の手法に基づき、低次元強相関電子系の静電場における非線形分極応答に関する数値解析を行い、その結果について記述する。第5章では、本論文全体の結論を述べる。

第2章 変分モンテカルロ法

本章では本研究で使用した変分モンテカルロ法について記述する。変分モンテカルロ法は、変分原理に基づいている。そのため、最初に変分原理について説明する。さらに強相関電子系の標準モデルであるハバードハミルトニアン、次に近似の状態ベクトルを示す。続いて変分モンテカルロ法による期待値計算について説明を行なう。そして、変分モンテカルロ法における計算時間上重要となるアクセプト比計算の高速化ならびにハミルトニアンのべき乗計算の高速化について述べる。

2.1 変分原理

本研究で採用した変分モンテカルロ法は、変分原理に基づく計算手法である。変分原理とは、任意の波動関数を $|\Phi\rangle$ としたとき、系の最低エネルギー固有値 E_0 との間に、

$$\langle\Phi|\hat{\mathcal{H}}|\Phi\rangle \geq E_0, \quad (2.1)$$

を満たし、また等号が成立するのは $|\Phi\rangle$ が基底状態の場合のみであることを表す。これは、 $\langle\Phi|\hat{\mathcal{H}}|\Phi\rangle$ が小さければ小さいほど $|\Phi\rangle$ は基底状態に近いことを意味する。

2.2 ハバードハミルトニアン

強相関電子系の標準モデルであるハバードハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \mathcal{T} + \mathcal{U}, \quad (2.2a)$$

$$\mathcal{T} = - \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} t c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma}, \quad (2.2b)$$

$$\mathcal{U} = U \sum_i c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow} = U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow}, \quad (2.2c)$$

と表される。ここで $\mathcal{T}$ は運動エネルギー、 $\mathcal{U}$ はポテンシャルエネルギーの項である。 $-t$ は最近接サイト間の遷移積分、 U はオンサイトクーロン斥力エネルギー、 $c_{i,\sigma}$ 、 $c_{i,\sigma}^\dagger$ は、各々スピン σ 、サイト i の電子の消滅、生成演算子である。また、 $\hat{n}_{i,\sigma} \equiv c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$ は電子の数の演算子である。 $\langle i, j \rangle$ は最近接サイトに関する和を表す。

2.3 状態ベクトル

2.3.1 一体のハミルトニアン基底状態 (第0近似)

式 (2.2a) の第 1 項 $\mathcal{T}$ が一体部分の項で第 2 項 $\mathcal{U}$ が多体相互作用を記述する項である。このハバードハミルトニアンの一休部分を対角化して求めた基底状態を第 0 近似の状態ベクトル $|\phi\rangle$ とする。この状態はクーロン斥力の効果が全く考慮されていないため、電子が自由に動くことができる金属状態である。この金属状態以外にも、多体相互作用を平均場として取り入れたハートリー・フォック解も第 0 近似として考えられるが、H. Shiba, H. Yokoyama の論文 [17][18] 並びに H. Ohtsuka の論文 [19] により、この金属状態 $|\phi\rangle$ に Gutzwiller 因子を作用させた変分試行関数を用いた場合、比較的厳密解に近いエネルギー期待値が得られることが示されている為、本研究でも金属状態 $|\phi\rangle$ を第 0 近似の状態ベクトルとして選択した。ハートリー・フォック解は、ハミルトニアンが持つ並進対称性を破る等問題となる点がある。

2.3.2 変分試行関数の適用 (第1近似)

$|\phi\rangle$ に変分因子 F を作用させた状態ベクトル $|\Psi\rangle = F|\phi\rangle$ を第 1 近似の状態ベクトルとする。ハバードモデル等に広く用いられる変分関数の代表として、Gutzwiller 波動関数 [14] と Jastrow 波動関数 [15] が挙げられ、Gutzwiller 波動関数 $|\Psi_G\rangle$ と Jastrow 波動関数 $|\Psi_J\rangle$ は各々、

$$|\Psi_G\rangle = F_G|\phi\rangle, \quad (2.3a)$$

$$|\Psi_J\rangle = F_J|\phi\rangle, \quad (2.3b)$$

と表される。また F_G と F_J は各々 Gutzwiller 因子、Jastrow 因子と呼ばれ、

$$F_G = \exp \left(-\frac{1}{2} \sum_i \xi \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow} \right), \quad (2.4a)$$

$$F_J = \exp \left(-\frac{1}{2} \sum_i \xi \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow} - \frac{1}{2} \sum_{i,j,\sigma,\sigma'}^{i \neq j} \xi_{i,j} \hat{n}_{i,\sigma} \hat{n}_{j,\sigma'} \right), \quad (2.4b)$$

と定義される。Gutzwiller 因子において ξ が変分パラメータで、Jastrow 因子において $\xi_{i,j}$, ξ が変分パラメータである。変分関数によるエネルギー期待値が最小になるようにこれらのパラメータを決める。

次に Gutzwiller 因子と Jastrow 因子のどちらを適用すれば良いかを、近似精度と計算量の両面から考察してみる。まず近似精度について考える。Jastrow 因子は Gutzwiller 因子を特殊な場合として内包しているため、Jastrow 波動関数において Gutzwiller 波動関数よりも低いエネルギーが得られる。そこで本研究の条件下で

これが顕著になるかどうか焦点となる。1/2 フィールドにおいては、Gutzwiller 因子と Jastrow 因子の近似精度の差は小さいことが知られている。これは 1/2 フィールドという電子数密度から式 (2.4b) の $\exp$ の肩のパラメータが相殺しあい、Jastrow 因子を採用しても計算量の割に効果が上がらないためであると考えられる。本研究対象は 1/2 フィールドであることから、Gutzwiller 因子で十分厳密解に近いエネルギーが得られると予想される。上記に加えて、第 1 近似の段階でそれほど精度良く近似解を求めなくても、後述のハミルトニアン**のべき乗** (第 2 近似) を作用させることにより、結果が大幅に改善される可能性がある。以上精度の面を考慮すると Gutzwiller 因子で十分であると考ええる。これについては後に検証する。

次に計算量について考えると、Gutzwiller 因子は 1 変数関数であるのに対し Jastrow 因子は多変数関数である。Jastrow 因子において、どれだけの個数の変分パラメータを考慮するかによって計算量は大きく変化するが、Jastrow 因子の方がはるかに計算量が大きくなるのは自明である。さらに 1/2 フィールドの系にて Jastrow 因子を導入すると、統計誤差によりオンサイト以外のパラメータを決めるのが困難であり、いいかえれば結果が統計誤差に埋もれないくらいの大量のサンプルを取る必要が出てくる。後述のべき乗計算は計算量を増大させる為、このサンプル数の増加は極力避ける必要がある。以上計算量の面を考慮すると、Gutzwiller 因子が有利である。

以上のように精度と計算量の両面から検討した結果、本研究では Gutzwiller 因子を採用した。この因子の採用は、H. Yokoyama, H. Shiba の論文 [17] 並びに H. Ohtsuka の論文 [19] と同様である。なお本研究では採用しなかった Jastrow 因子であるが、1/2 フィールドよりも低い電子数密度においては有効であることが知られている [16]。以降、本論文では Gutzwiller 波動関数のみしか取り扱わないので、Gutzwiller 波動関数を以後単に $|\Psi\rangle$ と表記する。

$$|\Psi\rangle = |\Psi_G\rangle. \quad (2.5)$$

2.3.3 ハミルトニアン**のべき乗** (第 2 近似)

近似をさらに進める為に、ランチョス法などで良く知られているように、状態ベクトル補正としてハミルトニアン**のべき乗**を作用させて、それらの線形結合を取った第 2 近似の状態ベクトルを考察する。最初に、変分モンテカルロ法におけるべき乗補正の基となるべき乗法およびランチョス法による固有値、固有ベクトルの計算原理について示す。エネルギー固有値 E_n の小さい順に番号を付け、

$$E_0 \leq E_1 \leq \dots \leq E_n \leq \dots, \quad (2.6)$$

を満たすようにする。エネルギーの基準を変える、別の言い方をすればハミルトニアン行列の対角成分をシフトさせることにより E_0 を絶対値最大のエネルギー固有値とすることが出来る。試行状態ベクトルにハミルトニアン行列を何度も掛けると、絶対

値最大の $|E_0|$ に対応する固有ベクトルが最も速く成長する。このことから、 $\mathcal{H}^K|\alpha\rangle$ は K を十分大きくすることで基底状態に収束することが分かる。ここで $|\alpha\rangle$ は任意の状態ベクトルである。これを利用して、基底状態を求める手法がべき乗法である。べき乗法において、 $\mathcal{H}^K|\alpha\rangle$ を数値的に求める際に、 $\mathcal{H}^k|\alpha\rangle$ ($k = 1, \dots, K-1$) は既に計算されている。これらを利用して、その線形結合 $\sum_{k=0}^K C_k \mathcal{H}^k|\alpha\rangle$ によって、基底状態を求めるのがランチョス法である。一般にランチョス法においては、べき乗法よりもはるかに小さい K において収束が得られる。

ランチョス法は厳密解を与えるが、システムサイズが十分大きい場合には、 $\mathcal{H}$ を何度も掛けることは不可能である。ランチョス法においては、 K を十分大きくすることによって、任意の $|\alpha\rangle$ (基底状態と直交しない限り) に対して厳密な基底状態が得られる。それに対して、 K を少なく抑える代わりに、 $|\alpha\rangle$ として基底状態に近い状態ベクトル $|\Psi\rangle$ を用いるというのが、本研究で用いる変分関数の考え方である。すなわち、第 2 近似の変分関数は以下のように与えられる。

$$|\Psi_p\rangle = \sum_{i=0}^p C_i \mathcal{H}^i |\Psi\rangle, \quad (2.7)$$

ここで C_i は線形結合の係数で変分パラメータである。式 (2.4a) の Gutzwiller パラメータ ξ を決定した後にエネルギー期待値が最小となるように C_i を決定する。この方法は E. S. Heeb と T. M. Rice によって提案された。E. S. Heeb と T. M. Rice の論文 [20] では、ハイゼンベルクハミルトニアンにて d 波 RVB 状態ベクトルを $|\phi\rangle$ とし、この第 0 近似関数に直接べき乗補正をさせた際の $p = 0, 1, 2$ におけるエネルギー期待値、スピン相関関数、電荷相関関数が報告されている。この論文によると p が大きくなる毎にエネルギー期待値が厳密解に大きく近づくことが分かっている。

さらに以下に示す重要な結果が得られている。d 波 RVB 状態ベクトルは、超伝導ギャップや反強磁性スピン秩序の強度の 2 つのパラメータによって決められている。 $p = 2$ によるエネルギー期待値は、これらのパラメーターにほとんど依存しない。これまでの変分モンテカルロ法は、特定の波動関数を仮定するために、波動関数を決めた時点で多くの基底状態となり得るかもしれない量子状態を排除してしまう。この”バイアス”が変分モンテカルロ法の最大の欠点である。例えば超伝導の出現を議論する際に、BCS 型の波動関数を変分関数に用いて議論しても説得力がない。このべき乗を用いることによって $|\Psi\rangle$ に強く依存しない”バイアス”の少ない結果が得られる可能性があり、結果に信憑性を与える。この E. S. Heeb と T. M. Rice による興味深い論文はハイゼンベルクハミルトニアンを用い、 $|\phi\rangle$ に d 波 RVB 状態ベクトルを用いて Gutzwiller 補正は行わない場合に関するものであり、これに対し本研究ではハバードハミルトニアンを用い、 $|\phi\rangle$ に第 2.3.1 節の状態ベクトルを用いてこれに Gutzwiller 補正を行った点で異なる。本研究においても E. S. Heeb と T. M. Rice らの研究同様の良い結果が得られることを期待し、このべき乗を採り入れることとした。なお変分モンテカルロ法は変分原理を満たし、数

値厳密解より低いエネルギーを得ることがないことを保証する。ただし、統計誤差はこの限りではない。

2.4 変分モンテカルロ法による期待値計算

この節では、変分モンテカルロ法による期待値計算について記述する。またモンテカルロサンプリングの際の試行電子状態を作成する手法に関しては、特に本研究で取り扱うような大規模問題でかつ小さな分極を扱う際には重要な位置づけを占めるので、詳細に議論することとする。

2.4.1 変分モンテカルロ法による期待値計算

ハミルトニアンの期待値は、以下のように書き換えることができる。

$$\frac{\langle \Psi_p | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_p \rangle}{\langle \Psi_p | \Psi_p \rangle} = \sum_{\alpha}^{all} \frac{\langle \Psi_p | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_p \rangle}{\langle \Psi_p | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_p \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_p \rangle|^2}{\langle \Psi_p | \Psi_p \rangle}, \quad (2.8)$$

ここで、 $|\alpha\rangle$ は考察するヒルベルト空間の完全規格直交基底であり、 $\sum_{\alpha}^{all}$ は全ての $|\alpha\rangle$ について和をとることを表す。そして $\sum_{\alpha}^{all} |\alpha\rangle \langle \alpha|$ が恒等演算子になることをここで用いた。多体ハミルトニアンにおいてはヒルベルト空間の次元数は膨大なものとなり、 $|\alpha\rangle$ に関する和を数値的に行うのは不可能である。そこで以下に述べるモンテカルロ法による計算を採用する。モンテカルロ法は以下ようになる。

1. $|\alpha\rangle$ の集まりであるモンテカルロサンプル (MCS) を、ある $|\alpha\rangle$ が MCS に含まれる確率が重み $|\langle \alpha | \Psi_p \rangle|^2 / \langle \Psi_p | \Psi_p \rangle$ に比例するように作る。
2. 下記の数式により期待値を近似する。

$$\frac{\langle \Psi_p | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_p \rangle}{\langle \Psi_p | \Psi_p \rangle} \simeq \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{|\alpha\rangle \in \text{MCS}} \frac{\langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_p \rangle}{\langle \alpha | \Psi_p \rangle}, \quad (2.9)$$

N_{MCS} はモンテカルロサンプルとして採用したサンプル数である。ここで注意すべきは、式 (2.8) の $|\alpha\rangle$ に関する和は全ての完全規格直交基底について重複しないように和を取るのに対し、式 (2.9) の $|\alpha\rangle$ に関する和は重複を許す点である。この MCS には同じ状態ベクトルが複数回採り入れられても良く、重みの大きな状態は多数採り入れらる。MCS の具体的な作り方については後述する。式 (2.9) は N_{MCS} を増すにつれて、厳密解へ収束していくことが示されている。通常はヒルベルト空間の次元数よりも遥かに小さい N_{MCS} において、十分な収束値が得られる。

2.4.2 モンテカルロサンプリング

含まれる確率が重み $|\langle\alpha|\Psi_p\rangle|^2/\langle\Psi_p|\Psi_p\rangle$ に比例した MCS を作るには、以下に述べるメトロポリス法を用いる。 $|\alpha\rangle$ はすでに採用された最新のモンテカルロサンプルであり、新たにランダムに作成した $|\alpha'\rangle$ は評価対象の電子状態とする。この時アクセプト比 ρ^2 は、

$$\rho^2 = \left| \frac{\langle\alpha'|\Psi_p\rangle}{\langle\alpha|\Psi_p\rangle} \right|^2, \quad (2.10)$$

と表される。ここで以下の評価式

$$\left| \frac{\langle\alpha'|\Psi_p\rangle}{\langle\alpha|\Psi_p\rangle} \right|^2 \geq X, \quad (2.11)$$

を満たす $|\alpha'\rangle$ はモンテカルロサンプルとして採用され、 $|\alpha\rangle$ は $|\alpha'\rangle$ と置き換えられる。ここで X は 0 ~ 1 までの値を取る一様乱数である。また、

$$\left| \frac{\langle\alpha'|\Psi_p\rangle}{\langle\alpha|\Psi_p\rangle} \right|^2 < X, \quad (2.12)$$

の場合は、 $|\alpha\rangle$ が再びモンテカルロサンプルに採用される。以後同じ工程を繰り返す。なお X は一様乱数であるので、例え同じ電子状態による ρ^2 と比較した際でも、 $X \geq \rho^2$ となる場合と $X < \rho^2$ となる場合がある。これにより ρ^2 が大きい状態はより多く採り入れられ、逆に存在確率が小さな状態は少数個しか採り入れられないという重みづけがなされる。

2.4.3 内積計算

ここでは後に示すように、アクセプト比 $|\langle\alpha'|\Psi_0\rangle/\langle\alpha|\Psi_0\rangle|^2$ を求める上で必要な、内積計算 $\langle\alpha|\phi\rangle$ の計算方法を示す。以下に N サイト、 $\uparrow(\downarrow)$ スピン電子数 $i(j)$ の場合について記述する。

この場合、一体のハミルトニアン H の基底状態 $|\phi\rangle$ は、

$$\begin{aligned} |\phi\rangle &= \prod_{\mu=1}^i a_{\mu\uparrow}^\dagger \prod_{\eta=1}^j a_{\eta\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle \\ &= a_{1\uparrow}^\dagger \cdots a_{i\uparrow}^\dagger a_{1\downarrow}^\dagger \cdots a_{j\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \end{aligned} \quad (2.13)$$

と表される。ここで $|\text{vac}\rangle$ は真空状態を表す。また $a_{\mu\sigma}^\dagger$ は、一体のハミルトニアン H の 1 電子固有状態であるスピン σ 電子の生成演算子であり、引数 μ はエネルギーが低い順に番号をつける。 $a_{\mu\sigma}^\dagger$ は式 (2.2b) の行列 $\mathcal{T}$ を対角化する、すなわち、

$$D^{\dagger\sigma} \mathcal{T}^\sigma D^\sigma = \begin{bmatrix} \epsilon_1^\sigma & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \epsilon_2^\sigma & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & \epsilon_N^\sigma \end{bmatrix}, \quad (2.14)$$

を満たすユニタリー行列 D^σ を用いて、

$$a_{\mu\sigma}^\dagger = \sum D_{n,\mu}^\sigma c_{n\sigma}^\dagger, \quad (2.15)$$

と表すことができる。ここで、ハートリーフォック解も $|\phi\rangle$ の候補として含めることができるように、1 体のハミルトニアン行列のスピン依存性を考慮しておいた。

次にサイト表示の任意の電子状態 $|\alpha\rangle$ は、

$$|\alpha\rangle = c_{p_\uparrow(1),\uparrow}^\dagger \cdots c_{p_\uparrow(i),\uparrow}^\dagger c_{p_\downarrow(1),\downarrow}^\dagger \cdots c_{p_\downarrow(j),\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad (2.16)$$

と書くことができる。ここで $p_\sigma(x)$ は、 x 番目の σ スピン電子の位置を指定する。式 (2.13)(2.16) より $\langle\alpha|\phi\rangle$ は、

$$\langle\alpha|\phi\rangle = \langle\text{vac}|c_{p_\downarrow(j),\downarrow} \cdots c_{p_\downarrow(1),\downarrow} c_{p_\uparrow(i),\uparrow} \cdots c_{p_\uparrow(1),\uparrow} a_{1\uparrow}^\dagger \cdots a_{i\uparrow}^\dagger a_{1\downarrow}^\dagger \cdots a_{j\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad (2.17)$$

となり、 $|\text{vac}\rangle$ による期待値の形になっている。Wick の定理を用いることにより、これら多数の演算子の積の期待値を 2 つの演算子の積の期待値 (コントラクション) の積として表すことができる。コントラクションを

$$U^\bullet V^\bullet = \langle\text{vac}|UV|\text{vac}\rangle, \quad (2.18)$$

のように表すこととする。スピンが異なるもの同士のコントラクションは 0 にな

るので同スピン演算子間でコントラクションを取れば良い。これより、

$$\begin{aligned}
& \langle \alpha | \phi \rangle \\
&= \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(j),\downarrow} \cdots c_{p_{\downarrow}(1),\downarrow} c_{p_{\uparrow}(i),\uparrow} \cdots c_{p_{\uparrow}(1),\uparrow} a_{1\uparrow}^{\dagger} \cdots a_{i\uparrow}^{\dagger} a_{1\downarrow}^{\dagger} \cdots a_{j\downarrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&= \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\uparrow}) \text{sgn}(\varsigma_{\downarrow}) \\
&\quad \langle \text{vac} | N [c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),\downarrow} \cdots c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),\downarrow} c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),\uparrow} \cdots c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),\uparrow} a_{1\uparrow}^{\dagger} \cdots a_{i\uparrow}^{\dagger} a_{1\downarrow}^{\dagger} \cdots a_{j\downarrow}^{\dagger}] | \text{vac} \rangle \\
&= \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\uparrow}) \text{sgn}(\varsigma_{\downarrow}) \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),\downarrow} a_{j\downarrow}^{\dagger} \cdots c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),\downarrow} a_{1\downarrow}^{\dagger} \\
&\quad c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),\uparrow} a_{i\uparrow}^{\dagger} \cdots c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),\uparrow} a_{1\uparrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&= \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\uparrow}) \text{sgn}(\varsigma_{\downarrow}) c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),\downarrow} a_{j\downarrow}^{\dagger} \cdots c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),\downarrow} a_{1\downarrow}^{\dagger} \\
&\quad c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),\uparrow} a_{i\uparrow}^{\dagger} \cdots c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),\uparrow} a_{1\uparrow}^{\dagger} \langle \text{vac} | \text{vac} \rangle \\
&= \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),\downarrow} a_{j\downarrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \cdots \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),\downarrow} a_{1\downarrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&\quad \langle \text{vac} | c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),\uparrow} a_{i\uparrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \cdots \langle \text{vac} | c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),\uparrow} a_{1\uparrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&\quad \left\{ a_{\mu\sigma}^{\dagger} = \sum_n D_{n,\mu}^{\sigma} c_{n\sigma}^{\dagger} \text{ を使用} \right\} \\
&= \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\downarrow}) \\
&\quad \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),\downarrow} \sum_n D_{n,j}^{\downarrow} c_{n\downarrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \cdots \langle \text{vac} | c_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),\downarrow} \sum_n D_{n,1}^{\downarrow} c_{n\downarrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&\quad \times \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\uparrow}) \\
&\quad \langle \text{vac} | c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),\uparrow} \sum_n D_{n,i}^{\uparrow} c_{n\uparrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \cdots \langle \text{vac} | c_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),\uparrow} \sum_n D_{n,1}^{\uparrow} c_{n\uparrow}^{\dagger} | \text{vac} \rangle \\
&= \sum_{\varsigma_{\uparrow}} \sum_{\varsigma_{\downarrow}} \text{sgn}(\varsigma_{\uparrow}) \text{sgn}(\varsigma_{\downarrow}) D_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(j)),j}^{\downarrow} \cdots D_{p_{\downarrow}(\varsigma_{\downarrow}(1)),1}^{\downarrow} D_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(i)),i}^{\uparrow} \cdots D_{p_{\uparrow}(\varsigma_{\uparrow}(1)),1}^{\uparrow} \\
&= \det \tilde{D}_{\alpha}^{\downarrow} \times \det \tilde{D}_{\alpha}^{\uparrow}, \tag{2.19}
\end{aligned}$$

となる。ここで ς_{σ} は置換であり、

$$\text{sgn}(\varsigma_{\sigma}) = \begin{cases} 1 & \cdots \quad \varsigma_{\sigma} \text{ が偶置換の場合} \\ -1 & \cdots \quad \varsigma_{\sigma} \text{ が奇置換の場合} \end{cases}, \tag{2.20}$$

である。また行列式の定義

$$\det A = \sum_{\varsigma_{\sigma}} \text{sgn}(\varsigma_{\sigma}) a_{1\varsigma_{\sigma}(1)} a_{2\varsigma_{\sigma}(2)} \cdots a_{N\varsigma_{\sigma}(N)}, \tag{2.21}$$

を用いる。行列 $\tilde{D}_\alpha^\downarrow, \tilde{D}_\alpha^\uparrow$ を成分表示すると、

$$\tilde{D}_\alpha^\downarrow = \begin{pmatrix} D_{p_\downarrow(1),1}^\downarrow & D_{p_\downarrow(1),2}^\downarrow & \cdots & D_{p_\downarrow(1),j}^\downarrow \\ D_{p_\downarrow(2),1}^\downarrow & & \ddots & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \vdots \\ D_{p_\downarrow(j),1}^\downarrow & \cdots & \cdots & D_{p_\downarrow(j),j}^\downarrow \end{pmatrix}, \quad (2.22a)$$

$$\tilde{D}_\alpha^\uparrow = \begin{pmatrix} D_{p_\uparrow(1),1}^\uparrow & D_{p_\uparrow(1),2}^\uparrow & \cdots & D_{p_\uparrow(1),i}^\uparrow \\ D_{p_\uparrow(2),1}^\uparrow & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \vdots \\ D_{p_\uparrow(i),1}^\uparrow & \cdots & \cdots & D_{p_\uparrow(i),i}^\uparrow \end{pmatrix}, \quad (2.22b)$$

となる。以上により期待値は、

$$\langle \alpha | \phi \rangle = \det \tilde{D}_\alpha^\downarrow \times \det \tilde{D}_\alpha^\uparrow, \quad (2.23)$$

となる。なおこの行列式の計算は、数値計算ライブラリ ATLAS のサブルーチンを使用した。

2.4.4 変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p = 0$)

$|\alpha\rangle$ としては、式 (2.16) のようにサイト表示の状態ベクトルを用いている為、

$$F_G |\alpha\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}\xi n_d\right) |\alpha\rangle, \quad (2.24)$$

となる。ただし、 n_d は $|\alpha\rangle$ の 2 重占有サイト数である。また、

$$\langle \alpha | \Psi_0 \rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}\xi n_d\right) \langle \alpha | \phi \rangle, \quad (2.25)$$

となり、その結果 $\langle \alpha | \phi \rangle$ を計算すればモンテカルロサンプリングを行うことが出来る。

2.4.5 変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p = 1$)

式 (2.8) と同様に、ベキ乗を用いた $p = 1$ の際の変分モンテカルロ法による期待値計算も、

$$\begin{aligned} \frac{\langle \Psi_1 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_1 \rangle}{\langle \Psi_1 | \Psi_1 \rangle} &= \sum_{\alpha}^{\text{all}} \frac{\langle \Psi_1 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_1 \rangle}{\langle \Psi_1 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_1 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_1 \rangle|^2}{\langle \Psi_1 | \Psi_1 \rangle} \\ &\simeq \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha \in \text{MCS}} \frac{\langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_1 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_1 \rangle}, \end{aligned} \quad (2.26)$$

として求めることができる。式 (2.10) よりモンテカルロサンプリングに $|\langle \alpha' | \Psi_1 \rangle / \langle \alpha | \Psi_1 \rangle|^2$ を評価すれば良いということとなる。しかしこれは極めて負荷の高い計算であり、モンテカルロサンプルに入るかどうかも分かっていない段階で、 $|\Psi_1\rangle$ を用いた高負荷の計算を行うことは現実的でない。そこで以下に示すようにして、 $p = 1$ 次においても $p = 0$ 次と同様のアクセプト比

$$\left| \frac{\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right|^2, \quad (2.27)$$

を用いてモンテカルロサンプリングを行う方法を採用した。なお E. S. Heeb と T. M. Rice の論文 [20] においても同様の手法が採用されている。この手法は、集まったサンプル自体は $p = 0$ と共通なので計算時間を節約出来る。 $p = 1$ 次の状態ベク

トルによる期待値計算は以下のように式変形される。

$$\begin{aligned}
& \frac{\langle \Psi_1 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_1 \rangle}{\langle \Psi_1 | \Psi_1 \rangle} \\
&= \frac{C_1^2 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} \hat{\mathcal{H}} \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle + C_0^2 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{C_1^2 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle + C_0^2 \langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \\
&= \left(C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}}^3 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + C_0^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right) \\
&\quad / \left(C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + C_0^2 \frac{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right) \\
&= \left(\sum_{\alpha}^{all} C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + \sum_{\alpha}^{all} 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right. \\
&\quad \left. + \sum_{\alpha}^{all} C_0^2 \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right) / \left(\sum_{\alpha}^{all} C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right. \\
&\quad \left. + \sum_{\alpha}^{all} 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} + \sum_{\alpha}^{all} C_0^2 \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \cdot \frac{|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \right) \\
&\simeq \left(\frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} C_0^2 \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right) / \left(\frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} C_1^2 \frac{\langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} 2C_0 C_1 \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} C_0^2 \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} \frac{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right) \\
&= \left(\frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} C_1^2 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}}^2 | \Psi_0 \rangle + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} 2C_0 C_1 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} \langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle \right) / \left(\frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} C_1^2 \langle \Psi_0 | \hat{\mathcal{H}} | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} 2C_0 C_1 \langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_0 \rangle + \frac{1}{N_{\text{MCS}}} C_0^2 \sum_{\alpha}^{\alpha \in \text{MCS}} \langle \Psi_0 | \alpha \rangle \langle \alpha | \Psi_0 \rangle \right), \quad (2.28)
\end{aligned}$$

ここで係数 C_i はエネルギー期待値が最小となるように決定する。

2.4.6 変分モンテカルロ法による期待値計算 ($p = 2$)

$p = 1$ 次の場合と同様に $|\Psi_2\rangle$ の場合は、以下の様な期待値計算になる。

[illegible]

2.4.7 線形結合係数の決定

ラグランジュの未定係数法を用いて線形結合係数を決定する。 $|\Psi_1\rangle$ を用いたエネルギー期待値は、

$$\begin{aligned}\varepsilon_1 &= \frac{\langle \Psi_1 | \hat{\mathcal{H}} | \Psi_1 \rangle}{\langle \Psi_1 | \Psi_1 \rangle} \\ &= \frac{C_1^2 \langle \mathcal{H}^3 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0^2 \langle \mathcal{H} \rangle}{C_1^2 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \mathcal{H} \rangle + C_0^2},\end{aligned}\quad (2.30)$$

と表される。 ε_1 が最小となるように係数 C_0, C_1 を決めるためには、以下の関数

$$f_1 = C_1^2 \langle \mathcal{H}^3 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0^2 \langle \mathcal{H} \rangle - (C_1^2 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + 2C_0 C_1 \langle \mathcal{H} \rangle + C_0^2) \varepsilon_1, \quad (2.31)$$

が以下の式を満たせば良い。

$$\frac{df_1}{dC_0} = 2 \{ C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0 \langle \mathcal{H} \rangle - (C_1 \langle \mathcal{H} \rangle + C_0) \varepsilon_1 \} = 0, \quad (2.32a)$$

$$\frac{df_1}{dC_1} = 2C_1 \langle \mathcal{H}^3 \rangle + 2 \{ C_0 \langle \mathcal{H}^2 \rangle - (C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0 \langle \mathcal{H} \rangle) \varepsilon_1 \} = 0. \quad (2.32b)$$

これより、

$$(C_1 \langle \mathcal{H} \rangle + C_0) \varepsilon_1 = C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0 \langle \mathcal{H} \rangle, \quad (2.33a)$$

$$(C_1 \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0 \langle \mathcal{H} \rangle) \varepsilon_1 = C_1 \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_0 \langle \mathcal{H}^2 \rangle, \quad (2.33b)$$

となり、行列形式に書き直すと、

$$\varepsilon_1 \begin{pmatrix} 1 & \langle \mathcal{H} \rangle \\ \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \end{pmatrix}, \quad (2.34)$$

となり、さらに、

$$\varepsilon_1 \begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & \langle \mathcal{H} \rangle \\ \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \end{pmatrix}, \quad (2.35)$$

となり、行列の対角化問題に帰着した。上記の様にして ε_1 の極値が求まり、 C_0, C_1 が決定する。

次に $|\Psi_2\rangle$ を用いたエネルギー期待値は、

$$\begin{aligned}\varepsilon_2 &= \left(C_2'^2 \langle \mathcal{H}^5 \rangle + 2C_1' C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + (2C_0' C_2' + C_1'^2) \langle \mathcal{H}^3 \rangle \right. \\ &\quad \left. + 2C_0' C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0'^2 \langle \mathcal{H} \rangle \right) / \left(C_2'^2 \langle \mathcal{H}^4 \rangle + 2C_1' C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle \right. \\ &\quad \left. + (2C_0' C_2' + C_1'^2) \langle \mathcal{H}^2 \rangle + 2C_0' C_1' \langle \mathcal{H} \rangle + C_0'^2 \right),\end{aligned}\quad (2.36)$$

と表される。 ε_2 が最小となるように係数 C'_0, C'_1, C'_2 を決めるために、以下の関数

$$\begin{aligned} f_2 = & C_2'^2 \langle \mathcal{H}^5 \rangle + 2C_1' C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + (2C_0' C_2' + C_1'^2) \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ & + 2C_0' C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0'^2 \langle \mathcal{H} \rangle - \{ C_2'^2 \langle \mathcal{H}^4 \rangle + 2C_1' C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ & + (2C_0' C_2' + C_1'^2) \langle \mathcal{H}^2 \rangle + 2C_0' C_1' \langle \mathcal{H} \rangle + C_0'^2 \} \varepsilon_2, \end{aligned} \quad (2.37)$$

を定義する。 ε_2 が最小となるには以下の条件を満たさなければならない。

$$\begin{aligned} \frac{df_2}{dC'_0} = & 2 \{ C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H} \rangle \\ & - (C_2' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H} \rangle + C_0') \varepsilon_2 \} = 0, \end{aligned} \quad (2.38a)$$

$$\begin{aligned} \frac{df_2}{dC'_1} = & 2 \{ C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^2 \rangle \\ & - (C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H} \rangle) \varepsilon_2 \} = 0, \end{aligned} \quad (2.38b)$$

$$\begin{aligned} \frac{df_2}{dC'_2} = & 2 \{ C_2' \langle \mathcal{H}^5 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ & - (C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^2 \rangle) \varepsilon_2 \} = 0, \end{aligned} \quad (2.38c)$$

これより、

$$(C_2' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H} \rangle + C_0') \varepsilon_2 = C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H} \rangle, \quad (2.39a)$$

$$(C_2' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^2 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H} \rangle) \varepsilon_2 = C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^2 \rangle, \quad (2.39b)$$

$$(C_2' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^3 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^2 \rangle) \varepsilon_2 = C_2' \langle \mathcal{H}^5 \rangle + C_1' \langle \mathcal{H}^4 \rangle + C_0' \langle \mathcal{H}^3 \rangle, \quad (2.39c)$$

となり、行列形式に書き直すと、

$$\varepsilon_2 \begin{pmatrix} 1 & \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \\ \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C'_0 \\ C'_1 \\ C'_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle & \langle \mathcal{H}^5 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C'_0 \\ C'_1 \\ C'_2 \end{pmatrix}, \quad (2.40)$$

となり、さらに、

$$\varepsilon_2 \begin{pmatrix} C'_0 \\ C'_1 \\ C'_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle \\ \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} \langle \mathcal{H} \rangle & \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^2 \rangle & \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle \\ \langle \mathcal{H}^3 \rangle & \langle \mathcal{H}^4 \rangle & \langle \mathcal{H}^5 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C'_0 \\ C'_1 \\ C'_2 \end{pmatrix}, \quad (2.41)$$

となり、行列の対角化問題に帰着した。上記の様にして ε_2 の極値が求まり、 C'_0, C'_1, C'_2 が決定する。

2.5 アクセプト比計算の高速化

モンテカルロサンプリングにおけるアクセプト比計算の時間を短縮するために、 $|\langle \alpha' | \Psi_1 \rangle| / |\langle \alpha | \Psi_1 \rangle|^2$ や $|\langle \alpha' | \Psi_2 \rangle| / |\langle \alpha | \Psi_2 \rangle|^2$ を使わずに $|\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle| / |\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2$ を評価すること前節で述べた。本節では、この評価式を高速に解く手法について議論する。

$|\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle / \langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2$ を求める場合、分子・分母の計算を順に行う手法と $|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle|^2$ と変形させて計算するという数学的には等価な2通りの計算手法が考えられる。しかし、ある拘束条件下の数値計算では両者は異なる計算速度となる。以後この2通りの計算方法について比較検討する。

2.5.1 $\left| \frac{\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right|^2$ の評価

この計算は分子・分母の各内積計算を行なった後に、除算と絶対値の2乗を行なう手法であり、

1. $\langle \alpha | \Psi_0 \rangle = \det \tilde{D}_\alpha^\downarrow \times \det \tilde{D}_\alpha^\uparrow$ を求める。
2. $\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle = \det \tilde{D}_{\alpha'}^\downarrow \times \det \tilde{D}_{\alpha'}^\uparrow$ を求める。
3. $\left| \frac{\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right|^2$ を求める。

という工程となる。計算時間はほぼ行列式の計算で占められるので、この計算量は $O(N^3)$ と見積もられる。この計算手法を用いた変分モンテカルロ計算アルゴリズムは以下のフローチャートで表される。

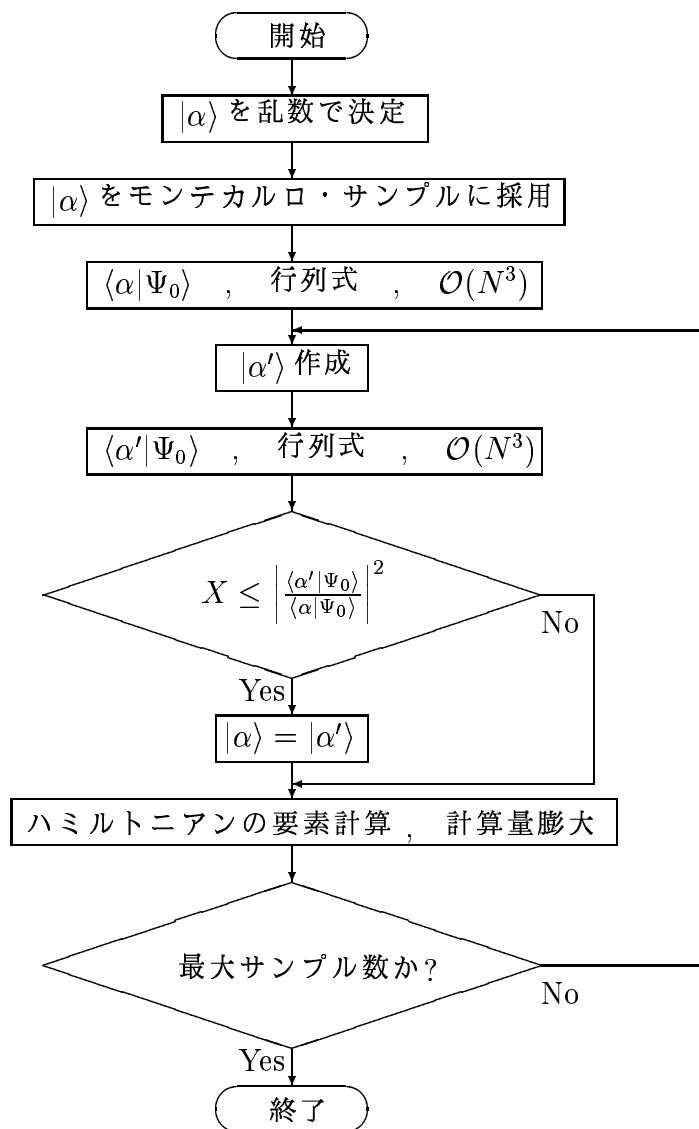


図 2.1: $\left| \frac{\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right|^2$ アルゴリズム

この計算手法では、新しい試行電子配置を作るとに、分子の $\mathcal{O}(N^3)$ の $\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle$ の計算を行わなければならない。上記の内積計算を行なった結果、新しい試行電子状態がモンテカルロサンプルとして採り入れられないことがある為、なるべく計算量を減らしたい個所である。

2.5.2 $\left| \langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle \right|^2$ の評価

$\left| \langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle \right|^2$ の計算時間は、一般には $|\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle| / |\langle \alpha | \Psi_0 \rangle|^2$ の計算時間と同じオーダーである。しかし状態ベクトル $|\alpha\rangle$ と $|\alpha'\rangle$ は電子 1 つ分しか状態が変わらないという拘束条件をつけることにより、非常に高速な数値計算を行なうことが可能になる。

以下、試行状態ベクトルを作る際に $\uparrow$ スピンをひとつだけ動かすという拘束条件をつけた場合を例にとって説明する。なお、この手法は D. Ceperley と G. V. Chester らの論文を参照した [26]。

まず $\uparrow$ スピン電子をひとつ動かして、新しい電子位置 ($\alpha \mapsto \alpha'$) にすると小行列 $\tilde{D}^\uparrow$ は、

$$\tilde{D}^\uparrow = (\vec{d}^1, \vec{d}^2, \dots, \vec{d}^N) \mapsto \tilde{D}'^\uparrow = (\vec{d}^{1'}, \vec{d}^2, \dots, \vec{d}^N), \quad (2.42)$$

と変化し、 $\tilde{D}^\uparrow$ の一列のみを変化させる。ここで、 $\vec{d}^i$ は i 行目の列ベクトルである。

$$\tilde{D}^\uparrow = \begin{pmatrix} \boxed{\vec{d}^1} \end{pmatrix} \rightarrow \tilde{D}'^\uparrow = \begin{pmatrix} \boxed{\vec{d}^{1'}} \end{pmatrix}.$$

上記の例では $\uparrow$ スピンのみを変化させているので、アクセプト比は、

$$\begin{aligned} \left| \frac{\langle \alpha' | \Psi_0 \rangle}{\langle \alpha | \Psi_0 \rangle} \right|^2 &= \left| \langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle \right|^2 \\ &= \left| \left(\det \tilde{D}^\downarrow \times \det \tilde{D}^\uparrow \right)^{-1} \left(\det \tilde{D}^\downarrow \times \det \tilde{D}'^\uparrow \right) \right|^2 \\ &= \left| \det \tilde{D}^{\uparrow-1} \det \tilde{D}'^\uparrow \right|^2 \\ &= \left| \det \left(\tilde{D}^{\uparrow-1} \tilde{D}'^\uparrow \right) \right|^2, \end{aligned} \quad (2.43)$$

と変形される。この式を変更のあった列ベクトルで記述するとアクセプト比は、

$$\left| \langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle \right|^2 = \left| \sum_j \tilde{D}_{j1}^{\sigma-1} \vec{d}^1_j \right|^2 = \rho^2, \quad (2.44)$$

となる。もし $|\alpha\rangle \rightarrow |\alpha\rangle$ 、つまり同じ電子状態が選択されたら $\rho^2 = 1$ である。この計算手法をまとめると、

1. $\langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} = \det \tilde{D}_\alpha^\downarrow \times \det \tilde{D}_\alpha^\uparrow$ を求める。
2. $\left| \langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle \right|^2 = \left| \sum_j \tilde{D}_{j1}^{\sigma-1} \vec{d}^1_j \right|^2 = \rho^2$ を求める。

という項目に分かれる。項目 1 は $O(N^3)$ の計算量であるが、項目 2 に関しては、電子を 1 つ動かす場合だと $O(N)$ の計算量でおさえることが出来る。次にこのアルゴリズムのフローチャートを示す。

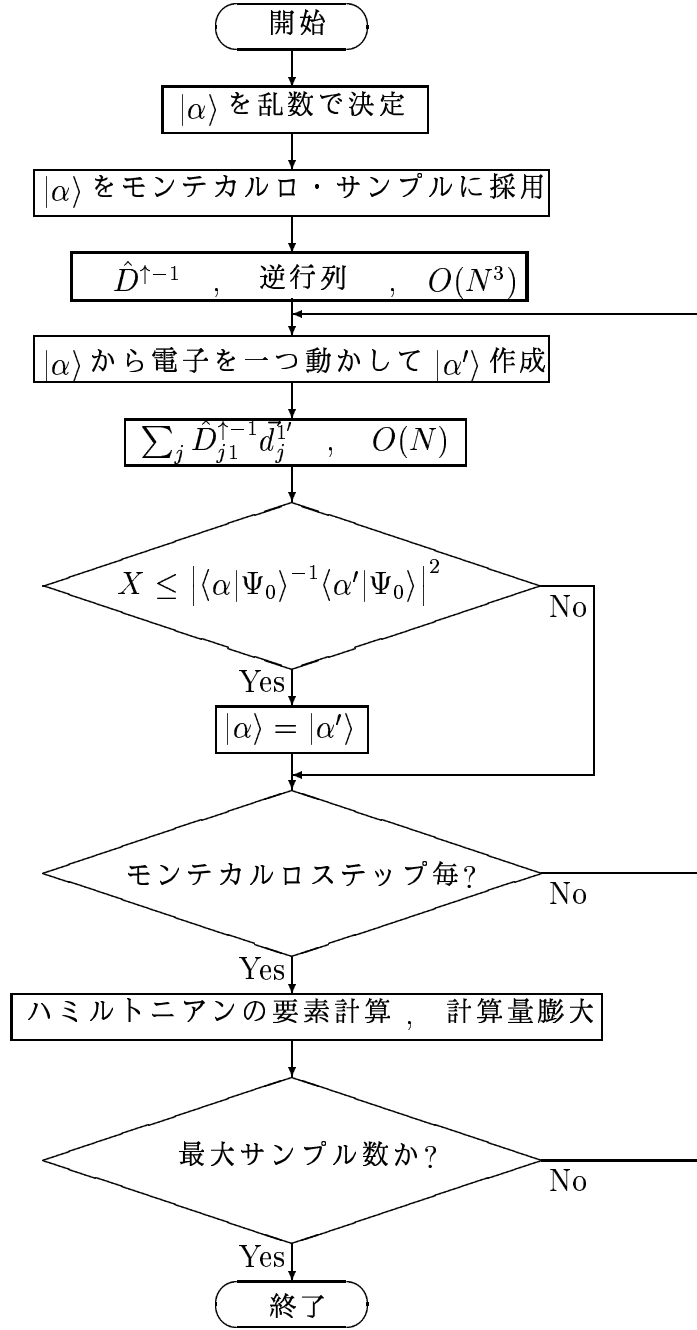


図 2.2: $|\langle \alpha | \Psi_0 \rangle^{-1} \langle \alpha' | \Psi_0 \rangle|^2$ アルゴリズム

この計算手法の特徴は、モンテカルロサンプルにサンプルの追加が生じた場合にのみ項目 1 の $O(N^3)$ の逆行列の計算を行えば良い点が挙げられる。ある状態から次の試行電子状態を作ってアクセプト比を算出する段階では、項目 2 の $O(N)$ の計算のみをすれば良いこととなる。この理由から、第 2.5.1 節の方法よりも計算速度は圧倒的に速い。以上の理由により、本研究ではこのアルゴリズムを採用した。

2.5.3 1 電子状態のみを変化させる利点

1 電子のみを変えることにはさらなる利点がある。 $|\alpha'\rangle$ が完全にランダムに選択された場合や、複数個の電子を動かした場合は、2 重占有サイト数の増減が激しくなる。 U/t が大きく Gutzwiller パラメータが大きい場合には、一度 2 重占有サイト数が 0 である状態がサンプリングされると、新たに作られる状態のほとんどが多数の 2 重占有サイトを持つ為、ほとんどがアクセプトされずにモンテカルロサンプルには含まれない。一般にアクセプト率は 0.5 程度が最も効率良くモンテカルロ計算が収束することが知られており、このような場合は、膨大な N_{MCS} を用いてもなかなか収束が得られなくなってしまう。

他方、電子状態を $|\alpha\rangle$ から $|\alpha'\rangle$ に変化させる際に 1 電子状態だけ変化させる拘束条件をつけることで、2 重占有サイト数の変化は +1, 0, -1 と制限され、特定の状態にトラップされることを避けることが出来る。これにより、アクセプト率を上昇させることが出来る。

2.6 ハミルトニアン of べき乗計算の高速化

式 (2.29) において、ハミルトニアンの要素計算で最も高負荷となるのが、

$$\langle\alpha|\mathcal{H}^3|\Psi_0\rangle, \quad (2.45)$$

である。上式に恒等演算子 $\sum_{\beta}^{\text{all}} |\beta\rangle\langle\beta| = 1$ を代入し、

$$\sum_{\beta,\gamma,\delta}^{\text{all}} \langle\alpha|\mathcal{H}|\beta\rangle\langle\beta|\mathcal{H}|\gamma\rangle\langle\gamma|\mathcal{H}|\delta\rangle\langle\delta|\Psi_0\rangle, \quad (2.46)$$

と変形を行う。一定の $|\alpha\rangle$ に対して $\langle\alpha|\mathcal{H}|\beta\rangle$ となる $|\beta\rangle$ の数は N 程度であるから、式 (2.46) において、 $|\delta\rangle$ に関しては N^3 程度の状態について足し合わせる必要がある。そこで数値計算上で問題となるのが、 $\langle\delta|\Psi_0\rangle$ の計算量である。

ここで $\langle\gamma|\mathcal{H}|\delta\rangle\langle\delta|\Psi_0\rangle$ 部分の計算量を押さえる方法について考える。要素計算の結果、 $\langle\gamma|\mathcal{H}|\delta\rangle \neq 0$ となる $|\gamma\rangle$ と $|\delta\rangle$ には、

1. ポテンシャルエネルギーの項を介して結び付く電子状態
2. 運動エネルギーの項を介して結び付くひとつの電子が最近接サイトに遷移した電子状態

の 2 つのカテゴリーがある。ポテンシャルエネルギーの項を介して結び付くのは $|\gamma\rangle = |\delta\rangle$ の場合のみで、この計算は問題ない。運動エネルギーの項で結び付く $|\gamma\rangle$ と $|\delta\rangle$ の電子状態はわずか 1 電子配置だけ異なる。ここで前述のアクセプト比の計算で使用した逆行列を求める手法の適応を行えば、最初にポテンシャルエネルギー

ギーの項を介して結び付く電子状態に関してのみ $O(N^3)$ の逆行列の計算を行うことで、その他の遷移積分を介して結び付く電子状態に関しては $O(N)$ の演算を行えばよいこととなる。

この要素計算時の内積計算とモンテカルロサンプリング時の内積は、共に 1 電子しか動かさないため同一ルーチンにすることが可能で、結果として重点的に高速化することが可能になった。

第3章 変分モンテカルロ法と数値厳密対角化の比較

本章では第2章で説明した変分モンテカルロ近似の妥当性を示す為、いくつか計算結果を示す。式 (2.7) の状態ベクトルにおける $p=0$ での計算は、H.Shiba と H. Yokoyama の論文 [17, 18] ならびに H. Ohtsuka の論文 [19] とモデル及び波動関数が同一であるため、定量的に比較を行い一致することを確認した。しかし $p=1, 2$ 次の計算結果については過去に同種の計算が行われていないので、奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科複雑系解析学講座の伊東久氏が行った数値厳密対角化法による結果と比較した。

3.1 相関エネルギー比

変分原理としてよく知られているように、いかなる状態ベクトルによるハミルトニアン期待値も、基底状態エネルギー固有値より小さくなることはあり得ず、一致する場合は、その状態ベクトルは基底状態であることが分かる。このことから、近似の精度がどの程度改善されたか確認するひとつの手段として相関エネルギー比の評価が挙げられる。相関エネルギー比 x_p は、

$$x_p = \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_\phi}{\varepsilon_{exact} - \varepsilon_\phi}, \quad (3.1a)$$

$$\varepsilon_p = \frac{\langle \Psi_p | \mathcal{H} | \Psi_p \rangle}{\langle \Psi_p | \Psi_p \rangle}, \quad (3.1b)$$

$$\varepsilon_\phi = \frac{\langle \phi | \mathcal{H} | \phi \rangle}{\langle \phi | \phi \rangle}, \quad (3.1c)$$

で表される。ここで ε_{exact} は厳密解によるエネルギーである。この相関エネルギー比 x_p は、基準となる ε_ϕ から近似を進めたことでどれだけ数値厳密対角化法による解に近づいたかを評価する。

変分モンテカルロ法プログラムの検証用に用いたシステムサイズは、1次元系は14サイト、2次元系は10サイトである。変分モンテカルロ法によるプログラムは数値厳密対角化法よりも遥かに大きな系を扱うことが可能であり、とりわけ1次元系においては Lieb と Wu の論文 [27] により厳密な基底状態のエネルギーが解析的に得られていることから、より大きな系で x_p の解析を行うことができる。しか

し、以下に述べる理由からより小さい系において計算を行った。まず第一に、 x_p だけでなくスピン、電荷相関関数など解析的表式が得られていない物理量の分析も行うことが挙げられる。第二に、2次元系と比較検討するために、2次元系(厳密な基底状態エネルギーの解析解が得られていない)と同程度のシステムサイズでの計算を行うことが挙げられる。2次元系においてはもちろん、スピン、電荷相関関数を求めるために数値厳密対角化によって計算する必要があるが、この計算が可能なシステムサイズは、現在の世界最大クラスのコンピュータを用いても20サイトまでである。

H.Ohtsukaによる論文[19]にて、1,2次元10サイトでドーピング濃度0,10,20%におけるエネルギー期待値、スピン相関関数、電荷相関関数が計算されている。H. ShibaとH. Yokoyamaの論文[17, 18]には1次元14サイトにおけるエネルギー期待値の ξ 依存性が計算されており、これらの結果と本研究の結果を定量的に比較する為に、1次元系については14サイト、2次元系においては10サイトを選択した。なお、本章の計算はH. ShibaやH. Yokoyamaの論文[17, 18]ならびにH. Ohtsuka[19]の論文と同一条件とするために全て周期的境界条件を用いて行なった。

最初に1次元14サイトにおける x_p を表3.1に示す。モンテカルロサンプル数は50,000個である。

表 3.1: 1次元 $N = 14$ における相関エネルギー比 x_p

U/t	2	4	6	8	10
x_0	84.2%	85.1%	85.7%	89.4%	92.7%
x_1	93.1%	93.6%	94.9%	97.5%	98.9%
x_2	98.5%	98.7%	98.7%	99.5%	99.8%

Gutzwiller 近似での結果 x_0 は H. Shiba や H. Yokoyama の論文 [17, 18] と完全に一致した。 x_0 は U/t が大きいほど 100% に近づいている。最も低い場合ですら $x_0 = 84.2\%(U/t = 2)$ であり、このように比較的相関が弱い領域から強相関領域まで広範囲に渡って比較的良い x_0 を与えることが分かる。 x_1 においても x_0 と同様に U/t が大きいほど数値厳密解に近づいている。 $U/t = 10$ においては $x_0 = 92.7\% \rightarrow x_1 = 98.9\%(+6.2\%)$ 、 $U/t = 2$ においては $x_0 = 84.2\% \rightarrow x_1 = 93.1\%(+8.9\%)$ と改善しており、高次の状態ベクトルを用いることは特に弱相関領域のエネルギー期待値の改善により効果的であることが分かる。そして $U/t = 10$ においては $x_1 = 98.9\%$ であり、ほぼ厳密解と同じエネルギー期待値が得られている。最後に x_2 では、全ての U/t において $x_2 \simeq 100\%$ の結果が得られた。 $p = 2$ での計算の特筆すべきは、 $p = 0$ の計算で見られたような x_p の U/t 依存性が極めて小さくなる点である。

次に、2次元10サイトでの x_p を示す。モンテカルロサンプル数は100,000個である。

表 3.2: 2次元 $N = 10$ における相関エネルギー比 x_p

U/t	2	4	6	8	10
x_0	82.5%	84.2%	84.4%	85.3%	88.3%
x_1	95.4%	95.3%	94.6%	95.0%	96.0%
x_2	99.8%	98.1%	96.6%	96.9%	97.4%

x_0 は H. Ohtsuka の論文 [19] と完全に一致した。 x_0 は U/t が大きいほど数値厳密解に近づいている。また全ての U/t において比較的良い x_0 を与えていることが分かる。これは 1次元系と同様の傾向である。全ての U/t において、1次元系の x_1 より 2次元系のそれは若干小さい。また 1次元系とは異なり、 x_1 は U/t に対して増加関数となっていない。 x_0 から x_1 への増加及び x_1 から x_2 へのそれは $U/t = 2, 4, \dots, 10$ の順に $+12.9\%, +11.1\%, +10.2\%, +9.7\%, +7.7\%$ 及び $+4.4\%, +2.8\%, +2.0\%, +1.9\%, +1.4\%$ となっており、 U/t が小さい方が x_p の増加は大きい。 $p = 1, 2$ の場合も、2次元系は 1次元系よりも x_p が小さくなっている。これらの結果より、1, 2次元系共に $\mathcal{H}$ のべき乗による状態ベクトルの補正は Gutzwiller 近似があまり良くない弱相関領域において特に効果的であり、 $p = 2$ においては $U/t \leq 10$ の全ての領域において、100% 厳密解に近い相関エネルギー比が得られることが分かる。

以上の様に 1次元 14 サイトと 2次元 10 サイトにおける相関エネルギー比を調べることで、べき乗を用いた変分モンテカルロ法の有効性を確認した。しかし、例えば有限次の Configuration Interaction 法では、システムサイズ N の増加と共に相関エネルギー比が低下し、 $N = \infty$ の極限ではゼロになることが知られている。近似精度は N に依存しないこと (size-consistency) が望ましい。サイズ依存性を確認するために、1次元 64 サイトにおける相関エネルギー比 x_0, x_1 を計算し、これを表 3.3 に示す。モンテカルロサンプル数は 1次元 14 サイトにおける結果と同様に 50,000 である。

表 3.3: 1次元 $N = 64$ における相関エネルギー比 x_0, x_1

U/t	2	4	6	8	10
x_0 (1D64site)	84.6%	80.4%	81.8%	85.4%	89.1%
x_1 (1D64site)	92.2%	88.6%	88.7%	91.6%	94.4%

表 3.1 と表 3.3 を比較すると、1次元 14 サイトでの相関エネルギー比より 1次元 64 サイトのそれが数 % 良くない。しかしながら、1次元 64 サイトのヒルベルト空間は 1次元 14 サイトのそれよりも 4^{50} 倍大きいことを考慮すると 1次元 64 サイトにおける x_0, x_1 ともかなり良い近似を与えていると言える。1次元系における相関

エネルギー比のシステムサイズ依存性は小さく、1次元 64 サイトにおいてもこの計算手法が有効であると言える。べき乗の次数 K が有限なのにもかかわらずサイズ依存性が小さいのは、ハミルトニアンが N に比例した演算子であることに起因すると推測される。

2次元 64 サイトにおいては、比較の対象となる厳密解を得ることが現在の計算機では事実上不可能なのでここでは比較できない。しかし、1次元系との同様の理由から、サイズ依存性は小さいことが期待される。

3.2 エネルギー期待値の ξ 依存性

第2章で述べたように、Gutzwiller 因子や Jastrow 因子を用いた変分モンテカルロ法の欠点は、特定の波動関数を仮定しているために、考察されるヒルベルト空間が限られてくることにある。この”バイアス”を補正するためにも、べき乗が重要であった。この補正効果を確認する為、図 3.1 に $U/t = 4$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性を示す。

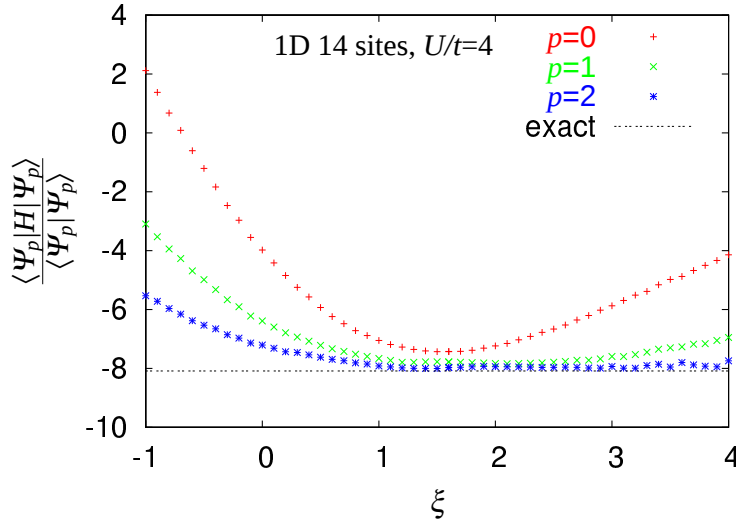


図 3.1: 1次元系、 $U/t = 4$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性

E. S. Heeb と T. M. Rice の論文 [20] では本研究とは異なるハミルトニアン、異なる第0近似ではあるが図 3.1 と同種の $p = 0, 1, 2$ を用いた期待値計算が行われている。しかしその計算点はわずか数点であったので、本研究では変分パラメータの刻みをより小さくして系統的に調べた。

$p = 0$ における結果に関しては、H. Shiba と H. Yokoyama の論文 [17, 18] と全ての ξ で完全に一致することを確認した。図 3.1 内の”exact” で表した線は数値厳密解のエネルギーである。なお $p = 0, \xi = 0$ における期待値は、一体近似によ

る期待値 $\langle \phi | \mathcal{H} | \phi \rangle / \langle \phi | \phi \rangle$ に等しい。表 3.1 , 3.2 で示した相関エネルギー比はこの $p = 0, \xi = 0$ (Gutzwiller による補正効果が 0 の場合) でのエネルギー期待値から何 % 改善したかを示している。

まず $U/t = 4$ において、 $p = 0$ でのエネルギー期待値が最小となる変分パラメータは $\xi = 1.6$ である。 $\xi = 1.6$ をピークにエネルギー期待値が数値厳密解から遠ざかる。 $p = 1$ の場合、全ての ξ において $p = 0$ によるエネルギー期待値から著しく改善している。また $p = 1$ においては、 $\xi \simeq 1.6$ の比較的広い領域で、最低エネルギー近傍の値を得ていることが分かる。最後に $p = 2$ においては $p = 1$ よりもさらに扁平になっており、エネルギー期待値の ξ 依存性が小さくなっている。この結果は、低次の近似で用いた状態ベクトルに強く依存しないバイアスフリーな結果が得られることを示す。

図 3.2 に $U/t = 8$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性を示す。

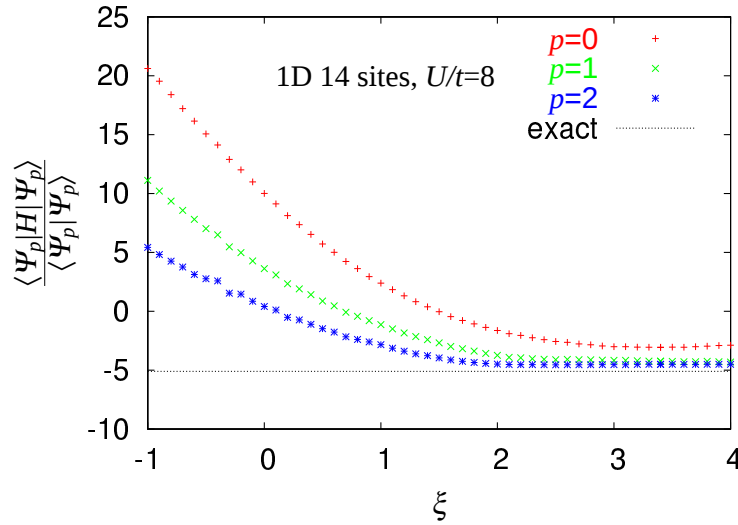


図 3.2: 1次元系、 $U/t = 8$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性

$U/t = 8$ の場合も $U/t = 4$ の場合と同様の議論が成立している。 $p = 0$ において $\xi = 3.2$ でエネルギー期待値が最小となり、 $U/t = 4$ の場合に比べて ξ の値が大きくシフトしていることがわかる。このように U/t が大きくなると最低エネルギーを得る ξ は大きくなり、より 2 重占有サイトを排除するように働く。

図 3.3 に 2次元系の $U/t = 4$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性を示す。

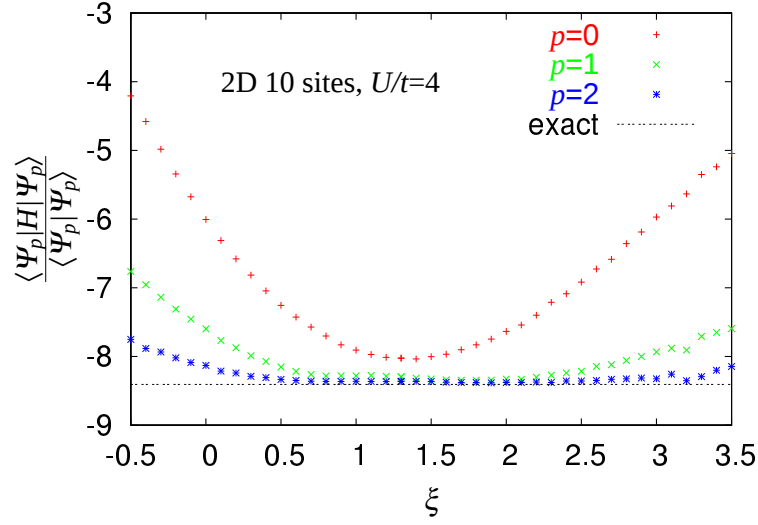


図 3.3: 2次元系、 $U/t = 4$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性

$U/t = 4$ において、 $p = 0$ でのエネルギー期待値が最小となる変分パラメータは $\xi = 1.4$ である。1次元系と同様にこの値をピークとして、エネルギー期待値が数値厳密解から遠ざかる。 $p = 1, 2$ となるに従いより数値厳密解に近づいており、エネルギー期待値の ξ 依存が小さくなっている。これは1次元系の結果と同様に、低次の近似で用いた状態ベクトルに強く依存しないバイアスフリーな結果が得られたことを示す。

図 3.4に $U/t = 8$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性を示す。

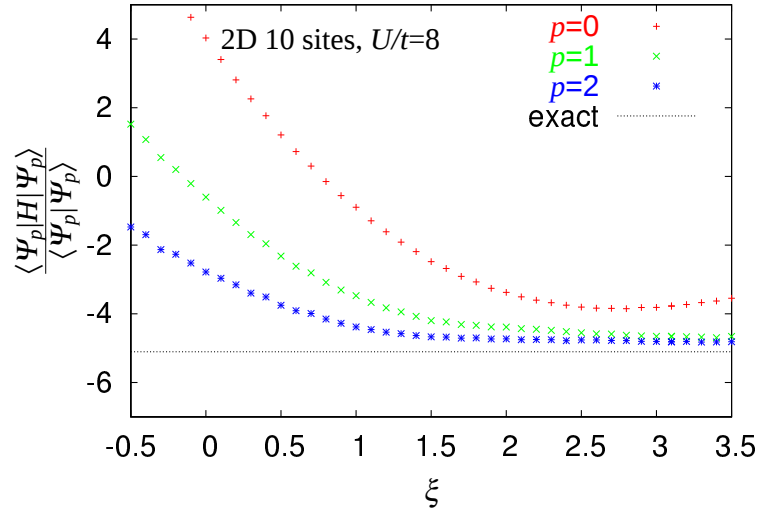


図 3.4: 2次元系、 $U/t = 8$ におけるエネルギー期待値の ξ 依存性

$p = 0$ において $\xi = 2.6$ で最低エネルギーが得られる。この結果についても 1次元系と同様で、 U/t が大きくなるほど ξ が大きくなる傾向が見られる。また、 $p = 1, 2$ となるに従って厳密解に近づき、エネルギー期待値の ξ 依存性が小さくなる。

以上の結果から、ベキ乗を作用させた状態ベクトルは 1, 2次元系ともに、また幅広い U/t にて有効であり、さらには第 1 近似の Gutzwiller 関数に強く依存しなくバイアスの少ない状態ベクトルであることが確認できた。

3.3 相関関数

相関エネルギー比以外で近似の改善を判断する材料として、スピン及び電荷相関関数を挙げるができる。前述の相関エネルギーは、ハバードモデルにおいては短距離相関のみに依存する為、相関関数から相関エネルギーでは得られない情報が得られる。そこで 1次元 14 サイト、2次元 10 サイトで $p = 0, 1, 2$ の各状態ベクトルを用いた際の、スピン相関関数ならびに電荷相関関数の評価を行った。まず評価したスピンの z 成分 S_z の相関関数は、

$$\eta(r) = \langle \Psi_p | S_z(i) S_z(j) | \Psi_p \rangle = \langle \Psi_p | \left(c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} - c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow} \right) \left(c_{j\uparrow}^\dagger c_{j\uparrow} - c_{j\downarrow}^\dagger c_{j\downarrow} \right) | \Psi_p \rangle, \quad (3.2)$$

と定義され、電荷相関関数は、

$$\zeta(r) = \langle \Psi_p | \hat{q}_i \hat{q}_j | \Psi_p \rangle = \langle \Psi_p | \left(1 - \sum_{\sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \right) \left(1 - \sum_{\sigma} c_{j\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \right) | \Psi_p \rangle, \quad (3.3)$$

と定義される。ここで r はサイト i, j 間の距離である。なおハバードモデルの基底状態はスピンシングレット状態と知られており、その場合スピン相関関数は S_z の相関関数の 3 倍となる。

3.3.1 1次元系のスピン相関関数

最初に $U/t = 4$ における 1次元スピン相関関数を図 3.5 に示す。図中の r はサイト間距離を示す。

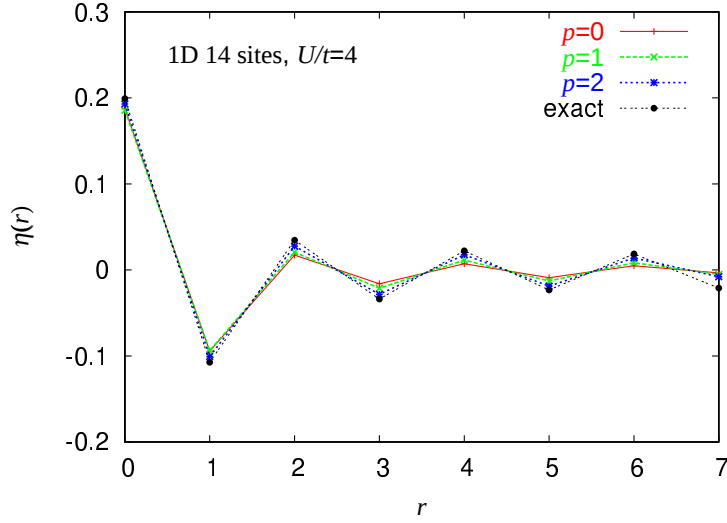


図 3.5: 1次元系のスピン相関関数、 $U/t = 4$

Gutzwiller 関数は、同一サイトにおける 2 重占有を排除するという局所的な補正を与えるものであり、長距離相関を小さく見積もっていることが分かる。いずれの r においても $p = 0, 1, 2$ というように近似を進める毎に数値厳密解に近づいており、これは前節で示した相関エネルギー比の結果と同じ傾向である。特に長距離成分においてはべき乗の補正による著しい改善が見られる。 $p = 0$ においては厳密解の定性的な振る舞いを良く再現しており、 $p = 2$ においては厳密解にほぼ一致していることが分かる。

次に $U/t = 8$ における 1 次元スピン相関関数を図 3.6 に示す。

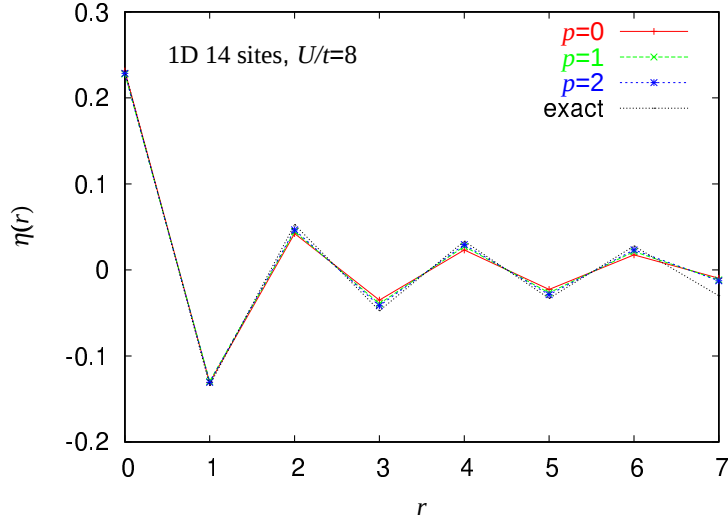


図 3.6: 1次元系のスピン相関関数、 $U/t = 8$

$U/t = 4$ の場合に比べて、Gutzwiller 関数の近似精度が良くなっていることがわかる。他の点については、 $U/t = 4$ と全く同種の議論が成立する。

3.3.2 1次元系の電荷相関関数

図 3.7 に $U/t = 4$ における 1次元電荷相関関数を示す。

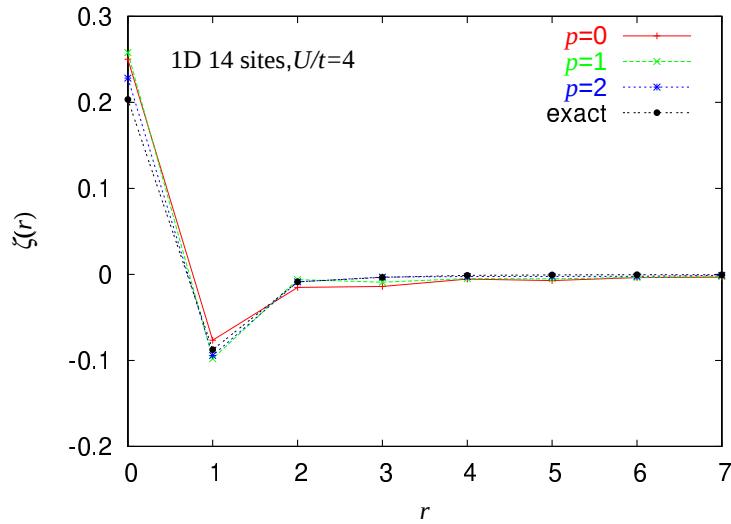


図 3.7: 1次元系の電荷相関関数、 $U/t = 4$

Gutzwiller関数は、長距離成分を大きめに見積もっているが、大体の傾向は再現できている。 $r \neq 0$ においては、 $p = 2, 1, 0$ の順に数値厳密解に近い結果が得られている。しかし $r = 0$ においては数値厳密解に近い順に $p = 2, 0, 1$ となっており、順序の逆転が起きている。このように $r \neq 0$ において若干順序の逆転があるものの、 $p = 0$ では厳密解の定性的な振る舞いを良く再現しており、 $p = 2$ では厳密解にほぼ一致していることが分かる。

次に図 3.8 に $U/t = 8$ での 1 次元電荷相関関数を示す。

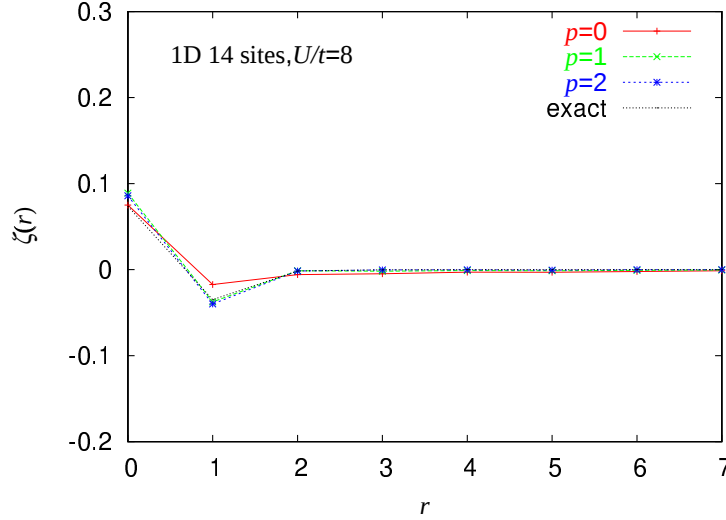


図 3.8: 1 次元系の電荷相関関数、 $U/t = 8$

$r = 1$ にて、 $p = 0$ の ζ が厳密解のそれと少し離れているが、べき乗補正で改善していることが分かる。他の点については、 $U/t = 4$ と全く同種の議論が成立する。

3.3.3 2次元系のスピン相関関数

図 3.9 に $U/t = 4$ における 2 次元 10 サイトのスピン相関関数を示す。

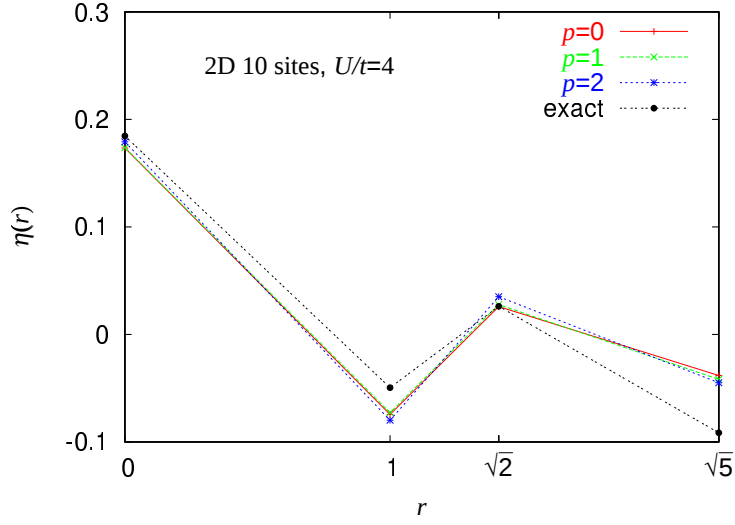


図 3.9: 2次元系のスピン相関関数、 $U/t = 4$

$p = 0, r = 0$ における相関関数については H. Ohtsuka の論文 [19] と一致している。1次元系と同様に、 $p = 0$ においては厳密解の定性的な振る舞いを良く再現している。しかしべき乗補正については、1次元よりも小さい。

次に、図 3.10 に $U/t = 8$ での2次元のスピン相関関数を示す。

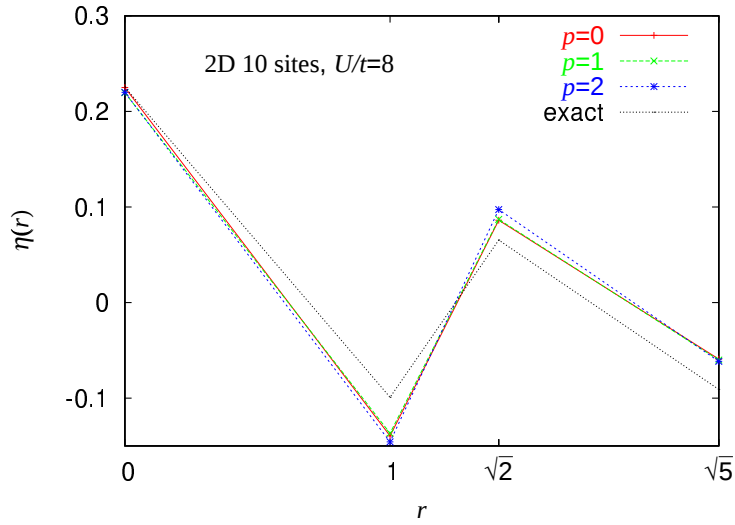


図 3.10: 2次元系のスピン相関関数、 $U/t = 8$

$U/t = 8$ の結果も $U/t = 4$ のそれと同様のことが言える。

3.3.4 2次元系の電荷相関関数

図 3.11 に $U/t = 4$ での 2 次元 10 サイトの電荷相関関数を示す。

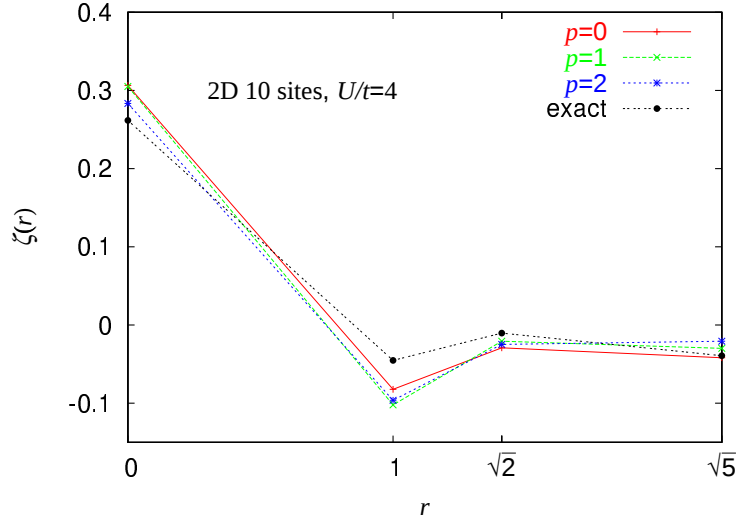


図 3.11: 2次元系の電荷相関関数、 $U/t = 4$

電荷相関関数においても、スピン相関関数同様に $p = 0$ において厳密解の定性的な振る舞いを良く再現している。しかし、べき乗補正は 1 次元系のそれより小さい。

図 3.12 に $U/t = 8$ での 2 次元 10 サイトのスピン相関関数を示す。

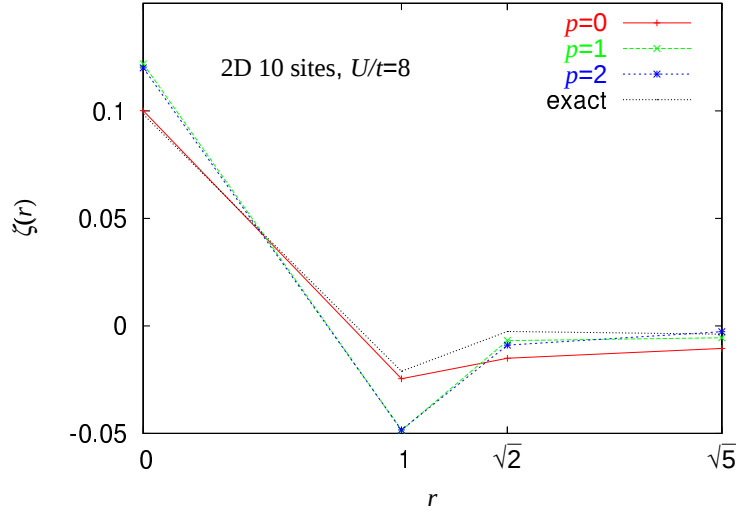


図 3.12: 2次元系の電荷相関関数、 $U/t = 8$

$U/t = 8$ の結果も $U/t = 4$ のそれと同様のことが言える。

以上をまとめると、1次元系における η については、 $p = 0$ においては全 U/t 領域で厳密解の定性的な振る舞いをよく再現しており、 $p = 2$ においては厳密解にほぼ一致した。1次元系における ζ についても同様の議論が成立する。

2次元系における η については、 $p = 0$ においては全 U/t 領域で厳密解の定性的な振る舞いを良く再現している。べき乗補正は、全 U/t 領域において1次元系のそれより小さい。2次元系における ζ についても同様の議論が成立する。

第4章 静電場印加による非線形分極効果

最近 1 次元強相関電子系において極めて大きな 3 次の非線形光学効果が観測されている [3, 4, 28, 29]。光デバイスの材料として、大きな光学的非線形性は重要な性質であり、低次元強相関電子系は未来の光学素子として注目を集めている。Y. Mizuno, K. Tsutui, T. Tohyama, S. Maekawa ら並びに G. P. Zhang により、スピン-電荷分離が、非常に大きな 3 次の感受率の起源であることが示されている [21, 22]。これら両研究とも数値厳密対角化法を用いており、共に 8 サイトモデルの解を元に結論が導かれている。しかし、共役高分子系の研究により 3 次の光学感受率の大きさはシステムサイズ N に強く依存していることが示されている [23, 24, 25]。3 次の感受率はシステムサイズ N が小さい場合、 N に対して 1 よりも大きな指数で増加し、 N が十分大きな場合は N に比例する [23, 24, 25]。このような理由から、Y. Mizuno, K. Tsutui, T. Tohyama, S. Maekawa ら並びに G. P. Zhang の示す結論を、3 次の光学感受率が N に比例する十分大きなシステムサイズにおいて確認することが重要である。本研究ではこのシステムサイズ問題を克服するために、第 2,3 章にて説明した変分モンテカルロ法を採用した。さらに光励起を直接取り扱わずに、光励起効果と密接に関連すると考えられる静電場効果の計算を行った。静電場印加時の分極効果を考慮するにあたって第 2,3 章で用いたハミルトニアンと状態ベクトルの拡張を行ったが、これらについては次節以降に説明する。

4.1 電子と静電場が結合したハバードハミルトニアン

第 2 章にて取り扱った低次元強相関電子系を記述する標準的なハバードハミルトニアンに、静電場印加の項を加えたハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \mathcal{T} + \mathcal{U} - E\hat{P}, \quad (4.1)$$

と表される。右辺の第 1 項と第 2 項は式 (2.2a), (2.2b), (2.2c) で表され、強相関電子系の標準モデルであるハバードハミルトニアンである。式 (4.1) の第 3 項は電子と静電場が結合した項で、双極子近似を用いている。 E は外部から印加した電場

の大きさで、また分極演算子 $\hat{P}$ は、

$$\hat{P} = e \sum_i \hat{q}_i z_i, \quad (4.2a)$$

$$\hat{q}_i = 1 - \sum_{\sigma} c_{i,\sigma}^{\dagger} c_{i,\sigma}, \quad (4.2b)$$

と表される。ここで、 q_i は i サイトの電荷演算子で、 z_i は i サイトの位置ベクトルの外場印加方向成分である。また e は素電荷である。

4.2 状態ベクトル

第 2,3 章で示したように、特に 1 次元系では $p = 2$ の状態ベクトルでの相関エネルギー比、スピン、電荷相関関数が厳密解に極めて近く、また選択した Gutzwiller 関数の変分パラメータに強く依存せずバイアスの無い良質な近似を与えることが分かった。本来なら第 3 章の予備計算により得られた知見から $p = 2$ の状態ベクトルを採用すべきであるが、想定していた以上のモンテカルロサンプルが必要であり、2 次までのべき乗を用いた計算が困難であることが分かった。本論文では、電場が弱い線形領域での結果から分極の線形成分を求め、この線形成分と分極の微少な差として非線形型分極率を求めた。そのために総計誤差を極めて小さく抑える必要があるが、これはすなわちモンテカルロサンプル数の増加を意味する。これに加えて、分極を考慮したモンテカルロ計算は特定の配置に留まり、アクセプト比が著しく低下する傾向があるため、異なる乱数の種を用いた複数回の計算結果の平均を取る必要があり、これも大幅にモンテカルロサンプル数を増加させる。以上の理由により、べき乗法を用いて現実的な計算時間で十分なモンテカルロサンプルを取ることは出来なかった。

4.2.1 一体のハミルトニアンの基底状態 (第 0 近似)

第 0 近似の状態ベクトル $|\phi\rangle$ には式 (4.1) の一体部分

$$\mathcal{T} - E\hat{P}, \quad (4.3)$$

の基底状態を用いた。これは、まず第 0 近似において一体近似での静電場印加効果を探り入れ、次に式 (4.1) のハミルトニアンを用いた計算で多体効果を取り込むという考えに基づく。

4.2.2 変分試行関数の適用 (第 1 近似)

第 2 章で示した方法と同様に、 $|\Psi\rangle = F_G|\phi\rangle$ を第 1 近似とする。Gutzwiller 因子 F_G は式 (2.4a) で表される。ここで問題となるのは、標準的なハバードハミル

トニアンにおいて良い近似を与えていた Gutzwiller 因子が、考察する静電場と結合したハバードハミルトニアンにおいても有効かという点である。この点については、“2重占有サイトを減らす”という Gutzwiller 因子の物理的役割は電場を考慮した場合も同じであり、同様の効果が期待出来る。事実、本章では十分小さな電場を用いた場合は、静電場と結合したハミルトニアンで求めた Gutzwiller パラメータ ξ は、 $E = 0$ の場合と誤差以内で一致していた。このことは上記考察を裏付ける。

4.3 結果

4.3.1 1次元

図 4.1 に分極 $P = \langle \Psi | \hat{P} | \Psi \rangle / \langle \Psi | \Psi \rangle$ の電場依存性を示す。

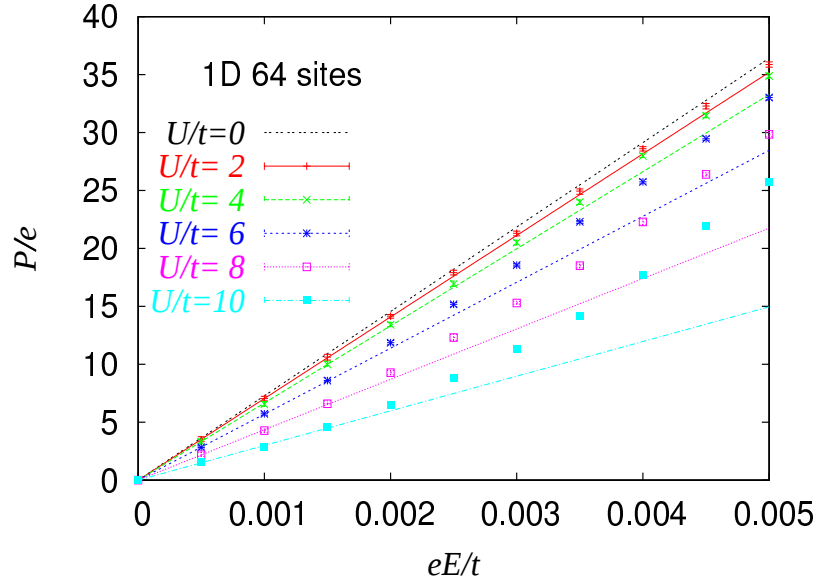


図 4.1: 1次元 $N = 64$ における P の E 依存性

ここで、格子長を長さの単位としており、そのため $P/e, eE/t$ は無次元である。システムサイズは 3 次の光学感受率が N に比例するのに十分な大きさであり、かつ計算量的に適当な 64 サイトを採用した。また 1 次元鎖の方向に外場を印加した。以降の非線形分極に関する数値解析では、少なくとも 100,000 個のモンテカルロサンプルを集めて計算を行なった。そしてこれらのサンプルは、少なくとも 10 個の異なる乱数の種を元に生成されている。さらにこのモンテカルロサンプルを 5 つの部分サンプルに等分し、各サンプルにおける分極の平均値の最大値と最小値

を分極 P のエラーバーとして取った。図 4.1 中にエラーバーを記載したが、ポイントに重なって隠れるくらい極めて小さく抑えられていることが分かる。求めた $(eE/t, P/e)$ 点列に対し、最小自乗法を用いて曲線 $P/e = \chi^{(1)}(eE/t) + \chi^{(3)}(eE/t)^3$ でフィッティングを行ない、線形感受率 $\chi^{(1)}$ と 3 次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ を求めた。図中には非線形効果を明確にする為に線形項 $\chi^{(1)}E$ に相当する直線を記載した。

図 4.1 より、 $\chi^{(1)}$ は $U/t \leq 4$ において U/t に弱く依存しており、 $U/t \geq 6$ の領域では U/t が大きくなるに従って著しく減少していることがわかる。一方 $\chi^{(3)}$ による非線形効果は U/t が大きくなるに従って著しく大きくなっている。特にこの非線形現象は $U/t = 10$ のグラフにて顕著に見て取れる。

次にこの非線形分極効果をより定量的に見るために、図 4.2 に $\chi^{(3)}$ の U/t 依存性を示す。 $\chi^{(3)}$ は $U/t \leq 4$ では緩やかに上昇し、 $U/t \geq 6$ では、 U/t の関数として急峻に立ち上がっている。A. G. Rojo と G. D. Mahan による論文 [30] の 8 サイトモデルでの数値厳密対角化法による計算では、 $U/t = 1$ 付近で小さなピークが現れている。この比較的弱相関領域における非線形分極現象も大変興味深いが、本研究ではより強い相関領域での現象が研究対象であるためここでは取り扱わない。

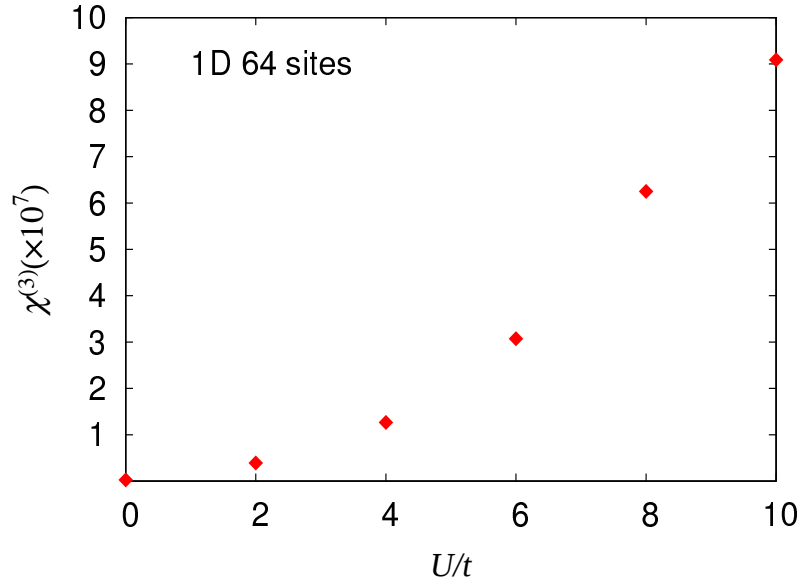


図 4.2: 1次元 $N = 64$ におけるの $\chi^{(3)}$ の U/t 依存性

次に図 4.2 のように $\chi^{(3)}$ が U/t に強く依存する原因について検討する。そこで式 (4.2a) の定義より、分極と直接的に結び付く電荷 $q_i = \langle \Psi | \hat{q}_i | \Psi \rangle / \langle \Psi | \Psi \rangle$ の分布を示し考察する。まずはじめに、線形応答領域について考える。図 4.3 に $U/t = 0, 2, 6, 10$ における静電場 $E = 0.001$ での電荷 q_i の分布を示す。図 4.1 より $E = 0.001$ では全ての U/t において統計誤差の範囲内で分極値が直線 $\chi^{(1)}(eE/t)$ 上に乗っており、この $E = 0.001$ を線形応答領域と見なすことが出来る。

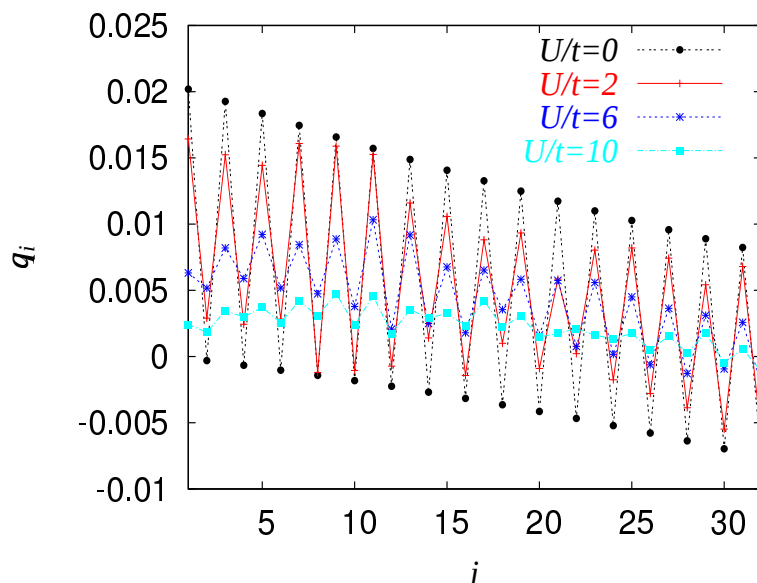


図 4.3: 1次元 $N = 64$, $E = 0.001$ における電荷密度分布. 左半分を描画

図 4.3 より、 $U/t = 0$ において電荷密度波 (CDW) 的な電荷密度分布が電場によって誘起されていることが分かる。この電荷密度分布の特性は、以下のように解釈される。 $U/t = 0$ においては、バンド描像が成立する。 $1/2$ フィールドで静電場も印加していない場合は、基底状態は図 4.4 の模式図の様にバンドが部分的に占有されており金属状態である。

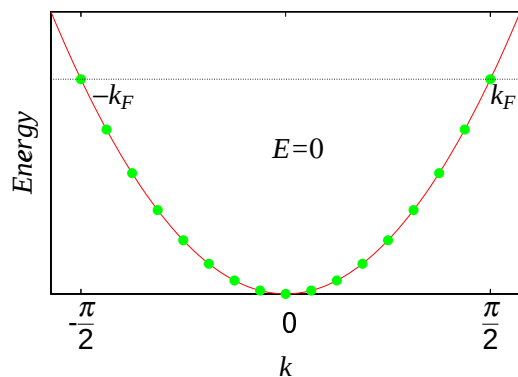


図 4.4: バンド描像 ($E = 0$) の模式図

この基底状態に対し弱い静電場を印加することにより、フェルミレベル付近の電子がフェルミレベル付近の空の準位に励起される。この励起には図 4.5 に示す 2つ

のパターンがある。ひとつは図 4.5(a) に示した $-k_F(k_F)$ 付近の電子が $-k_F(k_F)$ 付近の空準位に励起されるもの、もうひとつは図 4.5(b) に示した $-k_F(k_F)$ 付近の電子が $k_F(-k_F)$ 付近の空準位に励起されるものである。この 2 つのパターンの励起のみに限られるのは 1 次元系の特徴である。

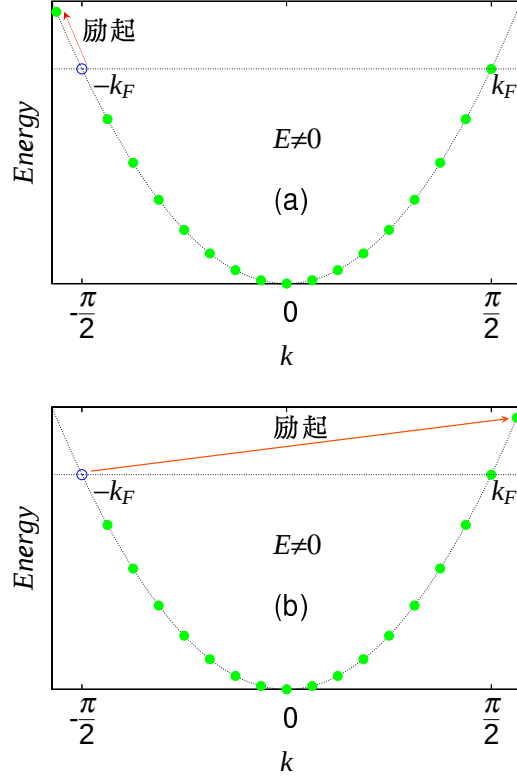


図 4.5: 弱電場による励起の模式図

この模式図はあくまで例であり、 $-k_F$ 近傍の波数を持つ電子だけでなく k_F 近傍の波数を持つ電子も同様に励起される。フェルミ波数 k_F は $\pm\pi/2$ であるので、系全体として $k=0$ 周辺 (図 4.5(a) 参照) と $k=\pm\pi$ 周辺 (図 4.5(b) 参照) の波数を持った電荷分布が誘起され、net 成分 ($k \approx 0$) と交替成分 ($k \approx \pm\pi$) が共存する CDW 的な電荷密度分布が生じる。この特徴的な電荷密度分布は、小さなクーロンギャップ ($U/t \leq 4$) が出来た場合でも変化していないことが分かる。さらに $U/t \leq 4$ において、 U/t が大きくなる毎に電荷密度の振幅が小さくなっているが、空間的電荷密度分布の U/t に依存性は弱い。以上の理由から $U/t \leq 4$ の場合、弱い外場に対する応答はバンド描像で説明することが出来ることが分かる。

$U/t \geq 6$ においては、図 4.3 から分かるように全てのサイト i における電荷密度 q_i の振幅が、 U/t が大きくなる毎に著しく減少していることが分かる。さらに U/t が増加するにつれて交替成分の大きさが急激に減少し、緩やかに右下がりに変化

する net 成分より著しく小さくなる。その結果、 $U/t = 10$ では CDW 的な電荷密度分布は観測されない。これらの結果は、強相関領域 $U/t \geq 6$ においては、前述のバンド描像に基にした解釈が妥当でないことを示唆している。

次に非線形領域について考える。非線形性の起源を考察する為に、分極 P を線形成分 $P^{(L)}$ と非線形成分 $P^{(NL)}$ に分ける。

$$P = P^{(L)} + P^{(NL)}, \quad (4.4a)$$

$$P^{(L)} = e \sum_i q_i^{(L)} z_i, \quad (4.4b)$$

$$P^{(NL)} = e \sum_i q_i^{(NL)} z_i. \quad (4.4c)$$

ここで、 $q_i^{(L)}$ と $q_i^{(NL)}$ は q_i の線形ならびに非線形成分であり、各々 $P^{(L)}$ と $P^{(NL)}$ と直接結びついている。図 4.1 から分かるように、静電場 $E = 0.001$ において非線形項 $q_i^{(NL)}$ は無視することができる。そこで、例えば $E = 0.005$ における $q_i^{(NL)}$ を以下のように定義する。

$$q_i^{(NL)}(E = 0.005) = q_i(E = 0.005) - 5q_i(E = 0.001). \quad (4.5)$$

以上の様にして非線形電荷分布を抽出した結果を図 4.6 に示す。図中には $U/t = 6, 10$ での $q_i^{(NL)}(E = 0.005)$ を示したが、 $U/t = 2$ においては非線形性が小さく、非線形成分を抽出する際に十分な精度が得られなかった為省略した。

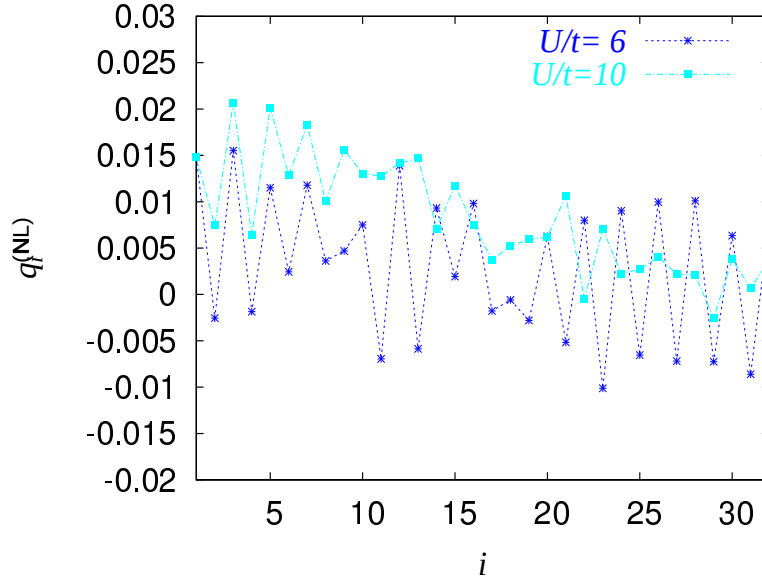


図 4.6: 1 次元 $N = 64$ 、 $E = 0.005$ における電荷の非線形成分 $q_i^{(NL)}$

図 4.6 より、 $q_i^{(\text{NL})}$ の空間的な分布は図 4.3 に示した $q_i (= q_i^{(\text{L})})$ のそれと似通って net 成分が交替成分よりもはるかに大きいことが分かる。 $q_i^{(\text{NL})}$ において電荷の交替成分が一部見られるが、この交替の位相が全体では一定ではなく、これは統計誤差によるものと考えられる。これらの結果を踏まえて、 $U/t \geq 6$ における線形および非線形応答は以下のように説明される。

$E = 0$ での 1 次元電子系における強相関極限の基底状態は、強いクーロン斥力のため図 4.7 のように電子は各サイトに局在し、系全体として電荷を持たない。

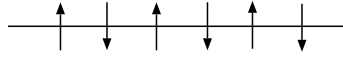


図 4.7: 1 次元系の強相関極限における基底状態の模式図

この様な電荷が 0 の状態 (モット絶縁体) には、弱い電場により分極は発生することはない。しかし U/t が有限の場合には、以下に示すように電荷を持つ電子配置が量子ゆらぎとして含まれる。図 4.8 に示したような、すべての電子配置 $|n\rangle$ と表す)

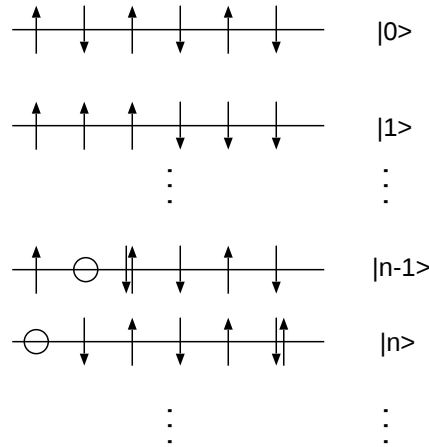


図 4.8: 有限の U/t における基底状態

は完全規格直交基底になるから、その線形結合によって基底状態を以下のように書き表すことが出来る。

$$|\Psi\rangle = \sum_n C_n |n\rangle. \quad (4.6)$$

ここで、 C_n は $|n\rangle$ の線形結合係数である。 U/t が大きい強相関領域での基底状態では、2 重占有サイトを持たない状態の”量子力学的な重み” ($|C_n|^2$) が圧倒的に大

きい。しかしながら、重みは小さいものの”量子ゆらぎ”として電荷 (2重占有サイトと空サイト) を持つ状態も混ざってくる。

これらの電荷は以下に述べるように特異な性質を持つ。まず、正、負の電荷はスピンを持たない。さらに図 4.9 からわかるように、これらの電荷は周りのスピン構造を乱すことなく移動することができる。

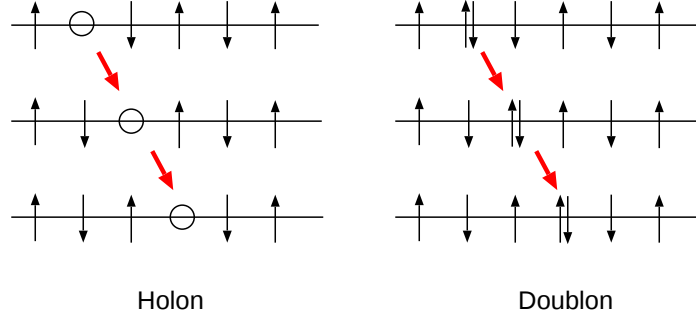


図 4.9: ホロンとダブロンの移動の模式図

このことをスピン-電荷自由度の分離と呼ぶ。図は量子ゆらぎを無視しており、系を大幅に単純化しており、現実の系でスピン-電荷分離が起きるかは自明ではないが、1次元系においてはスピン-電荷分離が成立すると広く認められている。このようにして、1次元強相関電子系における荷電キャリアの物理的な特性は、通常の半導体や絶縁体における荷電キャリアである電子とホールの特性和極めて異なっている。そのため、電子やホールと区別するために1次元強相関電子系における正と負の荷電キャリアは各々ホロンとダブロンと呼ばれている。

これらの事実を踏まえ、1次元強相関電子系に弱い静電場が印加された場合を考える。まず $E = 0$ において量子ゆらぎにより存在するホロンとダブロンが、弱い静電場印加により動き、静電場のエネルギー $-E\hat{P}$ が小さくなるように分極 P が誘起される。しかしホロンとダブロンは量子ゆらぎによるバーチャルな存在であるため、ホロンとダブロンの移動が何を意味するかについては注意が必要である。これをより正確に記述すると次のようになる。電場を加えた場合の基底状態は式 (4.6) に示すように、全ての電子配置の線形結合で表される。静電場エネルギー $-E\hat{P}$ を小さくする為に、図 4.10 の $|b\rangle$ に示したような負の分極を持つ電子配置の重みが下がり、その分 $|a\rangle$ に示したような正の分極を持つ電子配置の重みが増加する。この様な、量子力学的な重みのやり取りを“ホロンとダブロンの移動”と表現した。電場が十分に弱い場合には、これらの状態から U 程度エネルギー期待値が小さい電荷を持たない電子配置からの重みの移動は無視できると考えられる。

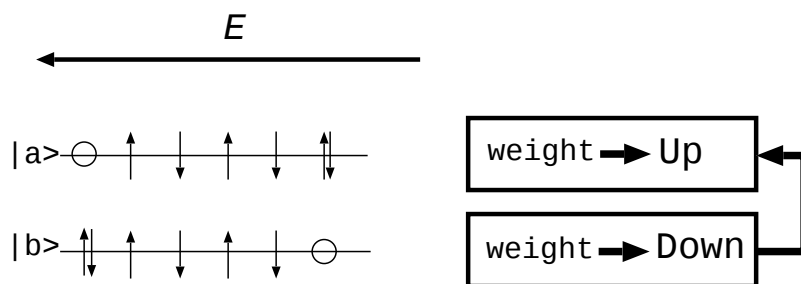


図 4.10: ホロンとダブロンの移動の模式図

さてスピンと電荷の分離が成立しているとすれば、周りのスピンを乱さずにホロンとダブロンはスピンによる摩擦を受けずに自由に運動していると考えることが出来る。そうすると、自由に運動するホロンのエネルギーバンドとダブロンのそれを考えることができる。このホロン (ダブロン) バンド描像に基づいて $E = 0$ における基底状態の模式図を以下の図のように書き表すことが出来る。

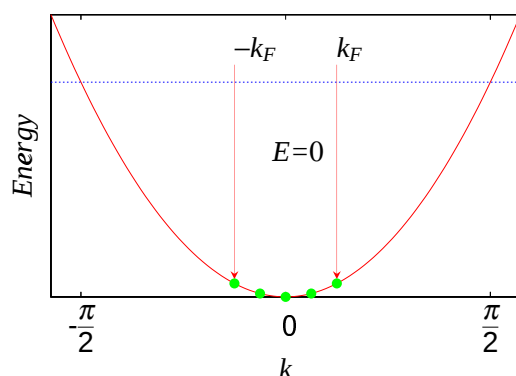


図 4.11: 基底状態におけるホロン (ダブロン) バンドの模式図

この場合の金属の場合と本質的に異なるのは、電荷キャリアの個数である。このとき、ホロンとダブロンの個数は電子数よりもはるかに小さく、その結果 k_F が $\pm\pi/2$ よりもずっと小さくなる。次に、弱い静電場による励起を考える。バンド描像の場合と同様に、弱い電場による励起は図 4.12 に示した 2 つのパターンのみが存在する。これらのホロンもしくはダブロンバンドの低エネルギー励起は、いずれのパターンにおいても k_F が小さい為に、大きな運動量を持つことが出来ない。

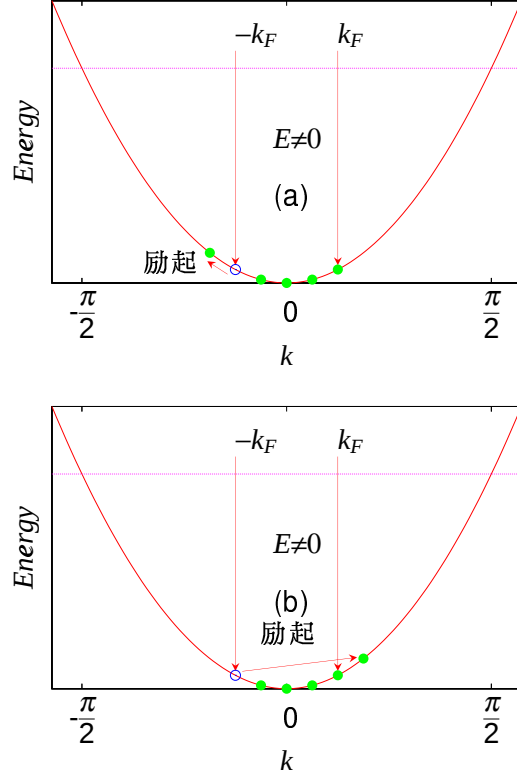


図 4.12: ホロン (ダブロン) のバンド図

その結果、線形応答領域においては空間的に緩やかに変化する電荷密度分布 q_i が電場によって誘起される。

次に強い電場を印加した場合について考察する。以下に述べるように、強い電場印加によってホロンとダブロンの数が増加する。これは後述するように、 P をより大きくして相互作用エネルギー $(-EP)$ をより小さくするためである。式 (4.1), (4.2a), (4.2b), (2.2b), (2.2c) より 2 重占有サイト数すなわちホロン (ダブロン) 数は、

$$\sum_i \langle n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow} \rangle = d(\langle \Psi | H | \Psi \rangle / \langle \Psi | \Psi \rangle) / dU, \quad (4.7)$$

で求めることができる。今 $1/2$ フィールド系を考えているのだから、ホロン数とダブロン数は等しい。式 (4.7) の右辺を評価することでホロン (ダブロン) 数の議論を行う為、図 4.13 にエネルギー期待値の U/t 依存性を示す。

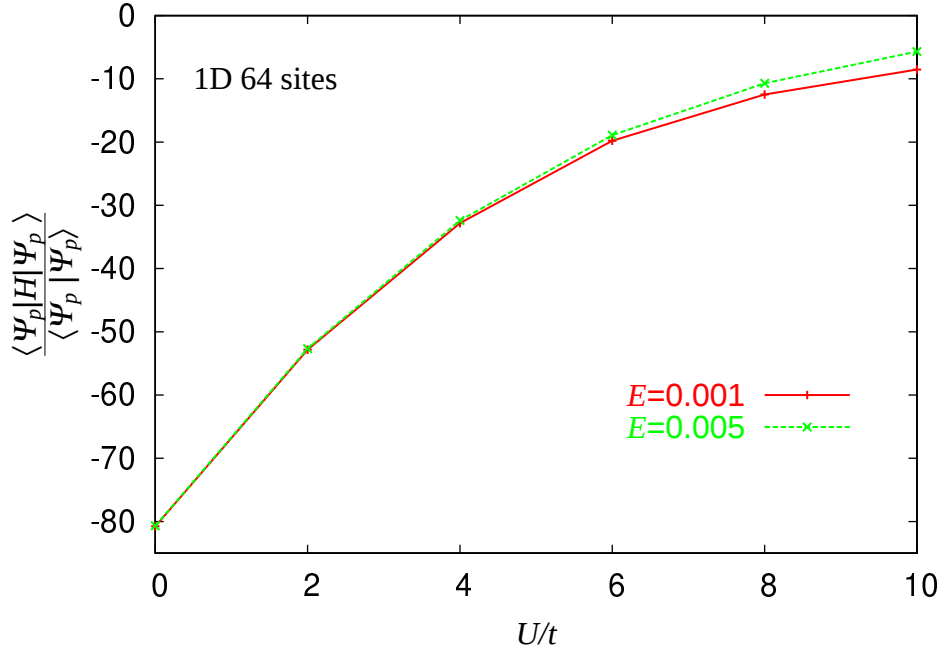


図 4.13: 1次元系のエネルギー期待値のクーロン斥力依存性

2重占有サイト数はこのグラフの勾配に相当する。 $E = 0$ におけるエネルギーの U 依存性は $E = 0.001$ のそれとほとんど重なる。この図より強相関領域 ($U/t \geq 6$) の非線形応答領域においてのみ、 E が大きくなるに従ってホロン (ダブロン) 数が顕著に増加していることが確認できる。なお弱相関領域においては、電荷担体はフェルミ準位付近の電子とホールであり、2重占有サイト数とキャリア数は直接結び付かない。このホロン (ダブロン) の数の変化の意味することについても注意が必要である。これをより正確に表現すると以下の様になる。図 4.14 に表した様に、 $|b\rangle$ のような負の分極を持つ電子配置の重みが減り、 $|a\rangle$ の様な正の分極を持つ電子配置の重みが増えるのは弱い静電場印加時と同様である。それに加えて、 $|c\rangle$ の様な電荷を持たない電子配置の重みが減り、それが上の電子配置の重みに追加されることを”ホロンとダブロンの数の増加”と表現した。

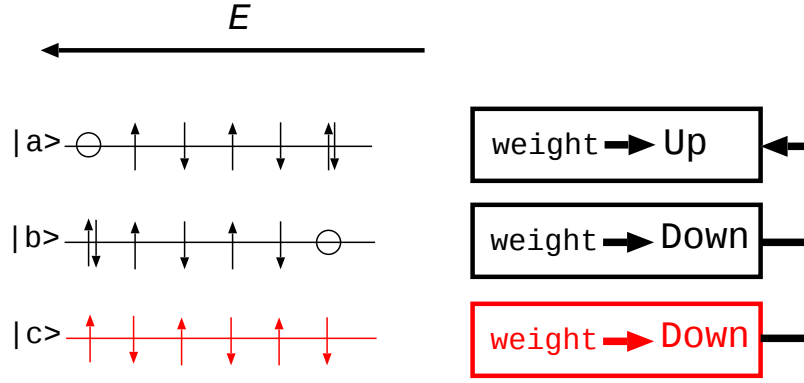


図 4.14: ホロンとダブロン数の増加の模式図

さて、強相関領域において電場印加によって生成されたホロンやダブロンは、量子ゆらぎとして $E = 0$ の基底状態にも存在したホロンやダブロンと同様の運動をする。この結果、 $q_i^{(\text{NL})}$ の空間分布は $q_i^{(\text{L})}$ のそれと似かよったものとなる。

次にホロン – ダブロン数増加の定量的な解釈を行う。仮に、分極の非線形成分はホロンおよびダブロン数の変化のみに由来するとする。このとき、ホロン – ダブロン対ひとつあたりの分極への寄与は、 E に対して線形であり $\tilde{p}E$ と表すことが出来る。従って線形、非線形分極を以下のように記述することが出来る。

$$P^{(\text{L})} = n_{\text{HDP}} \tilde{p}E, \quad (4.8a)$$

$$P^{(\text{NL})} = \Delta n_{\text{HDP}} \tilde{p}E, \quad (4.8b)$$

ここで n_{HDP} は $E = 0$ の基底状態において量子ゆらぎとして存在するホロン – ダブロン対数、 Δn_{HDP} は電場印加によるホロン – ダブロン対数の変化である。式 (4.8a), (4.8b) が成立すれば、 $\Delta n_{\text{HDP}}/n_{\text{HDP}} = P^{(\text{NL})}/P^{(\text{L})}$ が成立する。

表 4.1: キャリア数の比と分極の比 (非線形/線形)

	$U/t = 7$	$U/t = 9$
$\Delta n_{\text{HDP}}/n_{\text{HDP}}$	0.24	0.55
$P^{(\text{NL})}/P^{(\text{L})}$	0.27	0.55

表 (4.1) に、エネルギーの U 依存性から求めた $\Delta n_{\text{HDP}}/n_{\text{HDP}}$ と分極の計算から求めた $P^{(\text{NL})}/P^{(\text{L})}$ を比較してみた。ここで $U/t = 6, 8$ の間でのエネルギー期待値の傾きから、 $U/t = 7$ での $\Delta n_{\text{HDP}}/n_{\text{HDP}}$ を求めた。これに対応した分極を得る為に、 $U/t = 6, 8$ の分極の値から $U/t = 7$ の分極の値を線形近似によって算出した。なお

$U/t = 9$ についても同様である。この表から分かるように、キャリア数における線形成分と非線形成分の比と、分極における線形成分と非線形成分の比がほぼ等しいことから、非線形分極がホロン - ダブロン数の増加に起因することが定量的に裏付けられた。

次に、 $\chi^{(3)}$ のサイト数依存性について考察する。図 4.15 に $N = 8$ での $8P$ の E 依存性を示す。 $N = 64$ の結果と比較するため $8P$ を図示した。

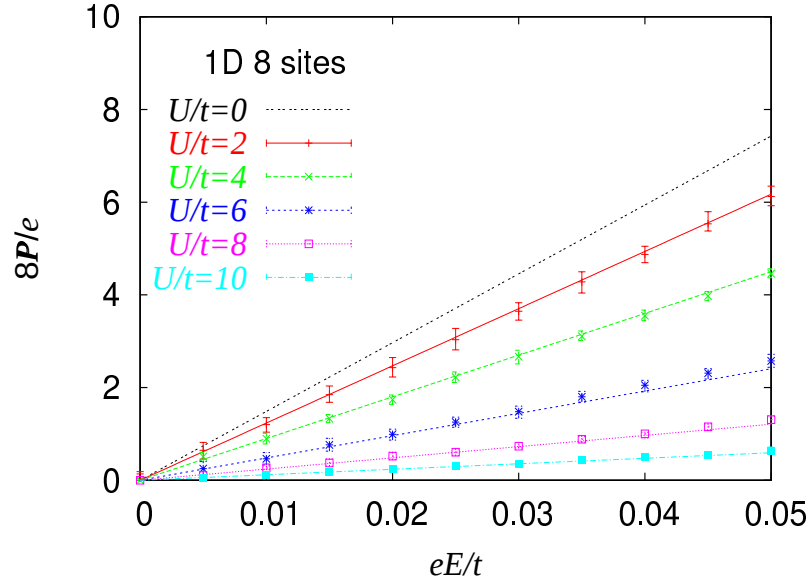


図 4.15: 1次元 $N = 8$ における $8P$ の E 依存性

$\chi^{(3)}$ は統計誤差のため、評価出来ないくらい非常に小さい。この図から $N = 8$ の $8\chi^{(1)}$ は $N = 64$ の $\chi^{(1)}$ よりもずっと小さいことが分かる。また、 U/t が大きくなるに従い $\chi^{(1)}$ は減少する。しかし $N = 64$ のケースと異なり弱相関から強相関領域へのクロスオーバー的な振る舞いは観測されない。ここで、システムサイズが異なる系での感受率の著しい差について考える。

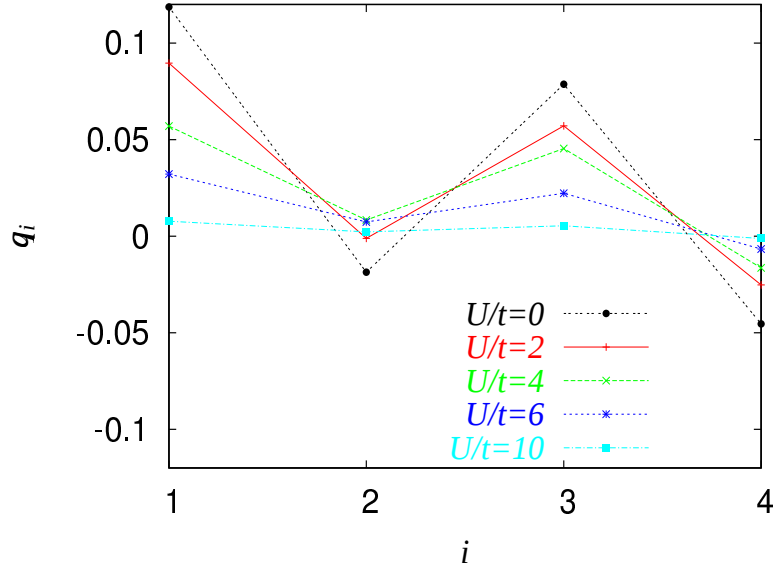


図 4.16: 1次元 $N = 8$ 、 $E = 0.05$ における電荷密度分布

$N = 64$ の場合との違いを考察するために、図 4.16 に電場によって誘起された電荷分布を示す。この図から分かるように $U/t \leq 4$ においては、CDW 的電荷が誘起され、 U/t が増すにつれて激しく振動する成分は減少し、 $U/t \geq 6$ においては、ゆっくりと変調するネット成分が支配的となっている。この結果は $N = 64$ の場合と同様の議論によって、 $U/t \leq 4$ での電場を印加した際のこれらの応答は、フェルミレベル付近に電子－ホール対が励起されることにより、 $U/t \geq 6$ においてはホロンとダブロンの移動により説明される。 $N = 8$ と $N = 64$ での違いは以下のように理解できる。

図 4.3 と図 4.6 から、 $N = 64$ の場合では電荷密度のネット成分と振動成分共に弱相関、強相関領域の双方において空間的に徐々に変化している。このことは、フェルミ面付近でのみ励起が起きていることを意味する。小さな一次元鎖においては、エネルギーレベルが離散化し、励起による電子とホールによる運動エネルギーもしくはホロンとダブロンの運動エネルギーの上昇は著しくなる。結果的に、大きな分極 P を作るエネルギーは、 N が小さくなると著しく増加する。これが、 $N = 8$ での $\chi^{(1)}$ と $\chi^{(3)}$ が小さな値になる理由であると考えられる。

4.3.2 2次元

図 4.17 に 2次元 64 サイト (8×8) モデルにおける分極 P の電場依存性を示す。なおすべての境界に開放型境界条件を採用し、電場は 2次元正方格子の一辺に並行に印加した。

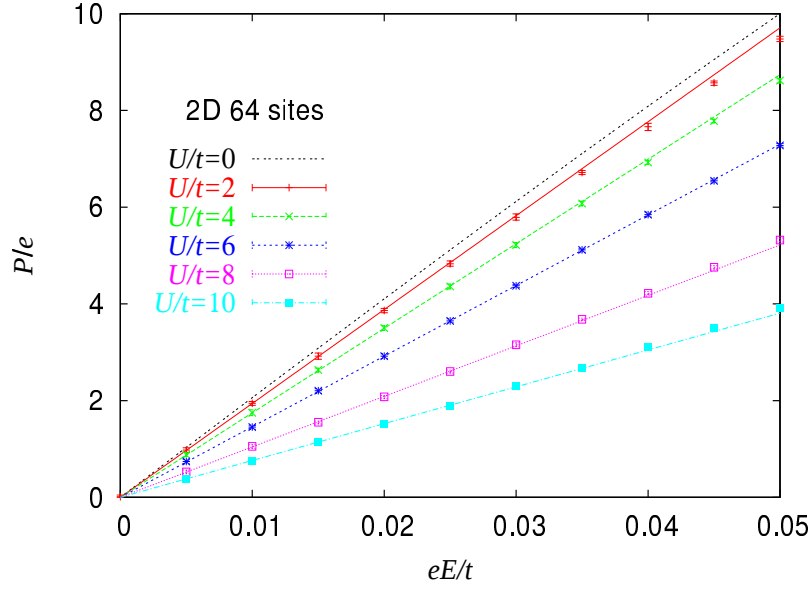


図 4.17: 2次元 $N = 64$ における P の E 依存性

$U/t \leq 4$ において $\chi^{(1)}$ は U/t に弱く依存して、 $U/t \geq 6$ においては、 $\chi^{(1)}$ は U/t が増加するにつれて大幅に減少する。同一サイト数の 1次元系 (図 4.1) と比較した場合、非線形感受率 $\chi^{(3)}$ はずっと小さく、得られた変分モンテカルル口法による結果からは統計誤差で評価できないくらい小さい。しかし 2次元系の電場印加方向のリニアサイズが 1次元系の $1/8$ と小さいため、 E に対する分極応答が次元性に強く依存することを、この結果が直接示しているとは言えない。

そこで同じリニアサイズを持つ 1次元 $N = 8$ による感受率 $8\chi^{(1)}$ と 2次元 $N = 64$ の $\chi^{(1)}$ との比較を行った。図 4.15, 4.17 より、全ての U/t において 1次元系の $8\chi^{(1)}$ より 2次元系の $\chi^{(1)}$ の方が大きいことが分かる。つまり 1次元鎖間の相互作用により $\chi^{(1)}$ が増加させられることを示している。これらの結果の起源を調べるために、図 4.18 に 2次元で $E = 0.05$ における電荷分布 q_i を示す。

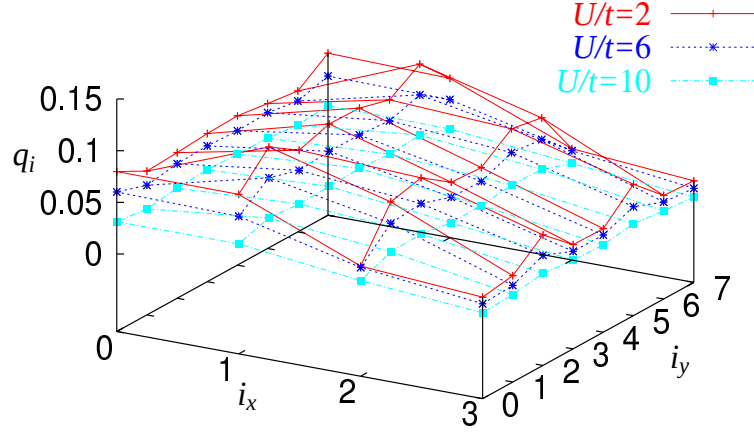


図 4.18: $E = 0.05$ における電荷密度分布。インデックス i_x と i_y はそれぞれサイト i の x, y 座標を示す。外場は x 軸方向に平行に印加される。

図 4.18 において、 $U/t = 6, 10$ のグラフが $U/t = 2$ のグラフに隠れているが、振幅は異なるものの電荷の空間分布は $U/t = 2$ のそれに類似する。この図より、2次元系においては電荷密度波的な電荷分布は弱相関領域ですら見えなかった。これは様々な波数ベクトルを持つ電子－ホール対もしくはホロン－ダブロン対がフェルミレベル近傍に励起されることに起因している。この励起の波数ベクトルの大きな自由度が、電子－ホール対およびホロンもしくはダブロン励起エネルギーを低下させると考えることが出来る。

4.4 結論

数値厳密対角化法が取り扱えるよりも十分に大きな1次元系においては、 $U/t \leq 4$ にて $\chi^{(1)}$ と $\chi^{(3)}$ は U/t に弱く依存し、静電場印加時の応答はバンド理論により説明される。 $U/t \geq 4$ では U/t が大きくなるに従って $\chi^{(1)}$ は減少して $\chi^{(3)}$ は著しく大きくなり、 $U/t = 10$ においては $\chi^{(3)}$ は $U/t = 0$ における値の20倍程度も大きくなる。 $U/t \geq 6$ におけるその反応は、1次元強相関電子系のエキゾチックな性質によると理解できる。すなわち $\langle P \rangle$ の非線形成分は、ホロンやダブロン数の増加によるものと考えられる。

最後に、本論文で示した結果と実験との比較について述べる。 $\chi^{(3)}$ を実験的に測定する際には、様々な不確定要素があるため、理論計算で得られた値を実験値と比較することは困難である。 U/t をコントロールできる物質があり、 $\chi^{(3)}$ の U/t 依

存性を調べることが出来れば、本研究の重要な実験的検証となるが、このような物質群は存在しない。中間的相関強度を持つ物質群として、共役高分子系が挙げられるが、結合交替が起きるため、本研究結果とは直接比較することは出来ない。この様な理由から、本論文では実験値との定量的な比較を行わない。

第5章 結論

本論文においては、 $1/2$ フィルドハバードモデルにおけるべき乗法による変分モンテカルロ法の有効性、および1次元強相関電子系における静電場に対する非線形応答について研究した。

べき乗法による変分モンテカルロ法については以下の結論が得られた。Gutzwiller関数に2次までのハミルトニアン of のべき乗補正を加えた場合、100サイト程度までの大きな系の計算が可能であり、1、2次元系いずれの場合でも $U/t \leq 10$ の幅広いパラメーター領域において、ほとんど厳密解に近い相関エネルギー比が得られた。これは数値厳密解、量子モンテカルロ、密度行列繰り込み群などの数値的手法においては得られなかった特性であり、この手法の有効性が確認できた。

1次元強相関電子系における静電場に対する非線形応答については、以下の結論が得られた。 $U/t \geq 6$ の強相関領域においては、 U/t が増加するにつれて3次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ が急激に増加し、強相関領域における $\chi^{(3)}$ は弱相関領域での $\chi^{(3)}$ よりもはるかに大きい。このような特徴的な $\chi^{(3)}$ の U/t 依存性は以下のように解釈できる。 $U/t \leq 4$ においては、荷電キャリアは、フェルミ準位付近の励起電子とホールであり、バンド描像が成立する。 $U/t \geq 6$ の強相関領域においては、荷電キャリアはホロンやダブロンであり、バンド描像は成立しない。非線形性は量子ゆらぎとして存在するホロン、ダブロン数の変化に由来しており、強相関領域における巨大な $\chi^{(3)}$ の起源は、強相関電子系に特有の荷電キャリアの特異な性質であることが明らかになった。

参考文献

- [1] N. F. Mott, Metal-Insulator Transitions, 2nd ed. (Taylor and Francis, London, 1990).
- [2] J.G.Bednorz and K. A. Müller, Z.Phys. B **64**, (1986) 189.
- [3] H. Kishida,H. Matsuzaki,H. Okamoto,T. Manabe,M. Yamashita, Y. Taguchi, Y. Tokura, Nature, **405**, (2000) 929.
- [4] T. Ogasawara, M. Ashida,N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, Y. Tokura, H. Ghosh, A. Shukla,S. Mazumdar, M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. Lett., **85**,(2000) 2204.
- [5] M. Ashida, T. Ogasawara, Y. Tokura, S. Uchida, S. Mazumdar , and Kuwata-Gonokami, Appl. Phys. Lett. **78**, (2001) 2831.
- [6] E. Dagotto, Rev.Mod. Phys. **66**, (1994) 763.
- [7] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. **70**, (1998) 1039., and references therein.
- [8] D. J. Scalapino, Phys. Rep. **250**, (1995) 329., and references therein.
- [9] T. Tohyama, Y. Inoue, K. Tsutsui, and S. Maekawa, Phys. Rev. B **72**,(2005) 045113.
- [10] X. Y. Zhang E.Abrahams and G. Kotliar, Phys. Rev Lett.**66**, (1991) 1236.
- [11] 黒木和彦、青木秀夫、東京大学出版会、多体電子論 II 超伝導
- [12] S. R. White, Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 2863.
- [13] S. R. White, Phys. Rev. B **48**, (1993) 10345.
- [14] M. C. Gutzwiller: Phys. Rev. Lett. **10**, (1963) 159.
- [15] R. Jastrow: Phys. Rev. **98**, (1955) 1479.
- [16] F. Bolton: Phys. Rev. Lett. **73**, (1994) 158.

- [17] H.Shiba:J. Phys.Soc.Jpn. **55**, (1986) 2765.
- [18] H.Yokoyama, H.Shiba:J.Phys.Soc.Jpn. **56**, (1987) 1490.
- [19] H.Ohtsuka, JPS,V61, (1992) No.5, May, pp.1645-1656.
- [20] E.S. Heeb, T.M. Rice, Zeitschrift für Physik B, **90**, (1993) 73-77.
- [21] Y. Mizuno, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Phys. Rev. B (Condensed Matter), **62**, (2000) R4769.
- [22] G. P. Zhang, Phys. Rev. Lett., **86**, (2001) 2086.
- [23] G. P. Agrawal, C. Cojan and C. Flytzanis, Phys. Rev. B **17**, (1978) 776.
- [24] Z. Shuai and J. L. Bredas, Phys. Rev. B **44**, (1991) 5962.
- [25] S. Mukamel, A. Takahashi, H. X. Wang and G. Chen, Science **266**, (1994) 250.
- [26] D. Ceperley, G. V. Chester and M. H. Kalos: Phys. Rev. B **16** (1977) 3081.
- [27] E. H. Lieb and F. Y. Wu: Phys. Rev. Lett. **20** (1968) 1445.
- [28] H. Kishida, M. Ono, K. Miura, H. Okamoto, M. Izumi, T. Manako, M. Kawasaki, Y. Taguchi, Y. Tokura, T. Tohyama, K. Tsutsui, S. Maekawa,Phys. Rev. Lett., **87**, (2001) 177401.
- [29] M. Ono, K. Miura, A. Maeda, H. Matsuzaki, H. Kishida, Y. Taguchi, Y. Tokura, M. Yamashita, H. Okamoto, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics), **70**, (2004) 85101.
- [30] A.G. Rojo, G.D. Mahan, Phys. Rev. B **47**, (1993) 1794.

謝辞

高橋聡助教授には本研究テーマを提案して頂きました。そして本研究を遂行するにあたり、プログラムの作成、数値計算、データ処理以外全てにおいてお力をお借りしました。物理的考察を行う際に、時には共同研究者の立場として、またほとんどの場合は指導者の立場としてご指導して頂きました。たびたび夜間にご自宅に伺ってディスカッションをして頂き、大変ご迷惑をお掛けしました。伊東久氏には御自身の研究が忙しい中、本研究結果との比較用の計算をして頂き、データを提供して頂きました。相原正樹教授には、主に英語論文の査読において本研究に協力して頂きました。

上記の方々の助力があって、本論文を完成させることができました。ここに感謝の意を述べたいと思います。