

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22740240

研究課題名（和文） スピン軌道相互作用のある強相関電子系の非平衡ダイナミクス

研究課題名（英文） Non-equilibrium dynamics of strongly correlated electron system with spin-orbit coupling

研究代表者

大西 弘明（ONISHI HIROAKI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：10354903

研究成果の概要（和文）：

スピン軌道相互作用が顕著な 5d 遷移金属酸化物 Sr_2IrO_4 の新奇モット絶縁体状態の基礎物性を解明するために、多軌道モデルの基底状態を数値的に調べ、異方的な電荷・スピン分布を持つ特異な量子状態が実現することを明らかにした。多軌道強相関電子系の光誘起絶縁体-金属転移の基礎過程について数値的解析を行い、多軌道系特有のペアホッピング機構によるスピン軌道複合ダイナミクスの特徴を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

To clarify a role of the spin-orbit coupling in the emergence of novel spin-orbital states in 5d-electron compounds such as Sr_2IrO_4 , we investigate ground-state properties of a multi-orbital model numerically. We find that the spin-orbit-induced state exhibits anisotropic charge and spin distributions. Regarding the photo-induced phase transition of multi-orbital systems, we numerically analyze the non-equilibrium dynamics. We observe that the time evolution of the spin-orbital state is caused by a pair-hopping process that is characteristic of multi-orbital systems.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
2012 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関電子系，軌道自由度，スピン軌道相互作用，イリジウム化合物，数値計算

1. 研究開始当初の背景

軌道自由度が活性な強相関電子系では、電荷・スピン・軌道の多自由度が絡み合う多体効果に起因して多彩な電子物性現象が実現する。そこで発現する絶縁体相や金属相といった劇的に特性が異なる電子相を積極的に

制御する試みがなされ、強相関エレクトロニクスの研究が一つの潮流を形成している。特に最近、レーザー光照射によって電子相を動的に制御する光誘起相転移が活発に議論されている。実際、マンガン酸化物などで、レーザー光照射による電荷・スピン・軌道秩序

絶縁体状態の融解と強磁性金属状態の発現が見出され、軌道秩序の動的な融解と回復の形成機構と超高速ダイナミクスの解明が重要な課題となっている。

さて、軌道自由度を含んだ多体効果を議論する上で、遷移金属酸化物をはじめとする d 電子系では、スピン軌道相互作用が小さいため、スピン状態と軌道状態を良い量子状態として独立に定義して、元々独立なスピンと軌道が多体効果で絡み合うという描像が取られる。しかし、3d→4d→5d と原子番号が大きくなるにつれて、スピン軌道相互作用の効果は顕著になると考えられる。その典型として、5d 遷移金属酸化物 Sr_2IrO_4 において、スピン軌道相互作用に起因して、通常のスピン $S=1/2$ モット絶縁体ではなく、有効全角運動量 $J_{\text{eff}}=1/2$ モット絶縁体を実現することが見出され、注目を集めている。

一方、希土類化合物やアクチノイド化合物などの f 電子系では、スピン軌道相互作用が大きく、全角運動量で表現される多極子の自由度を用いて多体電子状態を記述するのが良い視点を与える。磁気秩序は双極子の秩序、軌道秩序は電荷分布の異方性を記述する四極子の秩序であり、さらに八極子など高次の多極子が関与する可能性まで含めた多極子物性の研究が展開されている。特に最近、j-j 結合に基づく理論的枠組みが整備され、これまで d 電子系研究で培われてきた場の理論や高精度数値計算などの現代的手法が f 電子系研究にも広く適用されるようになった。

d 電子系と f 電子系の軌道の役割は、従来個別に論じられてきたが、j-j 結合を積極的に活用することで、両者を統一的視点に立って理解できると期待される。こうした立場の下、本研究者はこれまで、d 電子系と f 電子系の磁性に関して、多軌道電子モデルの基底状態の解析に取り組んできた。本研究では、これまでの d 電子系と f 電子系の基底状態の研究をより有機的に結びつけて、スピン軌道複合ダイナミクスの研究に発展させる。

2. 研究の目的

d 軌道と f 軌道の個性によってスピン軌道複合状態にどのような相違点・類似点が生じるのか、それが磁場や電場に対する動的応答にどう反映するのかを明らかにし、両者のスピン軌道複合物性を統一的観点から理解することを目的とする。特に、d 電子系と f 電子系をつなぐ架け橋として、スピン軌道相互作用が顕著な 5d 遷移金属酸化物 Sr_2IrO_4 を念頭において、d 電子系におけるスピン軌道相互作用の効果調べ、f 電子系での多極子物性とも絡めた研究を展開する。

時間依存 DMRG などの高精度数値計算手法を駆使した理論解析により、多軌道電子モデルの動的物理量、光パルスや振動磁場に対する

動的応答の解析を行い、多軌道強相関電子系の非平衡実時間ダイナミクスの性質と物理的メカニズムの解明を目指す。

3. 研究の方法

数値対角化や DMRG などの数値計算手法を駆使して、強相関電子モデルの基底状態と励起ダイナミクスについて、多角的な解析を行った。特に、非平衡実時間ダイナミクスに関して、時間依存 DMRG による解析を遂行した。以下にその具体的な計算手法を述べる。

(1) 多軌道系の光誘起相転移

時間変動する電場下の一次元 e_g 軌道縮退ハバード模型に基づいて、非平衡条件下でのスピン軌道状態の挙動やダブロン形成の実時間ダイナミクスを調べた。まず初期状態として DMRG で基底状態を求める。時刻ゼロで振動電場をスイッチオンして、波動関数の時間発展を時間依存 DMRG により計算する。各時刻の波動関数を用いて期待値を計算することで、物理量の時間発展が求められる。

(2) 波束ダイナミクスと輸送現象

一次元拡張ハバード模型で相互作用のない金属領域と相互作用のある領域を接続した接合系を考え、接合界面での透過・反射現象を調べた。まず DMRG で基底状態を求める。得られた基底状態にガウシアン型演算子を作用して、金属領域に電子の波束を生成した状態を初期状態として、波動関数の時間発展を時間依存 DMRG で計算する。金属領域で生成された波束は、時間発展とともに相互作用領域に向かって伝播し、接合界面に衝突して透過・反射現象を示す。

数値計算を遂行するにあたっては、本科研費により購入した計算機クラスターを活用した。

4. 研究成果

(1) スピン軌道相互作用が顕著な 5d 遷移金

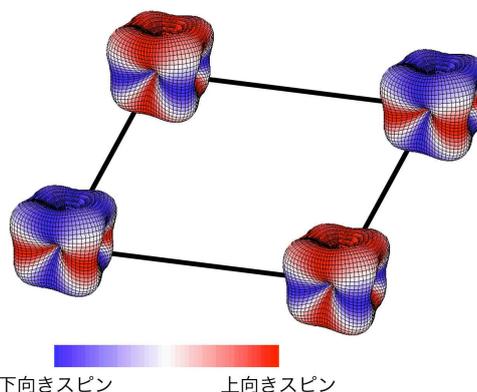


図 1: スピン軌道相互作用が強いイリジウム化合物の電子状態。形状は電荷分布を表し、色は上向きスピン状態 (赤) と下向きスピン状態 (青) の比率を表す。

属酸化物の典型物質 Sr_2IrO_4 を念頭に、スピン軌道相互作用を含む t_{2g} 軌道ハバード模型の基底状態を数値対角化や DMRG によって調べた。スピン軌道相関関数を詳細に解析した結果、スピン軌道相互作用と電子相関の競合により、異方的な電荷・スピン分布を持つ特異な量子状態が実現することを明らかにした (図 1)。スピン状態は、スピン軌道相互作用によって上向きスピン状態と下向きスピン状態が混じり合うため、スピン一重項状態から有限スピン状態に変化する。また、軌道状態が複素数係数で混じり合った複素軌道状態が実現する。すなわち、スピン軌道相互作用により、基底状態はスピン一重項から有効全角運動量一重項へと変化する。また、多極子相関関数の解析から、磁気双極子およびそれと同じ対称性を持つ磁気八極子の相関が優位となることを見出した。

光学伝導度の解析を行い、電荷励起スペクトルのピーク構造がクーロン相互作用やスピン軌道相互作用に応じてどう変化するかを議論した。

スピン軌道相互作用の下での超伝導の可能性を探究するため、梯子格子模型に DMRG を適用して、クーパー対形成のための束縛エネルギーを調べ、超伝導発現に有利な条件を議論した。

$5d^5$ 電子配置のイリジウム化合物では、スピン軌道相互作用により軌道自由度が消失するが、 Ta^{4+} や Os^{7+} など $5d^1$ 電子配置を持つ場合は、スピン軌道相互作用の影響下でも軌道自由度が活性である。こうした電子数が異なる場合の基底状態について解析を行い、軌道自由度活性な系において高次の多極子秩序が実現する可能性を指摘した。

(2) マンガン酸化物など多軌道強相関電子系の光誘起相転移の基礎的性質を明らかにするために、時間変動する電場下の一次元 e_g 軌道縮退ハバード模型の非平衡実時間ダイナミクスを時間依存 DMRG によって調べた。振動電場を印加すると、時間発展とともにダブロン数が増加していき、ホロン・ダブロンキャリアが生成される。それに伴って、スピン一重項二量体が形成され、反強磁性スピン相関は抑制されることが分かった。一方、ダブロンペアホッピングによって強軌道状態が壊されることを見出した。これは、多軌道系特有のペアホッピング機構がスピン軌道複合ダイナミクスにおいて重要な役割を果たしていることを示している。

(3) 量子細線など低次元ナノ構造の輸送特性を波束の実時間ダイナミクスという観点から明らかにするため、一次元拡張ハバード模型接合系に時間依存 DMRG を適用して、接合界面での透過・反射現象を調べた。一次元

拡張ハバード模型の基底状態は、サイト内クーロン相互作用 U および隣接サイト間クーロン相互作用 V によって様々な状態を取るが、それに応じて輸送現象も特徴的なものが観られる。

$U>0, V=0$ の金属/モット絶縁体接合では、電荷ギャップを反映して、電荷波束が接合界面で完全反射するのに対して、スピン波束はモット絶縁体領域に侵入して、スピン注入の状況が実現することが分かった。

$U<0, V=0$ では、基底状態は電荷密度波状態と超伝導状態が縮退した状態である。粒子正孔対称性から、 $U<0, V=0$ の電荷波束・スピン波束は、 $U>0, V=0$ のスピン波束・電荷波束と等価な振る舞いを示す。

$U<0, V<0$ の金属/超伝導接合では、電荷波束が反射される際にホールとして反射され、アンドレーフ反射の様相を波束の実時間ダイナミクスという非平衡現象の観点から捉えることができた。

(4) LiCuVO_4 など強磁性フラストレート鎖の磁場相図において、高磁場でスピン多極子状態が実現することが見出され、注目を集めている。この新奇磁気状態をスピンダイナミクスの観点から明らかにするために、最近接強磁性-次近接反強磁性相互作用が競合する一次元フラストレート量子スピン系の磁場中スピンダイナミクスについて、動的 DMRG を用いた大規模数値計算によって調べた。磁気励起スペクトルの磁場平行成分と磁場垂直成分を解析した結果、磁気相関の異方的な振る舞いを反映して、磁場平行成分と磁場垂直

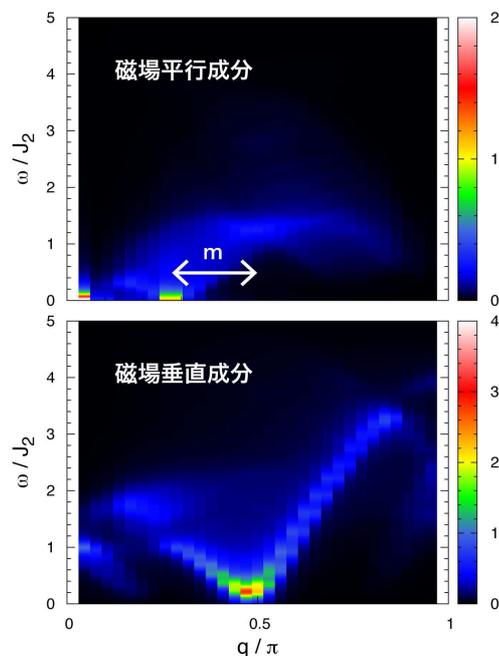


図 2: 磁場中強磁性フラストレート鎖の高磁場相での磁気励起スペクトルの磁場平行成分 (上) と磁場垂直成分 (下)。

成分と異なる磁気励起構造を持ち、それらが磁場とともに変化していく様相を明らかにした(図2)。磁場平行成分では、ギャップレスモードが現れ、スペクトル強度のピーク位置が $\pi/2$ から低波数側に磁化 m に応じてシフトする。一方、磁場垂直成分では、2 マグノン束縛状態の形成を反映してギャップモードが現れ、飽和磁場に近づくにつれてピーク位置が $\pi/2$ から低波数側にずれることが分かった。

低次元フラストレート磁性体において見出されたスピン多極子状態と、スピン軌道相互作用系の多極子状態の関連は興味深い問題であり、今後の研究課題として取り組む予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計8件)

(1) H. Onishi, Nonequilibrium dynamics of multiorbital correlated electron system under time-dependent electric fields, *Phys. Status Solidi B* **250**, 553(1-4) (2013). 査読有

DOI:10.1002/pssb.201200792

(2) H. Onishi, Spin-orbital state induced by strong spin-orbit coupling, *J. Phys.: Conf. Ser.* **391**, 012102(1-4) (2012). 査読有

DOI:10.1088/1742-6596/391/1/012102

(3) H. Onishi, Multipole correlations of t_{2g} -orbital Hubbard model with spin-orbit coupling, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** Suppl. A, SA141(1-3) (2011). 査読有

DOI:10.1143/JPSJS.80SA.SA141

(4) M. Okumura, H. Onishi, S. Yamada, M. Machida, Dynamics of attractively interacting fermi atoms in one-dimensional optical lattice: Non-equilibrium simulations of fermion superfluidity, *Physica C* **470**, S949-S951 (2010). 査読有

DOI:10.1016/j.physc.2009.11.178

(5) M. Okumura, H. Onishi, S. Yamada, M. Machida, Anomalous non-equilibrium electron transport in one-dimensional quantum nano wire at half-filling: time dependent density renormalization group study, *J. Phys.: Conf. Ser.* **248**, 012031(1-7) (2010). 査読有

DOI:10.1088/1742-6596/248/1/012031

(6) 大西弘明, 一次元多軌道模型の実時間ダイナミクス, *物性研究* **94**, 226-226 (2010). 査読無

<http://ci.nii.ac.jp/naid/110007609757>

(7) 奥村雅彦, 山田進, 町田昌彦, 大西弘明, 光学格子系におけるモット相の破壊と緩和, *物性研究* **94**, 229-229 (2010). 査読無

<http://ci.nii.ac.jp/naid/110007609760>

(8) 奥村雅彦, 大西弘明, 山田進, 町田昌彦, 光学格子系における緩和過程の時間依存密度行列繰り込み群法による解析, *素粒子論研究* **118**, A25-A27 (2010). 査読無

<http://ci.nii.ac.jp/naid/110007618656>

[学会発表] (計37件)

(1) 宮下精二, 大西弘明, 遍歴強磁性状態とモット状態の間の量子力学的遷移, 日本物理学会第68回年次大会, 2013年3月28日, 広島大学

(2) 大西弘明, 強磁性フラストレート鎖の高磁場下でのスピンドイナミクスと多極子ダイナミクス, 日本物理学会第68回年次大会, 2013年3月27日, 広島大学

(3) 大西弘明, Spin and multipole dynamics of ferromagnetic frustrated chain in high magnetic field, JAEA Synchrotron Radiation Symposium, 2013年3月12日, SPring-8

(4) 宮下精二, 大西弘明, Mott-ferromagnetic phase transition in an extended Nagaoka system, JAEA Synchrotron Radiation Symposium, 2013年3月11日, SPring-8

(5) 大西弘明, スピン軌道相互作用が顕著な5d遷移金属酸化物の多極子状態, 重い電子系第4回研究会, 2013年1月13日, 東京工業大学

(6) 大西弘明, 強磁性フラストレート鎖の動的スピン構造因子, 基研研究会「量子スピン系の物理」, 2012年11月13日, 京都大学基礎物理学研究所

(7) 宮下精二, 大西弘明, 遍歴磁性体の価数密度制御, 基研研究会「量子スピン系の物理」, 2012年11月12日, 京都大学基礎物理学研究所

(8) 宮下精二, 白井達彦, 森貴司, 大西弘明, 量子磁性状態の非磁性制御, 物性研究所計算物質科学研究センター第2回シンポジウム, 2012年10月23日, 東京大学物性研究所

(9) 大西弘明, 5d遷移金属酸化物の多極子状態, 日本物理学会2012年秋季大会, 2012年9月21日, 横浜国立大学

(10) 白川知巧, 大西弘明, J. C. Xavier, 渡部洋, 柚木清司, スピン軌道相互作用を含む梯子格子3軌道ハバード模型におけるクーパー対の束縛エネルギー, 日本物理学会2012年秋季大会, 2012年9月20日, 横浜国立大学

(11) 大西弘明, 強磁性-反強磁性ジグザグ

スピン鎖の動的スピン構造因子, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日, 横浜国立大学

(12) 大西弘明, Non-equilibrium dynamics of multi-orbital correlated electron system under time-depending electric field, The International Conference on Quantum Criticality and Novel Phases, 2012 年 8 月 28 日, Dresden, Germany

(13) 大西弘明, Multipole state in 5d transition metal oxides, 10th Prague Colloquium on f-Electron Systems, 2012 年 8 月 23 日, Prague, Czech Republic

(14) 宮下精二, 大西弘明, Control of the Total Spin -Nagaoka Ferromagnetism and Spin-Crossover-, 62nd Fujihara Seminar, 2012 年 5 月 9 日, 江陽グランドホテル

(15) 山田進, 五十嵐亮, 奥村雅彦, 大西弘明, 山本篤史, 町田昌彦, 閉じ込めポテンシャル中斥力ハバードモデルの超流動相関: DMRG による評価, 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 27 日, 関西学院大学

(16) 大西弘明, スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の電荷・スピン・軌道励起ダイナミクス, 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 25 日, 関西学院大学

(17) 大西弘明, Spin-orbital state in 5d transition metal oxides with strong spin-orbit coupling, ナノ・ライフ公開シンポジウム, 2012 年 3 月 6 日, ニチイ学館

(18) 大西弘明, Spin-orbital state in 5d transition metal oxides with strong spin-orbit coupling, The 2nd ASRC International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures, 2012 年 1 月 10 日, リコッテイ

(19) 大西弘明, スピン軌道相互作用の強い 5d 遷移金属酸化物の複素軌道状態と多極子状態, 重い電子系理論研究会, 2011 年 11 月 11 日, 新潟大学

(20) 山田進, 五十嵐亮, 奥村雅彦, 大西弘明, 山本篤史, 町田昌彦, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 22 日, 富山大学

(21) 大西弘明, スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の励起ダイナミクス, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 22 日, 富山大学

(22) 大西弘明, Spin-orbital state induced by strong spin-orbit coupling, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2011 年 8 月 31 日, Cambridge, UK

(23) 大西弘明, 時間変動する電場の下での軌道縮退系の非平衡ダイナミクス, 日本物理学会第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 28 日, 新潟大学

(24) 山田進, 五十嵐亮, 大西弘明, 山本篤史, 奥村雅彦, 町田昌彦, 並列 DMRG 法を用いた準 2 次元ハバードモデルの超伝導相関シミュレーション, 日本物理学会第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 27 日, 新潟大学

(25) 大西弘明, 時間依存密度行列繰り込み群法による多軌道強相関電子系の実時間ダイナミクスの研究, 次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発第 5 回公開シンポジウム, 2011 年 2 月 23 日, 甲南大学

(26) 大西弘明, E. Dagotto, Wavepacket dynamics in one-dimensional extended Hubbard model, The third international workshop on dynamics and manipulation of quantum systems, 2011 年 2 月 15 日, 東京大学

(27) 大西弘明, 時間依存密度行列繰り込み群法による多軌道強相関電子系の実時間ダイナミクス, 物性研・CMSI・次世代ナノ情報合同研究会「計算物質科学の課題と展望」, 2011 年 1 月 6 日, 東京大学物性研究所

(28) 大西弘明, Time-dependent DMRG study of orbital-degenerate Hubbard model, YITP International Workshop “New Development of Numerical Simulations in Low-Dimensional Quantum Systems: From Density Matrix Renormalization Group to Tensor Network Formulations”, 2010 年 10 月 28 日, 京都大学基礎物理学研究所

(29) 山田進, 今村俊幸, 奥村雅彦, 五十嵐亮, 大西弘明, 町田昌彦, High Performance Computing of Density Matrix Renormalization Group Method for 2-Dimensional Model: Parallelization Strategy toward Peta Computing, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Application + Monte Carlo, 2010 年 10 月 20 日, 一橋記念講堂

(30) 大西弘明, Effect of spin-orbit coupling in strongly correlated compounds, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Application + Monte Carlo, 2010 年 10 月 20 日, 一橋記念講堂

(31) 大西弘明, 5d 遷移金属酸化物の複素軌道状態と多極子状態, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 25 日, 大阪府立大学

(32) 大西弘明, E. Dagotto, 一次元強相関電子系接合における波束ダイナミクス, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 24 日, 大阪府立大学

(33) 大西弘明, Multipole correlations in t_{2g} -orbital Hubbard model with spin-orbit coupling, International Conference on Heavy Electrons, 2010 年 9 月 19 日, 首都大

学東京

(34) 山田進, 大西弘明, 五十嵐亮, 奥村雅彦, 町田昌彦, Parallel DMRG with Multi-site Clustering toward More Than 10-leg Ladders, International Workshop on Density Matrix Renormalization Group Method and Other Advances in Numerical Renormalization Group Method, 2010年8月30日, Beijing, China

(35) 大西弘明, Non-equilibrium dynamics of multi-orbital system under time-dependent electric field, Joint European Magnetic Symposia, 2010年8月27日, Krakow, Poland

(36) 奥村雅彦, 大西弘明, 山田進, 町田昌彦, Anomalous Non-equilibrium Transport in One-dimensional Quantum Nano Wire at Half-filling: Time Dependent Density Matrix Renormalization Group Study, International Conference on Theoretical Physics, 2010年7月10日, Dubna, Russia

(37) 大西弘明, E. Dagotto, Transport properties of one-dimensional extended Hubbard model with repulsive and attractive Coulomb interaction, The International Workshop "Ultracold Fermi Gas: Superfluidity and Strong Correlation", 2010年5月14日, 日本原子力研究開発機構システム計算科学センター

[その他]

ホームページ

<http://www11.plala.or.jp/sces/onishi/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大西 弘明 (ONISHI HIROAKI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号: 10354903

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし