

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540369

研究課題名(和文) 第一原理計算によるスピン軌道相互作用と電子相関の織りなす物性予測

研究課題名(英文) Interplay between spin-orbit interaction and electron correlation --- analysis based on the first-principles calculations

研究代表者

池田 浩章 (Ikeda, Hiroaki)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：90311737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系超伝導体や重い電子系化合物のように軌道自由度が重要な役割を果たすと考えられる遍歴電子系では、バンド構造が非常に複雑なため、これまで、その電子状態が内包する豊富な物理を正確に読み解くことが非常に困難であった。当該グループでは、開発した計算コードによって、重い電子系のようにスピン軌道相互作用の強い系に対する低エネルギー有効モデルを構築することに成功した。また、そのモデルに基づいて、軌道分解したフェルミ面の計算や磁気揺らぎ・多極子揺らぎの計算を行うことで、これまで純理論的なモデル計算の域を出なかった重い電子系の物理をより具体的に個々の物質の性質を取り込んだ物理へと昇華することに成功した。

研究成果の概要(英文)：In the iron-based superconductors and heavy-electron systems, orbital degrees of freedom can play an important role on the appearance of curious magnetic/multipole ordering and non-BCS superconductivity. However, the complicated band structure, which involves rich physical information, has prevented us from understanding the electronic states so far. Recently, we have succeeded in constructing a low-energy effective Hamiltonian including the spin-orbit interactions. In the model Hamiltonian, we have successfully computed orbital-resolved band structure, Fermi surfaces, and magnetic/multipole susceptibilities. This method is applicable to various materials, and is very useful for understanding the physical properties. Based on this first-principles approach, we found crucial clues to several long-standing mysteries in heavy-electron systems, for instance, the hidden order in URu2Si2 and the first-discovered unconventional superconductivity in CeCu2Si2 and so on.

研究分野：物性理論

キーワード：重い電子系超伝導 隠れた秩序 第一原理計算 多極子秩序

### 1. 研究開始当初の背景

物質の基礎物性を調べる上で、第一原理による非経験的な電子状態計算の情報は非常に重要であり、より精度の高い計算が強く望まれている。その進展は、新しい機能材料をデザインするというにも直結しており、理学的な立場からだけでなく工学的な立場からも重要な位置を占めている。しかし、現状、物性予測に関する計算能力は、まだまだ発展途上である。

当該グループでは、これまで第一原理計算に基づいて、現実的なバンド構造をもった低エネルギー有効模型を構築するための方法論の開発に携わってきた。最近では、相対論的第一原理計算からワニエ基底を構成するための計算コードを開発、スピン軌道相互作用を考慮した有効模型の構築に成功した。これによって、現在のホットトピックであるスピン軌道相互作用の強い系における物性を、具体的な電子構造を基礎として議論する事が可能となった。

### 2. 研究の目的

重い電子系化合物のように、スピンと軌道が絡み合った多自由度系は、強い電子間相互作用によって新奇な秩序状態や奇妙な超伝導状態が発現する宝庫となっている。これまでは、その複雑なバンド構造を読み解いて、物質個々の多様な物性を理解するのは、ほぼ不可能と考えられてきた。

本研究プロジェクトでは、最近開発した計算コード(相対論的第一原理計算からワニエ基底を構成し、低エネルギー有効模型を構築する方法)と量子多体系の計算手法を組み合わせることで、固体物理の未解決問題に新たな切り口を提示し、その系統的な研究の蓄積により、第一原理的な物性予測の計算能力の向上を目指した。

### 3. 研究の方法

相対論的第一原理計算に基づいて有効模型を構築し、スピン・軌道・電子相関が絡み合う物理に関して、統一的に定量的な計算を行う。特に、重い電子系化合物における未解決問題に対して、順次適用することで、これまで得られなかった新しい知見を得る。

具体的な研究テーマは、第一原理計算から得られる有効模型に基づいて、(1)固体物理における四半世紀の謎とされる  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序を明らかにすること、(2) $CeCu_2Si_2$  や  $CeCoIn_5$  など、重い電子系超伝導体における磁気揺らぎ、および、高次の多極子揺らぎの構造を明らかにし、それらを媒介とする非従来型超伝導がどのようなギャップ構造をもつか、系統的に研究し、新規高温超伝導体を設計するための糧とする。

### 4. 研究成果

鉄系超伝導体や重い電子系化合物のよう

に軌道自由度が重要な役割を果たすと考えられる遍歴電子系では、バンド構造が非常に複雑なため、これまで、その電子状態が内包する豊富な物理を正確に読み解くことが非常に困難であった。当該研究グループでは、開発した計算コードを利用することで、重い電子系のようにスピン軌道相互作用の強い系に対しても、低エネルギー有効模型を構築

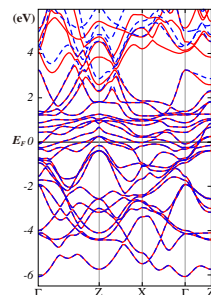


図1.  $URu_2Si_2$  のバンド構造(主要論文の Fig.S1 から抜粋)。実線が第一原理計算によって得られたバンド構造。低エネルギー有効模型に基づいて、よく再現される(破線)。

することに成功した。また、その模型に基づいて、軌道分解したフェルミ面の計算や磁気揺らぎ・多極子揺らぎの計算を行うことで、これまで純理論的なモデル計算の域を出なかった重い電子系の物理をより具体的に個々の物質の性質を取り込んだ物理へと昇華することに成功した。そのような研究方針は当該分野において最も王道に近い方法であり、そのため、高い汎用性をもつ。事実、我々の研究をきっかけにして、同様の超多軌道系を正面から研究するという方向性が徐々に定着してきており、当該分野の研究を強く後押ししている。この研究成果を柱として、現在までに、以下のような特筆すべき成果があがっている。

- (1)  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序 --- 重い電子系超伝導体  $URu_2Si_2$  は 17.5K において明確な相転移を示すにもかかわらず、長年その原因が分からないままとなっており、隠れた秩序と呼ばれる。当該グループでは、その遍歴模型を構築し、世界で初めてその多極子揺らぎの構造を明らかにした。その結果は面内の回転対称性を破った 32 極子への相転移を強く示唆し、既存の実験事実を矛盾なく説明できる解として現在も有望視されている。(2012年6月4日付の京都新聞に紹介された)

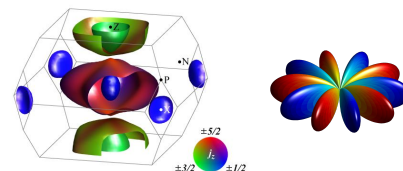


図2. (左) $URu_2Si_2$  のフェルミ面(主要論文の Fig.1 から抜粋)。構成される軌道により色分けされている。(右) 32 極子の模式図。色はミクロな磁石の N 極、S 極に対応する。

- (2)  $CeCu_2Si_2$  の超伝導対称性 --- 重い電子系超伝導体  $CeCu_2Si_2$  は、初めての非従

来型(*d*波)超伝導体と考えられてきたが、最新の比熱測定では、ノード構造のないフルギャップ超伝導体であることが示唆された。当該グループによる微視的な計算でも *d*波状態よりむしろ異方的 *s*波状態が有望であることが示唆されており、その理解の再考察が迫られている。

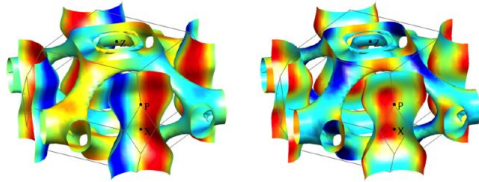


図3. 考えられる  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の超伝導ギャップ構造 (主要論文 の Fig.2 から抜粋)。 (左) *d*波と (右) 異方的 *s*波。赤色と青色の境目が超伝導ギャップがゼロとなる部分。

- (3)  $\text{CeCoIn}_5$  の電子状態 --- 第一原理計算で得られた 2 次元のフェルミ面が反強磁性的な揺らぎを生じ、それを媒介とした *d* 波超伝導が出現していると考えられている。しかし、実際にはそのバンド構造から自然に反強磁性揺らぎが得られるわけではないことが示された。むしろ、一部のフェルミ面は電子相関の効果によって、超伝導転移温度付近では、まだ準粒子状態を形成できていないと考えることで磁気揺らぎが反強磁性的となり、また、その残留エントロピーが超伝導転移で開放されるため大きな比熱の飛びを示しているという可能性が示された。

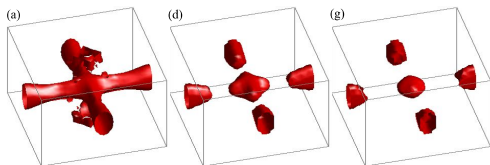


図4. 重い電子系超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  の一つのフェルミ面の温度依存性 (主要論文 の Fig.4 から抜粋)。温度を下げると左から右に向かって変化する。

- (4) その他、実験グループとの共同研究 --- 新たな実験事実を解釈する上で、第一原理計算による電子状態の情報は非常に重要であり、特に、軌道分解したフェルミ面の情報は、物性を考察する上で非常に役立つ。ここでは、角度分解光電子分光との直接比較などにより、微視的な理論との比較検討がなされた。

## 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 31 件) (すべて査読有)

H.Ikeda, M.-T.Suzuki, R.Arita, Emergent Loop-Nodal  $s_x$ -Wave Superconductivity in  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ : Similarities to the Iron-Based Superconductors, Phys. Rev. Lett. 114, 147003 (2015), DOI:10.1103/PhysRevLett.114.147003

T.Shibauchi, H.Ikeda, Y.Matsuda, Broken symmetries in  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , Phil. Mag. 94, 3747-3759 (2014), DOI:10.1080/14786435.2014.887861

P.Thalmeier, T.Takimoto, H.Ikeda, Itinerant multipolar order in  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  and its signature in magnetic and lattice properties, Phil. Mag. 94, 3863-3876 (2014), DOI:10.1080/14786435.2013.861615

T.Nomoto, H.Ikeda, Fermi surface evolution and d-wave superconductivity in  $\text{CeCoIn}_5$ : Analysis based on LDA+DMFT method, Phys. Rev. B 90, 125147 (2014), DOI:10.1103/PhysRevB.90.125147

S.Kittaka, Y.Aoki, Y.Shimura, T.Sakakibara, S.Seiro, C.Geibel, F.Steglich, H.Ikeda, K.Machida, Multiband Superconductivity with Unexpected Deficiency of Nodal Quasiparticles in  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ , Phys. Rev. Lett. 112, 067002 (2014), DOI:10.1103/PhysRevLett.112.067002

T.Nomoto, H.Ikeda, Effect of magnetic criticality and Fermi-surface topology on the magnetic penetration depth, Phys. Rev. Lett. 111, 167001 (2014), DOI:10.1103/PhysRevLett.111.167001

池田浩章, 鈴木通人, 遍歴側から見た  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の隠れた秩序, 固体物理 47, 693-706 (2012)

K.Okazaki, 他 23 名, 20 番目, Octet-Line Node Structure of Superconducting Order Parameter in  $\text{KFe}_2\text{As}_2$ , Science 337, 1314-1317 (2012), DOI:10.1126/science.1222793

K.Hashimoto, 他 16 名, 9 番目, A Sharp Peak of the Zero-Temperature Penetration Depth at Optimal Composition in  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ , Science 336, 1554-1557 (2012), DOI:10.1126/science.1219821

H.Ikeda, M.-T.Suzuki, R.Arita, T.Takimoto, T.Shibauchi, Y.Matsuda, Emergent rank-5 nematic order in  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , Nature Phys. 8, 528-533 (2012), DOI:10.1038/nphys2330

〔学会発表〕(計18件)

H.Ikeda, First-principles approach to heavy-fermion superconductors, Novel Quantum States in Condensed Matter 2014, 2014.11.26, YITP, 京都府京都市

H.Ikeda, Multipole order / fluctuations of itinerant f-electrons in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> and CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2014.7.9, Grenoble, フランス

H.Ikeda, Density-wave state of rank-5 multipole ---from the first-principles approach---, Workshop "Hidden Order, Superconductivity and Magnetism in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>", 2013.11.8, Lorentz Center, Leiden univ. オランダ

H.Ikeda, Recent progress on the first-principles approach in heavy-fermion systems, BCMS2013: Bernard Coqblin Memorial Symposium, 2013.9.6, Orsay, フランス

H.Ikeda, Hidden Order in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> --- Analysis based on the first-principles calculations, International Workshop on Dual Nature of f-Electrons, 2012.7.5, 地場産業センター, 兵庫県姫路市

〔その他〕

ホームページ等

<http://cond.scphys.kyoto-u.ac.jp/~hiro/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

池田 浩章 (IKEDA Hiroaki)  
立命館大学・理工学部・教授  
研究者番号: 90311737

(2)研究分担者

有田 亮太郎 (ARITA Ryotaro)  
独立行政法人・理化学研究所・創発物性科学研究センター・チームリーダー  
研究者番号: 80332592

鈴木 通人 (SUZUKI Michi-To)  
独立行政法人・理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員  
研究者番号: 10596547