

平成 29 年 5 月 13 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400349

研究課題名(和文) 強相関係の励起子ボーズ凝縮と超伝導に関する微視理論の展開

研究課題名(英文) Microscopic theories on the excitonic Bose condensation and superconductivity in strongly correlated systems

研究代表者

太田 幸則 (OHTA, Yukinori)

千葉大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：70168954

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：電子正孔対(励起子)の凝縮が熱平衡状態で実現する励起子絶縁体と呼ばれる状態に最近新たな注目が集まっている。本研究では、候補物質Ta₂NiSe₅を中心に、変分クラスター近似等を用いて理論研究を展開し、次項を明らかにした。(1) 電子格子相互作用やフント結合による励起子凝縮相の相対的安定性、(2) Ta₂NiSe₅の角度分解光電子分光実験で観測されるフラットバンドの起源、(3) Ta₂NiSe₅の超音波吸収係数の温度依存性に現れるコヒーレンスピークの予言、(4) Ta₂NiSe₅の軌道磁化率の異常の起源、(5) コバルト酸化物の磁気多極子秩序形成と低エネルギー集団励起構造の解明。

研究成果の概要(英文)：Renewed attention has recently been attracted to the excitonic insulator (EI) state, i.e., the state of electron-hole pair condensation in thermal equilibrium. In our research project, we have developed theoretical studies on candidate materials such as Ta₂NiSe₅ using the variational cluster and other approximations and obtained the results concerning: (1) the relative stability of the EI states caused by the electron-phonon and Hund's rule couplings, (2) the origin of the flat band observed in the angle-resolved photoemission spectra of Ta₂NiSe₅, (3) prediction of the coherence peak in the ultrasonic attenuation of Ta₂NiSe₅, (4) anomalous behavior of the orbital susceptibility in the EI state and Ta₂NiSe₅, and (5) magnetic multipole order and collective-mode excitations in a cobalt oxide material.

研究分野：物性物理学

キーワード：物性理論 強相関電子系 励起子凝縮 励起子絶縁体 遷移金属カルコゲナイド コバルト酸化物 多極子 変分クラスター近似

1. 研究開始当初の背景

電子正孔対(励起子)の凝縮が熱平衡状態で実現する励起子絶縁体と呼ばれる状態に最近新たな注目が集まっている。特に、遷移金属カルコゲナイド Ta_2NiSe_5 の低温相が励起子絶縁体状態にあるという提案が角度分解光電子分光実験からなされた。電気伝導や比熱測定からもこの物質の相転移の特異性が指摘されていた。それに対し我々は、第一原理計算から求めたバンド構造をもとに、電子相関とフォノン自由度を入れた有効模型を構築し、この系の相転移を励起子のボーズ・アインシュタイン凝縮で説明する提案を行った。当時から、高圧下で超伝導が発現するなど、様々な実験結果が蓄積されつつあった。我々は、励起子凝縮系の単純化された模型に対する定量的な理論研究や、 Ta_2NiSe_5 という具体的な物質に対する研究で先導的役割を果たしてきた。

2. 研究の目的

励起子ボーズ凝縮物質として最近、遷移金属カルコゲナイド Ta_2NiSe_5 が注目を集めている。これは、近年研究が進んでいる二層グラフェン系の光や強電場励起での励起子ボーズ凝縮のカウンターパートである。本研究では、変分クラスター近似を用いて提案する強相関模型を解析し、 Ta_2NiSe_5 の励起子ボーズ凝縮の機構と高圧下超伝導の定量的解明を行う。また、関連する半導体二層系の励起子ボーズ凝縮や、光学格子中の冷却原子フェルミ気体におけるBCS-BECクロスオーバー、遷移金属カルコゲナイド系物質の励起子液体状態と超伝導に関して、第一原理計算、変分クラスター近似、密度行列繰り込み群の手法等を駆使し、分野横断的な総合的研究を展開する。これにより、フェルミオン系の量子凝縮に対する普遍的概念を創出する。

3. 研究の方法

分野横断的に研究を行うため、代表者に加えて、連携研究者、海外研究協力者、博士後期課程院生を含む多数の研究者の連携により推進する。役割分担を決め、国内の実験グループとも連携し、計画の3年間で次の課題を順次実行に移す。(1) Ta_2NiSe_5 における励起子ボーズ凝縮と超伝導機構の定量的・総合的解明、(2)二層グラフェン系や光学格子系を含む人工励起子ボーズ凝縮系への展開、(3)関連する各種遷移金属カルコゲナイド系物質における励起子液体状態と超伝導の解明。得られた研究成果は、学术论文として出版し、国内学会・国際会議等において広く世界に公表する。以上により、強相関系の励起子ボーズ凝縮と超伝導に関し、総合的な研究を展開する。

4. 研究成果

本研究では、種々の理想化された理論模型や候補物質 Ta_2NiSe_5 の解析を中心に、変分クラ

スター近似等を用いて理論研究を展開し、次項の(1)~(7)を明らかにした。また、「相関電子系における励起子凝縮の物理の新展開」と題する日本語の解説記事を出版した。さらに、この分野の最近の著しい発展により、今後の更なる研究の展開が必要であることを明らかにし、その具体的研究課題を明確化させた。これにより、本研究は、平成29年度から3年間の計画で採択された科研費研究「励起子凝縮が創出する新奇量子相理論の新展開」(基盤(C)、代表:太田幸則)に繋がることとなった。

(1) 電子格子相互作用とフォント結合の効果

雑誌論文

電子格子相互作用とフォント結合を考慮した2バンドハバード模型における励起子絶縁体状態の安定性を、平均場近似と変分クラスター近似を用いて解析した。バンド間クーロン相互作用と電子格子相互作用は、どちらも系に電荷密度波(CDW)を誘発するが、前者が支配的な場合はフォノン的なCDWを、後者が支配的な場合は励起子的CDWを誘発する。それに対しフォント結合は励起子スピン密度波(SDW)を促進する。パラメータ空間で励起子CDWと励起子SDWの相対的安定性を決定し、基底電子相図を描いた。これは下記(5)に繋がる成果である。また、励起子凝縮体の超流動性を妨げる励起子秩序パラメータの位相の固定化について議論した。さらに、強相関電子系のいくつかの物質における励起子凝縮がもたらす効果について議論した。

(2) Ta_2NiSe_5 の角度分解光電子分光

雑誌論文

拡張Falicov-Kimball模型の有限温度変分クラスター近似での計算によって、角度分解光電子分光実験で観測される Ta_2NiSe_5 のバンド分散の温度依存性を再現し、その励起子凝縮機構に対する意味を考察した。価電子帯のトップの平坦バンド構造は転移温度325 Kよりずっと高温から生じており、強い励起子揺らぎ(電子正孔対 preformed pairs の形成)が転移温度より遥か高温から発生していることを示している。この計算結果は、 Ta_2NiSe_5 の励起子凝縮が、Bose-Einstein condensation (BEC) 領域に属していることを示している。

(3) Ta_2NiSe_5 におけるミクロな量子干渉効果

雑誌論文

Ta_2NiSe_5 の励起子凝縮相におけるミクロな量子干渉効果を、BCS平均場近似を用いて計算した。そして、超音波吸収係数の温度依存性にはコヒーレンス・ピークが転移温度のすぐ下に現れるのに対し、NMRスピン格子緩和時間の逆数の温度依存性は、転移温度以下で急激な減少を示すことを明らかにした。これが実験的に観測されれば、 Ta_2NiSe_5 が励起子凝縮系物質であるというシナリオの妥当性

について、重要な実験的証拠が提供できる。我々はまた、 Ta_2NiSe_5 の励起子凝縮が、二次相転移として、転移温度における熱容量の飛びと剪断弾性定数のソフト化に現れることを示した。これらの結果は実験と整合している。

(4) Ta_2NiSe_5 の軌道磁化率の異常の起源

雑誌論文

我々は正方格子上で定義された2バンドモデルに対し、平均場近似を用いて、励起子凝縮相における軌道反磁性磁化率を計算した。半導体領域では、励起子凝縮体は、価電子帯と伝導帯との間の自発的な混成によって有限の反磁性の磁化率を獲得するが、半金属領域では、励起子凝縮によって正常相の反磁性磁化率が抑制されることを示した。我々はまた、軌道反磁性磁化率とパウリ常磁性磁化率の温度依存性を、 Ta_2NiSe_5 に対する2次元3バンドモデルを用いて計算し、全磁化率の温度依存性が実験と定性的に一致することを確認した。

(5) 電気・磁気多極子秩序の形成

雑誌論文

タイトバインディング近似における励起子絶縁体状態の電荷およびスピン密度分布の空間分布を研究した。我々はまず、価電子帯と伝導帯がひとつの原子内のふたつの互いに直交する軌道で構成されている場合について、励起子絶縁体状態の電荷密度分布とスピン密度分布を考察した。この場合は、異方的電荷密度分布またはスピン密度分布が単位胞（または原子）内に生じ、より高いランクの電気または磁気多極子モーメントが有限になること、すなわち励起子絶縁体状態が多重極子秩序の形成に対応することを示した。そして、 s 、 p 、 d 軌道について多重極モーメントの一般的な記述を与えた。この場合、従来の電荷またはスピン密度波状態とは対照的に、総電荷または正味磁化の空間的変調は現れない。しかし、伝導帯と価電子帯が同じ軌道の成分を含む場合、従来の密度波状態と同様に、全電荷または正味磁化の空間的変調が現れる。我々は次に、価電子帯と伝導帯が異なる原子に位置する軌道で構成されている場合について、励起子絶縁体状態の電子密度分布を考察した。そして、この場合の励起子秩序は、ボンド・オーダーの形成に対応することを示した。以上の結果をもとに、最近報告されている現実の物質に対する励起子絶縁体状態について議論した。

(6) コバルト酸化物における集団励起構造

雑誌論文

ペロブスカイト型コバルト酸化物で発現する可能性のある励起子凝縮状態およびその低エネルギー励起スペクトルを計算した。我々はまず、 $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{CoO}_3$ の3dバンドを再現するように3次元立方格子上に定義された5

軌道ハバード模型を構築した。この模型を用いて、乱雑位相近似(RPA)で正常状態の励起子感受率を計算し、励起子凝縮に対する不安定性の発現を示した。また平均場近似を用いて、この系の励起子相においては磁気多重極子が形成されることを示した。さらにこの励起子基底状態に対して、RPAを用いて励起子相における動的スピン感受性を計算し、横モードにはギャップレスな集団励起(Goldstoneモード)が現れ、縦モードにはギャップのある集団励起(Higgsモード)が現れることを示した。これらの励起の中性子非弾性散乱実験での観測可能性を議論した。

(7) その他の関連する研究

本科学研究課題に直接的ないし間接的に関連する研究として、

フラストレート量子系の金属絶縁体転移と磁性

ハルデン相におけるエンタングルメント物性

3成分フェルミオン系のモット転移と交替秩序

ディラック電子系の金属絶縁体転移

引力ハバード模型における超流動性の次元クロスオーバー

トポロジカル相と磁性の共存可能性

各種強相関遷移金属化合物($\alpha\text{-Sr}_2\text{CrO}_4$ 、 RuPn ($\text{Pn} = \text{P}, \text{As}, \text{Sb}$)、 V_6O_{13})の電子構造計算と物性

等の研究を展開し、学術論文として出版した。詳細については、下記の発表論文を参照のこと。

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21件)

太田幸則，金子竜也，杉本高大，相関電子系における励起子凝縮の物理の新展開，固体物理(アグネ技術センター)，査読有，52，2017，119-137.

<http://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/kota1052.htm#no613>

K. Sugimoto, T. Kaneko, Y. Ohta, Coherence Factors and Quantum Interferences in Excitonic Condensation of Ta_2NiSe_5 , Journal of Physics: Conference Series, 査読有，807，2017，112001/1-7.

doi:10.1088/1742-6596/807/11/112001

T. Yamaguchi, K. Sugimoto, Y. Ohta, Low-Energy Excitation Spectra in the Excitonic Phase of Cobalt Oxides, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有，86，2017，043701/1-4. <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.86.043701>

T. Ishikawa, T. Toriyama, T. Konishi,

- H. Sakurai, Y. Ohta, Reversed Crystal-Field Splitting and Spin-Orbital Ordering in α - Sr_2CrO_4 , Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 86, 2017, 033701/1-4. <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.86.033701>
- K. Misumi, T. Kaneko, Y. Ohta, Mott transition and magnetism of the triangular-lattice Hubbard model with nextnearest-neighbor hopping, Physical Review B, 査読有, 95, 2017, 075124/1-7. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.075124>
- S. Miyakoshi, S. Nishimoto, Y. Ohta, Entanglement properties of the Haldane phases: A finite system-size approach, Physical Review B, 査読有, 94, 2016, 235155/1-12. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.235155>
- T. Kaneko, Y. Ohta, Electric and magnetic multipoles and bond orders in excitonic insulators, Physical Review B, 査読有, 94, 2016, 125127/1-15. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.125127>
- K. Sugimoto, Y. Ohta, Orbital Diamagnetic Susceptibility in Excitonic Condensation Phase, Physical Review B, 査読有, 94, 2016, 085111/1-6. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.085111>
- T. Hasunuma, T. Kaneko, S. Miyakoshi, Y. Ohta, Mott Transition and Staggered Orders in the Three-component Fermionic System: Variational Cluster Approximation, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 85, 2016, 074704/1-7. <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.074704>
- K. Misumi, T. Kaneko, Y. Ohta, Phase Diagram of the Frustrated Square-lattice Hubbard Model: Variational Cluster Approach, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 85, 2016, 064711/1-7. <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.064711>
- K. Sugimoto, T. Kaneko, and Y. Ohta, Microscopic quantum interference in excitonic condensation of Ta_2NiSe_5 , Physical Review B, 査読有, 93, 2016, 041105(R)/1-5. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.93.041105>
- H. Goto, T. Toriyama, T. Konishi, and Y. Ohta, Novel Electronic Structures of Ru-Pnictides RuPn ($\text{Pn} = \text{P, As, Sb}$), Physics Procedia, 査読有, 75, 2015, 91-99. doi: 10.1016/j.phpro.2015.12.013
- T. Kaneko, B. Zenker, H. Fehske, and Y. Ohta, Competition between excitonic charge and spin density waves: Influence of electron-phonon and Hund's rule couplings, Physical Review B, 査読有, 92, 2015, 115106/1-7. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.115106>
- M. Ebato, T. Kaneko, Y. Ohta, Metal-Insulator Transition of Dirac Fermions: Variational Cluster Study, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 84, 2015, 044714/1-5. <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.84.044714>
- T. Kaneko, Y. Ohta, Excitonic phase in the two orbital Hubbard model: Roles of Hund's rule coupling, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 592, 2015, 012096/1-6. doi:10.1088/1742-6596/592/1/012096
- K. Misumi, T. Kaneko, Y. Ohta, Frustration and magnetic ordering in the square lattice Hubbard model with anisotropic next-nearestneighbor hopping, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 592, 2015, 012113/1-6. doi:10.1088/1742-6596/592/1/012113
- N. Ogawa, T. Kaneko, Y. Ohta, Dimensional crossover of the superfluid state in the attractive Hubbard model, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 592, 2015, 012103/1-6. doi:10.1088/1742-6596/592/1/012103
- S. Miyakoshi, Y. Ohta, Coexistence of magnetic and topological phases in the asymmetric Kane-Mele-Hubbard model, 査読有, Journal of Physics: Conference Series, 592, 2015, 012129/1-6. doi:10.1088/1742-6596/592/1/012129
- T. Kaneko, Y. Ohta, Roles of Hund's rule coupling in excitonic density wave states, Physical Review B, 査読有, 90, 2014, 245144/1-7. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.245144>
- K. Seki, Y. Wakisaka, T. Kaneko, T. Toriyama, T. Konishi, T. Sudayama, N. L. Saini, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, N. Katayama, M. Nohara, H. Takagi, T. Mizokawa, Y. Ohta, Excitonic Bose-Einstein Condensation in Ta_2NiSe_5 Above Room Temperature,

Physical Review B, 査読有, 90, 2014, 155116/1-7.
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.155116>

- 21 T. Toriyama, T. Nakayama, T. Konishi, Y. Ohta, Charge and Orbital Orderings Associated with Metal-Insulator Transition in V6013, Physical Review B, 査読有, 90, 2014, 085131/1-9.
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.085131>

〔学会発表〕(計 57 件)

以下には研究代表者による代表的な口頭発表のみを挙げる。

太田幸則, バンド縮退を持つ電子正孔系の新しい金属絶縁体転移 - 励起子凝縮系としての Ta₂NiSe₅ の新展開, 日本物理学会, 2017 年 3 月 17 日~2017 年 3 月 20 日, 大阪大学(大阪府・豊中市)。

Y. Ohta, Excitonic phases in correlated electron systems and Ta₂NiSe₅, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2016 年 5 月 8 日~2016 年 5 月 13 日, Hangzhou (China)。

Y. Ohta, Excitonic condensation and superconductivity in Ta₂NiSe₅, International Conference on Magnetism, 2015 年 7 月 5 日~2015 年 7 月 10 日, Barcelona (Spain)。

太田幸則, エキシトニック相の理論と Ta₂NiSe₅ の電子状態, 物性研短期研究会「低次元電子系におけるエキシトニック相の新展開」, 2015 年 11 月 26 日~2015 年 11 月 28 日, 東京大学物性研究所(千葉県・柏市)。

太田幸則, Ta₂NiSe₅ の励起子ボーズ・アインシュタイン凝縮および関連物質の理論, 日本物理学会, 2015 年 3 月 21 日~2015 年 3 月 24 日, 早稲田大学(東京都)。

上記以外の学会発表 52 件。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://physics.s.chiba-u.ac.jp/ohta/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

太田 幸則 (OHTA, Yukinori)

千葉大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号: 70168954

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

山田 篤志 (YAMADA, Atsushi)

千葉大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号: 10251399

小西 健久 (KONISHI, Takehisa)

千葉大学・大学院融合科学研究科・准教授

研究者番号: 40302525

関 和弘 (SEKI, Kazuhiro)

理化学研究所・柚木計算物性物理研究室・

基礎科学特別研究員

研究者番号: 40708533

(4) 研究協力者

金子 竜也 (KANEKO, Tatsuya)

理化学研究所・柚木計算物性物理研究室・

基礎科学特別研究員

研究者番号: 30784433

杉本 高大 (SUGIMOTO, Koudai)

千葉大学・先進科学センター・特任助教

研究者番号: 70756072

西本 理 (NISHIMOTO, Satoshi)

IFW-Dresden and TU-Dresden (Dresden,

Germany)

江島 聡 (EJIMA, Satoshi)

Univ. Greifswald (Greifswald, Germany)

Holger Fehske (FEHSKE, Holger)

Univ. Greifswald (Greifswald, Germany)