

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03459

研究課題名（和文）フラレン超伝導体のダブロン自由度が生み出す多軌道強相関物性

研究課題名（英文）Strongly correlated electron physics emerging from doublon degrees of freedom in fullerenes

研究代表者

星野 晋太郎 (Hoshino, Shintaro)

埼玉大学・理工学研究科・助教

研究者番号：90748394

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：室温以下の固体中では、電子の持つ内部自由度（電荷・スピン・軌道）が相互作用を通じて複雑に絡み合うことにより興味深い協力現象が発現する。本研究の主題となるのは、軌道自由度をもつフラレン化合物である。我々は量子統計力学に基づき、フラレン中の電子が及ぼしあう特異な相互作用が誘起する電子状態を明らかにした。さらに、そこで構築された理論手法を、多軌道電子系を有する一般の物質群にも適用できるよう拡張を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

フラレン物質に代表される強相関電子系では、電子そのものではなく、相互作用によって電子同士が結合した複合体が発現し、これに起因して様々な興味深い現象が引き起こされる。このような物理は、通常の電子に由来する現象とは質的に異なるものであり、新しい電子物性・機能の開拓につながる可能性がある。さらに、本研究で構築した理論枠組みは他の物質にも適用できるため、今後、この手法を一般の物質群に応用して新規現象を探求することができる。

研究成果の概要（英文）：In solids at temperatures below room temperature, the internal degrees of freedom of electrons (charge, spin, and orbital) are entangled, leading to fascinating cooperative phenomena. The focus of this study is on fullerene compounds with orbital degrees of freedom. Based on quantum statistical mechanics, we elucidate the unique electronic states induced by the peculiar interactions among electrons in fullerenes. Furthermore, we extend the theoretical methods developed here to be applicable to general classes of materials with multi-orbital electron systems.

研究分野：強相関電子系

キーワード：フラレン 超伝導 強相関電子系 多軌道系

1. 研究開始当初の背景

室温以下の固体中では、電子の持つ内部自由度(電荷・スピン・軌道)が相互作用を通じて複雑に絡み合うことにより興味深い協力現象が発現する。本研究の主題は、アルカリ金属(A)が挿入されたフラーレン物質 A3C60 の低温物性である。孤立フラーレン分子では分子軌道が閉殻であるが、アルカリ金属 A が挿入された結晶では 3 重縮退した t_{1u} 分子軌道が半分占有されて(ハーフフィルド)フェルミ面を形成する。その電子自由度が、電子間クーロン相互作用やフォノンと結合して量子多体系を形成し、多様な現象が生み出される。代表例は 40 K 程度の高い転移温度を持つ超伝導状態であり、1990 年代初頭から活発な研究がなされてきた。超伝導の起源については電子・フォノン相互作用由来であることが同定されたが、異方的なヤーン・テラーフォンを巻き込んだ多軌道電子・格子相互作用により、通常強磁性的であるフント結合が有効的に反強磁性的なことが物性に重要な影響を及ぼすことが示された。さらに 2009 年にはモット絶縁体相が超伝導相に隣接していることが明らかにされ[Takabayashi et al., Science (2009)]、銅酸化物や鉄系超伝導体、重い電子系といった他の強相関電子系超伝導体と共通の性質が内在していることが明らかとなった。さらに、モット絶縁体近傍の金属相において、金属的な振る舞いとモット絶縁体的な振る舞いが共存する異常金属相(ヤーン・テラー金属)が実験的に見出されており[Zadik et al., Sci. Adv. (2015)]、その微視的起源に反強磁性フント結合が影響を及ぼしていると考えられる。フラーレン系ではその他にも、光誘起超伝導の可能性[Mitrano et al., Nature (2017)]や 2 次元的フラーレン結晶[Ren et al., Phys. Rev. Lett. (2020)]など、最近まで新しい物性を提供し続けている。

多軌道電子系ではこれまで、クーロン相互作用に起源を持つ強磁性的なフント結合をもつ系(多軌道ハバードモデル)が理論的に議論されてきたが、フラーレン結晶を理解するためには反強磁性フント結合の特徴を解明する必要があり、強磁性フント結合と質的に異なる新規量子現象の可能性を秘めている。本研究の核心をなす問いは、「フラーレン物質群に特有な反強磁性フント結合を持つ電子系が生み出す特徴的物性およびその機構は何か?」ということにある。

申請者らの先行研究によって、フラーレン物質を想定した多軌道ハバードモデルが解析され、ヤーン・テラー金属相は分子軌道ごとに遍歴的電子と局在電子が共存する軌道秩序相として理解できることが提案された[1,2]。この秩序の特徴は、反強磁性フント結合のために局在電子が分子軌道を 2 重占有(ダブロン)して低スピン状態を形成することにある。それゆえ、通常の 1 体の物理量を考えただけでは秩序状態を表現することができず、軌道自由度を記述するためにはダブロンの自由度が本質的に重要である。しかし、これまでの研究では上記の特異な秩序相を数値計算で見出したに過ぎず、その発現機構や電磁氣的・熱力学的な応答特性に関する系統的な研究が不足している。

2. 研究の目的

本研究は、反強磁性フント結合をもつ系の特徴であるダブロン自由度が生み出す新しい量子状態の発現機構およびその物性を、理論的に明らかにすることを目的とする。そしてその知見を応用して、現実のフラーレン結晶および関連する多軌道電子系において、新奇現象の開拓・提案を目指す。

3. 研究の方法

軌道自由度を持つダブロンを、平均場描像・弱相関描像・強相関描像に基づいて系統的に明らかにする。さらに現実のフラレン物質での現象を理論的に予測するために、現実的なバンド構造も駆使して、反強磁性フント結合およびダブロンに起因する物性を記述する。

4. 研究成果

(1A) フラレン化合物群では化学置換によって遍歴状態である金属だけでなく局在状態であるモット絶縁体も実現する。我々はまず、A3C60 を念頭に置いた t_{1u} 軌道の系における強相関極限から研究を行った。これまでに、強磁性フント結合を持つハバードモデルの強相関極限モデルはクーゲル・コムスキーモデル[Kugel-Khomskii, Sov. Phys. Usp. (1982)] として知られている。一方、反強磁性フント結合を持つ系ではダブロンを軌道自由度を正確に考慮し、かつ現実的な分子内相互作用と分子間ホッピングを持ったモデルでの強相関領域の議論が不可欠である。我々は分子軌道に電子が局在した極限からの摂動論的アプローチを用い、かつ現実的なバンド構造を取り込んだうえで局在有効モデル(Kugel-Khomskii モデル)を構築した[3,4]。それを平均場解析することにより、フラレン系特有のダブロン軌道秩序を見出し、その熱力学的安定性を議論した。

(1B) フラレン結晶のモット絶縁体領域において構築した理論をさらに拡張し、任意のモット絶縁体に対する理論手法を構築した。そのデモンストレーションとして、パイロクロア酸化物という複雑な構造をもつ $5d$ 電子系物質に対して適用した[5]。最も基本的な解析手法である平均場近似に加え、空間相関も取り入れることのできる古典モンテカルロ法の定式化および数値計算実装も行った。ここで古典モデルは、 $SU(N)$ コヒーレント状態に基づき経路積分表示を導入することによって定式化される。パイロクロア酸化物に対して具体的に計算を実行することにより、局在電子系において通常考えられるスピン・軌道・多極子に加え、多体電子系特有のダブロン自由度などの記述が、任意のモット絶縁体に対して可能であることが示された。

さらに理論的枠組みを拡張し、非平衡状態のシミュレーションを可能にする運動方程式の定式化にも成功している。その際、熱浴の自由度も取り入れ、エネルギー減衰や熱浴から及ぼされるノイズの効果も方程式に取り込んでいる[6]。

(2A) 弱相関のアプローチ(エリアシュベルク理論)をフラレン系に適用した。その際、多軌道系における複雑な相互作用を対称性に基づいて整理することにより、電子間相互作用や電子・フォノン相互作用を統一的に扱った理論を定式化し、フラレン系に対する半定量的な議論を行った。その結果、多軌道系特有の相互作用が超伝導状態に及ぼす影響について解析的・数値的に明らかにした[7]。この観点からの研究はさらに進められ、超伝導体中の電子系・フォノン系の動力学を実周波数グリーン関数に基づいて調べ、核磁気緩和率や状態密度の解析も行っている。

(2B) 上述の論文では、立方対称な金属相に対してエリアシュベルク理論を構築した。我々はさらにこの解析枠組みを拡張し、立方対称性を持たない任意のスピン・軌道・超伝導状態の記述に成功した。例えば、スピン状態に関しては任意の磁化の方向を持つ状態の理論解析が可能となり、超伝導状態では任意のクーパー対状態および奇周波数超伝導に関しても解析できるようになった。これにより、様々な秩序状態の可能性や、磁場・歪みといった様々な外場に対する応答

を議論することができる。理論枠組みは一般的に構築してあるので、フォノンだけでなく一般のボゾンとの結合（例：フォトンと電子の結合[9]）にも適用可能であり、広い物質群に応用することができる。

（3）ダブロン物理は強相関極限（モット絶縁体領域）で捉えることができるが、局所的なヒルベルト空間を制限していることにより、そのトレードオフとして金属領域への接続が非自明になる。拘束条件付きの量子多体問題は、一般にその理論解析が困難である。このような状況をリーズナブルな計算コストで近似的に解析できる方法論の構築を目指し、経路積分法の観点から手法開発を行った。通常は各フェルミオンの生成・消滅演算子にグラスマン数を割り当てる方法が用いられているが、（1B）で述べた強相関極限におけるSU(N)コヒーレント状態を駆使することにより、グラスマン数の使用を最小限にとどめることができる。これによって、非自明な局所相関を取り入れつつ、計算コストの低い近似手法を構築することができた[10]。

（4）まとめ

以上のように、本研究では多軌道自由度をもつ典型例として、フラレン化合物における特徴的なダブロン物性を強相関極限・弱相関極限から明らかにした。さらに、構築した手法は一般の物質にも適用でき、今後これらの手法を用いて、物性の解明や新規物性の予言に繋がることが予想される。

<引用文献・参考資料>

- [1] S. Hoshino and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **118**, 177002 (2017)
- [2] S. Hoshino, P. Werner, and R. Arita, Phys. Rev. B **99**, 235133 (2019)
- [3] R. Iwazaki and S. Hoshino, Phys. Rev. B **103**, 235145 (2021)
- [4] R. Iwazaki and S. Hoshino: JPS Conf. Proc. **38**, 011164 (2022)
- [5] R. Iwazaki, H. Shinaoka, and S. Hoshino, Phys. Rev. B **108**, L241108 (2023)
- [6] 星野晋太郎、Rico Pohle, 求幸年、日本物理学会春季大会 (2024年3月)
- [7] Y. Kaga, P. Werner, and S. Hoshino, Phys. Rev. B **105**, 214516 (2022)
- [8] 岡田夏希、三木健矢、星野晋太郎、日本物理学会年次大会 (2024年9月発表予定)
- [9] S. Hoshino, arXiv:2311.05294 (2023)
- [10] 山崎勇輝、星野晋太郎、日本物理学会年次大会 (2024年9月発表予定)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Miki Tatsuya, Ikeda Hiroaki, Hoshino Shintaro	4. 巻 109
2. 論文標題 Impurity effect on Bogoliubov Fermi surfaces: Analysis based on iron-based superconductors	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.109.094502	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Iwazaki Ryuta, Shinaoka Hiroshi, Hoshino Shintaro	4. 巻 108
2. 論文標題 Material-based analysis of spin-orbital Mott insulators	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.108.L241108	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Misu Yutaro, Tamura Shun, Tanaka Yukio, Hoshino Shintaro	4. 巻 107
2. 論文標題 Eta-pairing on square and triangular lattices	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.107.184512	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hoshino Shintaro, Suzuki Michi-To, Ikeda Hiroaki	4. 巻 130
2. 論文標題 Spin-Derived Electric Polarization and Chirality Density Inherent in Localized Electron Orbitals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.130.256801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Kaga, P. Werner, S. Hoshino	4. 巻 105
2. 論文標題 Eliashberg theory of the Jahn-Teller-Hubbard model	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214516-1, 14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.214516	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Iwazaki Ryuta, Hoshino Shintaro	4. 巻 103
2. 論文標題 Spin-orbital model for fullerenes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235125-1, 16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.235145	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chikano Naoya, Hoshino Shintaro, Shinaoka Hiroshi	4. 巻 104
2. 論文標題 Multipolar ordering in the three-orbital Hubbard model	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235125-1, 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.235125	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 星野 晋太郎
2. 発表標題 局在電子軌道における電気分極とカイラリティ
3. 学会等名 研究会「強相関電子系のフロンティア」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 星野晋太郎、三木健矢、鈴木通人、池田浩章
2. 発表標題 電子系におけるカイラリティと電磁場の結合
3. 学会等名 日本物理学会年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shintaro Hoshino
2. 発表標題 Spin-orbital dynamics of localized electrons
3. 学会等名 Computational Approaches to Quantum Many-Body Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 星野晋太郎
2. 発表標題 小研究会「物性科学における電子カイラリティ密度の理論」
3. 学会等名 物性物理における相対論補正
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shintaro Hoshino
2. 発表標題 Relativistic corrections in strongly correlated electron systems
3. 学会等名 Second Workshop on Fundamentals in density functional theory (DFT2024) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 星野晋太郎、Rico Pole, 求幸年
2. 発表標題 電子・フォノン結合を用いたモット絶縁体に対する拡張LLG方程式の導出
3. 学会等名 日本物理学会春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 星野晋太郎、岩崎龍太、品岡寛
2. 発表標題 局在多軌道電子系におけるモンテカルロ解析
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shintaro Hoshino
2. 発表標題 Spin-orbital dynamics of localized electrons
3. 学会等名 Trends in the Theory of Quantum Materials 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shintaro Hoshino
2. 発表標題 Microscopic theory of fulleride superconductors
3. 学会等名 International workshop on Physics and Chemistry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Iwazaki and S. Hoshino
2. 発表標題 Spin-orbital model for fullerenes
3. 学会等名 International Conference on Quantum Liquid Crystals 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩崎龍太、近野直也、品岡寛、星野晋太郎
2. 発表標題 パイロクロア酸化物の多軌道電子系に対する強相関極限解析
3. 学会等名 日本物理学会2021 年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩崎龍太、近野直也、品岡寛、星野晋太郎
2. 発表標題 パイロクロア酸化物に対する局在電子系のスピン・軌道相関
3. 学会等名 日本物理学会第77 回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

量子物性理論研究室 http://www.phy.saitama-u.ac.jp/~hoshino/
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	岩崎 龍太 (Iwazaki Ryuta)		
研究協力者	岡田 夏希 (Okada Natsuki)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関