

平成 28 年 6 月 27 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2015

課題番号：24740232

研究課題名(和文)分子凝縮系の分子内自由度と伝導特性

研究課題名(英文)Internal degree of freedom in novel molecular conductors

研究代表者

土射津 昌久(Tsuchiizu, Masahisa)

名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・講師

研究者番号：70362225

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：分子性導体、ルテニウム酸化物、銅酸化物高温超伝導体における軌道自由度に起因した物性を理論的に明らかにすることを目的とした研究を行った。まず、軌道自由度を取り扱う上で不可欠の「バーテックス補正効果」をバイアスなく取り込み、感受率を高精度で計算することのできる新しいくりこみ群法として、RG+cRPA法を開発した。この手法を用いて、「分子性導体における分子内電荷秩序状態の解明」、「ルテニウム酸化物におけるスピン・トリプレット超伝導の新たな発現機構の提案」を行った。さらに銅酸化物高温超伝導体においては、実験で観測されている電荷密度波状態を理論的に再現することに初めて成功し、軌道自由度の重要性を指摘した。

研究成果の概要(英文)：We performed theoretical analysis of the novel phenomena induced by the orbital degrees of freedom in molecular conductors, ruthenate superconductors, and high-Tc cuprate superconductors. We developed a new scheme of the renormalization-group method, called the RG+cRPA method, which enables us to calculate higher-order vertex corrections systematically with high numerical accuracy. By utilizing this method, we revealed the origin of intramolecular charge ordering in molecular conductors, and proposed a new mechanism of the triplet superconductivity in ruthenates. For the cuprates, we predicted that the orbital degree of freedom is of crucial importance, and succeeded for the first time in reproducing the experimentally-observed charge-density-wave state.

研究分野：物性理論

キーワード：強相関電子系 軌道自由度 分子性導体 ルテニウム酸化物 銅酸化物高温超伝導体 電荷密度波 くりこみ群

1. 研究開始当初の背景

多様な電子相が実現する分子性導体を理解するための物性物理学的なアプローチとして、最高占有軌道あるいは最低非占有軌道の単一軌道のみを考え「1分子=1サイト」とみなす強束縛近似に基づくアプローチが数多くの成功を収めてきた。しかし近年、分子の内部自由度に起因した現象、すなわち、1分子あたり複数の分子軌道(軌道自由度)が伝導および相転移に寄与する現象が注目を集めてきた。また、分子性導体のみならず、ルテニウム酸化物、銅酸化物高温超伝導体、鉄系超伝導体等において、軌道自由度の重要性に着目した研究が物性物理学の中心テーマの1つとして注目されていた。

しかしながら、従来の標準理論の枠組みでは、軌道自由度を考慮するうえで必須の効果である「バーテクス補正効果」を適切に取り扱うことが困難であったため、信頼性のある理論解析はできずにいた。

2. 研究の目的

軌道自由度を考慮し、スピン・電荷・軌道自由度がどのように結合するのか、を調べることは、現在の物性物理学における中心的問題として認識されている。

本研究では、多軌道強相関電子系において信頼性のある理論手法を開発し、それを用いることにより、「① 分子性導体の分子内電荷秩序」、「② ルテニウム酸化物のトリプレット超伝導」、「③ 銅酸化物高温超伝導体の電荷密度波状態」を理論的に明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

強相関電子系における多軌道性に起因した物性を理論的に明らかにするためには、従来の標準理論である乱雑位相近似(RPA)や揺らぎ交換近似(FLEX)では不十分であり、高次の多体相関効果である「バーテクス補正効果」に着目する必要がある。本研究では、バーテクス補正効果を系統的に取り入れることのできる理論体系である「汎関数くりこみ群法」の開発を行った。

従来のくりこみ群法は低エネルギー散乱に注目した理論形式であった。そのため、非常に強力な理論体系であるにも関わらず、適用範囲は相互作用の弱い領域に限られると考えられ、信頼性を得られずにいた。我々は、これらの問題を解決するため、高エネルギー部分の散乱効果を取り込む理論開発を行ってきた。特に発表論文⑥の解析においては、高エネルギー部分についてRPAにより相互作用の無限次まで取り込む

改良を行った。この改良により、一般に取り扱いの難しい2次元電子系において「バーテクス補正効果」をバイアスなく取り込み、感受率を高精度で計算することを可能にした。我々はこの新しい理論の枠組みを「RG+cRPA法」と名付け、種々の強相関電子系の解析を行った。

4. 研究成果

- ① 我々は、分子内自由度をもつ新たな候補物質の1つとして、電荷移動錯体(TTM-TTP)I₃に着目し、「フラグメント分子軌道」に基づくモデルを提案してきた。このモデルを厳密対角化法により解析し、基底状態の相関を求め、(TTM-TTP)I₃で実現する分子内電荷秩序パターンを理論予測を行った。さらに、分子内電荷秩序状態での光学電気伝導度を理論的に解析し、それまで未解明であった実験結果を説明することができた。また、このモデルにRG+cRPA法を適用し、スピンギャップを伴う分子内電荷秩序状態の記述を可能にした。この研究により、RG+cRPA法は弱相関領域から強相関領域まで適用することが可能であり、定量的にも信頼できる結果を示すことが確認できた。
- ② ルテニウム酸化物におけるスピン・トリプレット超伝導の起源を明らかにするため、2次元多軌道モデルをRG+cRPA法により解析した。「バーテクス補正効果」により、スピン揺らぎと軌道揺らぎが干渉し、スピン揺らぎの増大に伴い、軌道揺らぎが発達することを見出した。さらに超伝導感受率を解析した結果、軌道揺らぎとスピン揺らぎが協同的に働くことにより、トリプレット超伝導が実現することを明らかにした。これはルテニウム酸化物におけるトリプレット超伝導の発現機構の新たなシナリオを提案するものである。
- ③ 最近、銅酸化物高温超伝導体において電荷密度波(CDW)状態の実現が実験的に確認され、擬ギャップ領域の電子状態の解明に向けて大きな注目を集めている。この実験の進展を受けて「バーテクス補正効果」を考慮した理論解析が数多く行われているが、いずれも実験で得られたCDW状態を再現できず、その起源を明らかにすることができずにいた。我々は、RG+cRPA法を銅酸化物高温超伝導体の2次元d-pモデルに適用し、様々な電荷感受率の解析を行った。その結果、スピン揺らぎの弱い領域では、Maki-Thompson型のバーテクス補正効果により、従来の理論と同様の(実験を再現できない)CDW状態が得られるが、スピン揺らぎが強い領域においては、Aslamazov-Larkin型バーテクス補正効

果が重要な役割を果たすことを見出し、実験結果とコンシステントな CDW 状態を理論的に再現することに初めて成功した。この理論結果は、銅酸化物高温超伝導体における長年の重要未解決問題であった擬ギャップ領域の電子状態の解明において、重要な足がかりを与えると期待できる。

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 M. Tsuchiizu, Y. Yamakawa, H. Kontani, “*p-orbital density wave with d symmetry in high-Tc cuprate superconductors*” Phys. Rev. B 93 (2016) 155148, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.93.155148.
- ② A. Mizuno, Y. Shuku, R. Suizu, M.M. Matsushita, M. Tsuchiizu, D.Reta Maneru, F. Illas, V. Robert, K. Awaga “*Discovery of the K_4 Structure Formed by a Triangular π Radical Anion*” J. Am. Chem. Soc. 137 (2015) 7612-7615, 査読有, DOI: 10.1021/jacs.5b04180.
- ③ M. Tsuchiizu, Y. Yamakawa, Y. Ohno, S. Onari, H. Kontani “*Spin-triplet superconductivity in Sr_2RuO_4 due to orbital and spin fluctuations: Analyses by two-dimensional renormalization group theory and self-consistent vertex-correction method*” Phys. Rev. B 91 (2015) 155103, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevB.91.155103.
- ④ H. Seo, T. Tsumuraya, M. Tsuchiizu, T. Miyazaki, R. Kato “*Fragment Model Study of Molecular Multiorbital System $X[Pd(dmit)_2]_2$* ” J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 044716, 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.044716.
- ⑤ S. Akhanjee, M. Tsuchiizu, and A. Furusaki “*Composite pairing and superfluidity in a one-dimensional resonant Bose-Fermi mixture*” Phys. Rev. A 88 (2013) 043620, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevA.88.043620.
- ⑥ M. Tsuchiizu, Y. Ohno, S. Onari, H. Kontani “*Orbital Nematic Instability in the Two Orbital Hubbard Model: Renormaliza-*

tion-Group + Constrained RPA Analysis”

Phys. Rev. Lett. 111(2013) 057003,

査読有,

DOI:10.1103/PhysRevLett.111.057003.

- ⑦ T. Tsumuraya, H. Seo, M. Tsuchiizu, R. Kato, T. Miyazaki “*Cation Dependence of the Electronic States in Molecular Triangular Lattice System $B'X[Pd(dmit)_2]_2$: A First-principles study*” J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 033709, 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.82.033709.
 - ⑧ Y. Ohno, M. Tsuchiizu, S. Onari, H. Kontani “*Spin-Fluctuation-Driven Orbital Nematic Order in Ru-Oxides: Self-Consistent Vertex Correction Analysis for Two-Orbital Model*”, J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 013707, 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.82.013707.
- [学会発表] (計 46 件)
- ① 土射津昌久, “*汎関数繰り込み群法による多軌道強相関電子系の解析*”, 日本物理学会 2016 年年次大会, 2016 年 3 月 22 日, 東北学院大学 泉キャンパス.
 - ② M. Tsuchiizu, Y. Yamakawa, and H. Kontani “*p-Orbital Density Wave with d Symmetry in High-Tc Cuprate Superconductors*”, APS March Meeting 2016, 2016 年 3 月 16 日, Baltimore (USA).
 - ③ M. Tsuchiizu, “*Dirac dispersions in the strongly-isotropic crystal structures: honeycomb, diamond, and K_4* ” 2016 Kumamoto Symposium on Two Dimensional Nanomaterials, 2016 年 2 月 7 日, 熊本大学.
 - ④ M. Tsuchiizu, “*3D Dirac cones in the K_4 crystal*” International Chemical Congress of Pacific Basin Societies PACIFICHEM2015, 2015 年 12 月 16 日, Hawaii (USA).

- ⑤ 土射津昌久, 山川洋一, 紺谷浩, “*銅酸化物高温超伝導体における電荷密度波の理論: 汎関数繰り込み群法による解析*”,

- 日本物理学会 2015 年秋期大会,
2015 年 9 月 18 日,
関西大学 千里山キャンパス.
- ⑥ 土射津昌久, 吉岡英生, 妹尾仁嗣,
“中性イオン性転移系のボゾン化による
相図と低エネルギー励起の解析”,
日本物理学会 2015 年秋期大会,
2015 年 9 月 18 日,
関西大学 千里山キャンパス.
- ⑦ 土射津昌久, 山川洋一, 紺谷浩,
“汎関数繰り込み群法による銅酸化物高
温超伝導体における電荷密度波の理論”,
日本物理学会 第 70 回年次大会,
2015 年 3 月 24 日,
早稲田大学 早稲田キャンパス.
- ⑧ M. Tsuchiizu, Y. Yamakawa, S. Onari, H.
Kontani,
“Spin-Triplet Superconductivity in
 Sr_2RuO_4 due to Orbital and Spin Fluc-
tuations: 2D fRG Analysis”,
APS March Meeting 2015,
2015 年 3 月 3 日, San Antonio (USA).
- ⑨ M. Tsuchiizu,
“Spin Triplet Superconductivity in
 Sr_2RuO_4 due to Orbital and Spin Fluc-
tuations”,
7th International Conference on the
Exact Renormalization Group
(ERG2014),
2014 年 9 月 24 日,
Lefkada Island (Greece).
- ⑩ 土射津昌久, 山川洋一, 大野佑輔, 大成
誠一郎, 紺谷浩,
“ Sr_2RuO_4 における軌道揺らぎとスピン
揺らぎによるトリプレット超伝導: 2 次元
汎関数繰り込み群法による解析”,
日本物理学会 2014 年秋季大会,
2014 年 9 月 10 日,
中部大学 春日井キャンパス.
- ⑪ 土射津昌久, 大野佑輔, 大成誠一郎, 紺
谷浩,
“多軌道繰り込み群法によるルテニウム
酸化物の電子ネマティック揺らぎの研
究”,
日本物理学会 2013 年秋期大会,
2013 年 9 月 25 日, 徳島大学.
- ⑫ M. Tsuchiizu, S. Onari, H. Kontani,
“Orbital Nematic Instability in
Two-Orbital Hubbard Model”,
International Conference on Strongly
Correlated Electron Systems
(SCES2013),
2013 年 8 月 6 日,
- 東京大学 本郷キャンパス.
- ⑬ M. Tsuchiizu, M. Verot, E. Fromager,
and V. Robert,
“Electronic structure analysis of a sin-
gle phthalocyanine molecule adsorbed
on a gold surface”,
The 10th International Symposium on
Crystalline Organic Metals, Supercon-
ductors, and Magnets (ISCOM2013),
2013 年 7 月 16 日, Montreal (Canada).
- ⑭ 土射津昌久, 大成誠一郎, 紺谷浩,
“Ru 酸化物における軌道揺らぎと電子ネ
マティック相 -繰り込み群による解析-”,
日本物理学会 2013 年年次大会,
2013 年 3 月 27 日, 広島大学.
- ⑮ M. Tsuchiizu, S. Onari, and H. Kontani
“Orbital Nematic Instability in
Two-Orbital Hubbard Model: A Renor-
malization-Group Study”,
APS March Meeting 2013,
2013 年 3 月 18 日, Baltimore (USA).
- ⑯ M. Tsuchiizu,
“Intramolecular charge ordering in the
(TTM-TTP)I₃ compound”,
International Symposium on Materials
Science Opened by Molecular Degrees of
Freedom (MDF 2012),
2012 年 12 月 3 日, 宮崎シーガイアコンベン
ションセンター (宮崎)
- ⑰ 土射津昌久,
“(TTM-TTP)I₃ の分子内電荷秩序相に
おける光学電気伝導度”,
日本物理学会 2012 年秋季大会,
2012 年 9 月 18 日, 横浜国立大学.
- [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://www.slab.phys.nagoya-u.ac.jp/tsuchiizu/>
6. 研究組織
(1) 研究代表者
土射津 昌久 (TSUCHIIZU, Masahisa)
名古屋大学・大学院理学研究科・講師
研究者番号: 70362225