

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24740251

研究課題名(和文) スピン軌道相互作用と擬スピンのゆらぎがもたらす新たな超伝導の理論的研究

研究課題名(英文) Theoretical study of a novel superconductivity induced by spin-orbit coupling and pseudospin fluctuation

研究代表者

渡部 洋 (Watanabe, Hiroshi)

独立行政法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・協力研究員

研究者番号：50571238

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、スピン軌道相互作用の強い5d電子系物質Sr2IrO4で見られる特異な絶縁体状態の発現機構を解明し、その周辺で期待される新奇な超伝導の提案を行った。この成果により、未解明な点が多かった5d電子系に対する理解が深まり、さらなる発展に寄与することが出来た。また、変分モンテカルロ法を用いてスピン軌道相互作用を取り扱う計算方法を構築し、多軌道強相関電子系一般に適用出来るプログラムを開発した。

研究成果の概要(英文)：In this research project, I have revealed the manifestation mechanism of novel insulating state in 5d electron system Sr2IrO4 with a large spin-orbit coupling. I have also predicted and proposed a novel superconductivity expected around the insulating state. These results have contributed to deeper understanding and further progress of 5d electron system whose detailed property has not been clarified so much. Moreover, I have established the calculation method which enables to treat the spin-orbit coupling using variational Monte Carlo method. This method is applicable to multiorbital strongly-correlated electron system in general.

研究分野：強相関電子系の理論

キーワード：スピン軌道相互作用 イリジウム酸化物 異方的超伝導 擬スピン モット絶縁体 スレーター絶縁体
変分モンテカルロ法 MPI並列

1. 研究開始当初の背景

本研究を開始した頃、固体物質中でのスピン軌道相互作用の重要性が注目を集め、特にスピン軌道相互作用の強い 5d 電子を含むイリジウム酸化物の研究が盛んに行われるようになっていた。これは共鳴 X 線散乱の実験等の進展によって物質の詳細な電子状態が明らかになりつつあったことによる。複数の実験結果から、イリジウム酸化物は強いスピン軌道相互作用と結晶場の効果によって、従来の全角運動量 $J=L+S$ とは異なる有効全角運動量 $J_{\text{eff}}=-L+S$ が良い量子数となることが提案された。一方、5d 電子系特有の新奇な現象の発現機構については不明な点が多く、確固たる理論の構築が不可欠な状況であった。それにはクーロン相互作用とスピン軌道相互作用を同時に適切に取り扱う計算手法が必要となるが、当時はそのような計算手法はまだ十分に確立されていなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、イリジウム酸化物のようにクーロン相互作用とスピン軌道相互作用が絡み合った系で起こる現象の発現機構を解明し、さらにその知識を元に新たな現象を予言・提案することである。具体的には Sr_2IrO_4 と Ba_2IrO_4 で見られる特異な絶縁体状態の詳細な解析と、その周辺で期待される新たな超伝導を提案することである。また、それを実現するために、強相関電子系に対して有効な変分モンテカルロ (VMC) 法を、スピン軌道相互作用を取り扱えるように開発・改良することも目的である。

3. 研究の方法

まずは第一原理バンド計算の結果を参考に、低エネルギーの物性に寄与する 5d 電子の t_{2g} 軌道を取り出した 3 軌道ハバード模型を構築し、これを研究の出発点とした。このモデルに VMC 法を適用し、クーロン相互作用、スピン軌道相互作用、電子密度をパラメータとして変化させて基底状態の電子状態を解析した。また、研究協力者とともに同じモデルに対して変分クラスター近似を適用し、一粒子スペクトルと状態密度を計算した。

4. 研究成果

(1) $\text{Sr}_2\text{IrO}_4 \cdot \text{Ba}_2\text{IrO}_4$ の絶縁化機構の解明

まずは Sr_2IrO_4 をモデル化した 3 軌道ハバード模型を構築し、VMC 法を用いて基底状態の性質を調べた。図 1 は同一サイト内のクーロン相互作用 U/t とスピン軌道相互作用の強さ λ/t をパラメータとした基底状態相図である (t は隣接サイト間の電子の飛び移り積分である)。 U/t を大きくしていくと常磁性金属 (PM) から実験で観測されている面内反強磁性絶縁体 (x-AFI) への転移が起こることが分かった。また、 λ/t が大きくなるほど転移点が小さくなり、絶縁化しやすくなることが分かった。これにより、 Sr_2IrO_4 の絶縁

化がイリジウムの強いスピン軌道相互作用 ($\lambda_{\text{Ir}}/t \sim 1.0$) に起因することを示した。同じ格子構造を持つ Sr_2RhO_4 が、 U/t が大きいにも関わらず絶縁化しないという事実も、ロジウムのスピン軌道相互作用が小さい ($\lambda_{\text{Rh}}/t \sim 0.5$) ことから説明出来た。また、フント結合 J/U を大きくすると絶縁化しにくくなることも分かった。これはフント結合によって実効的な電子相関が弱められることに起因している。フント結合は多軌道系においてのみ現れる量であり、単一軌道系では見られなかった特異な現象を引き起こす一因となっている。さらに、同じ Sr_2IrO_4 のモデルに対して変分クラスター近似を適用して得られた一粒子スペクトル関数は角度分解光電子分光の実験とも良く一致しており、本研究の妥当性を支持している。これらの結果は上述した J_{eff} を用いた描像とも整合しており、理論と実験の両面から Sr_2IrO_4 の絶縁化機構を説明できたと考えられる。

同様に、関連物質である Ba_2IrO_4 に対しても 3 軌道ハバード模型を構築し、VMC 法を用いて電子状態の解析を行った。その結果、 Sr_2IrO_4 では IrO_6 の正八面体構造が面内で回転することで t_{2g} の xy 軌道が押し下げられているのに対し、 Ba_2IrO_4 ではそれが無く、両者のバンド構造の違いを生み出していることが分かった。この違いが両者の反強磁性の強度の違いに反映されていると考えられる。

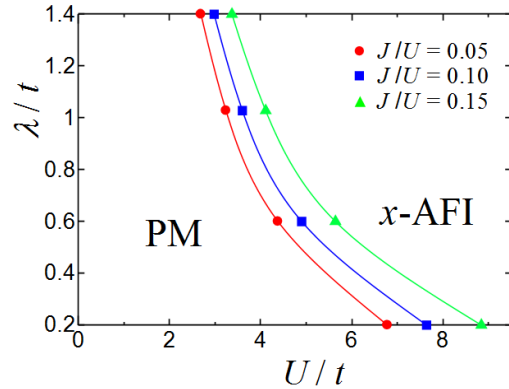


図 1: Sr_2IrO_4 をモデル化した 3 軌道ハバード模型の基底状態相図

(2) 「中相関」絶縁体の提案

これまでの研究から、 Sr_2IrO_4 の絶縁化は強いスピン軌道相互作用下での J_{eff} 描像を用いて説明できることが分かった。ただし、この絶縁体が弱相関的なスレーター絶縁体なのか、強相関的なモット絶縁体なのかは自明ではない。これは磁性を伴った金属・絶縁体転移において普遍的で重要な問題である。実際、 Sr_2IrO_4 に関しては実験・理論ともに意見が分かれており、一致した見解は得られていない。本研究では VMC 法を用い、エネルギー利得機構の観点から両者を区別することを試みた。具体的には、金属相から絶縁相に転移する際のバンドエネルギーと相互作用

用エネルギーの変化を詳細に調べた。その結果、図2に示すように弱相関 (U/t が小さい) 側では相互作用エネルギーの利得 ($\Delta E_{\text{int}} < 0$)、強相関 (U/t が大きい) 側ではバンドエネルギーの利得 ($\Delta E_{\text{band}} < 0$) によって絶縁化が起こることが分かった。また、両者が移り変わる付近において両方のエネルギー利得が働く中間的な絶縁相が存在することを示した (図2の水色の領域)。 Sr_2IrO_4 はちょうどこの付近に位置する「中相関」絶縁体であり、それ故に両者の性質をともし示すような特異な振る舞いを示すと考えられる (図3)。この描像はこれまでの実験結果ともよく整合しており、スピン軌道相互作用の強い多軌道強相関電子系に特有な現象を表していると考えられる。

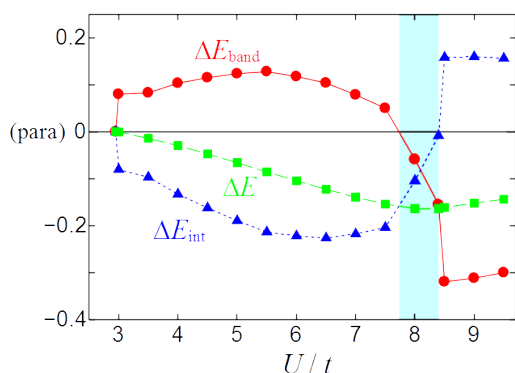


図2: U/t によるエネルギー利得機構の変化

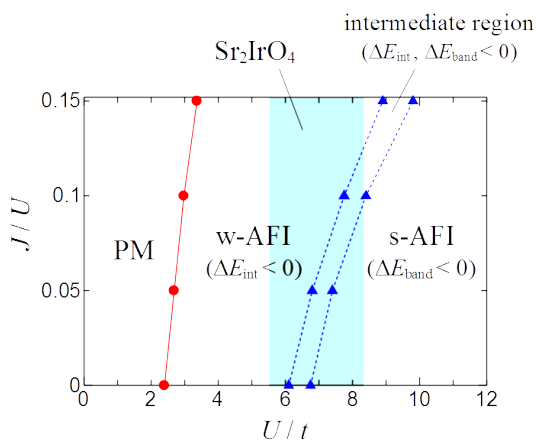


図3: エネルギー利得機構から得られた基底状態相図

(3) 強いスピン軌道相互作用下での特異な超伝導の提案

これまでの研究から、 Sr_2IrO_4 が銅酸化物高温超伝導体の母物質の一つである La_2CuO_4 と多くの類似点を持つことが分かった。そこで Sr_2IrO_4 に電子・ホールをドーピングすることで新たな超伝導が発現するのではないかと考え、VMC法を用いてこれまでと同じ3軌道ハバード模型に対する解析を行った。その結果、電子ドーピング側 (電子密度 $n > 5$)

において、反強磁性金属相 (AFM) に隣接して超伝導相 (SC) が広く安定化することを示した (図4)。この相では強いスピン軌道相互作用下でスピンと軌道が結合して形成された「擬スピン」のクーペ対が凝縮しており、 $d_{x^2-y^2}$ -波擬スピン-重項と呼ばれる対称性を持つ超伝導状態が実現している。この超伝導相はホールドーピング側 ($n < 5$) では見られなかったが、これは銅酸化物と同様にバンド構造の電子・ホール非対称性から説明できる。後に他のグループによって行われた汎関数線り込み群法や動的平均場近似による計算からも同様の結果が得られており、本研究の妥当性を支持している。以上の結果を受けて、複数の実験グループがこの新奇な超伝導の実現に向けて研究を行っている。理論の側から実験家に対して新物質を提案出来たことは大きな成果であると思われる。

また、電子相関の弱い側からのアプローチとして乱雑位相近似 (RPA) を用い、同様に超伝導の可能性に対する計算を行った。RPAはVMC法に比べて定量性は劣るものの、フェルミ面の詳細な形状を取り込めるという利点がある。その結果、電子ドーピング側ではVMC法と同じ $d_{x^2-y^2}$ -波擬スピン-重項超伝導が安定化された一方、ホールドーピング側では新たに s_{+-} -波擬スピン-重項超伝導が安定化されることが分かった。後者は異なるバンド間の散乱を用いた超伝導であり、近年注目を集めている鉄系超伝導との関連も深いと考えられる。ただし、 s_{+-} -波擬スピン-重項超伝導の実現するパラメータ領域はあまり広くないため、実際の物質で実現するかどうかはより定量的な解析をする必要があると考えられる。

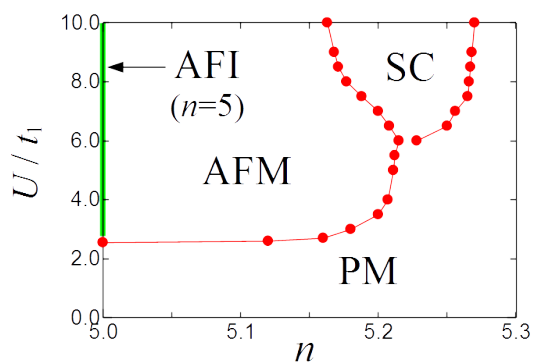


図4: 電子ドーピングに対する基底状態相図

以上、(1) ~ (3)の成果によってイリジウム酸化物における特異な絶縁体の発現機構の解明と新奇な超伝導発現に対する提案を行い、当初に設定した目標を達成することが出来た。本研究で主に対象とした Sr_2IrO_4 を皮切りに 5d 電子系物質とスピン軌道相互作用に対する注目度が高まり、多くの関連物質が合成され、一大分野を形成しつつある。本研究はその端緒となった先駆的研究の一つであると言える。計算手法に関しては、VMC

法を開発・改良することでスピン軌道相互作用の取り扱いを可能にし、さらに MPI 並列を用いることで近年発展が著しい大規模スーパーコンピュータを有効に活用出来るものに仕上げた。これを用いることで、イリジウム酸化物に留まらず、今後の多軌道強相関電子系全般の発展に大きく貢献出来ることが期待される。

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 9 件)

渡部 洋, 白川 知功, 柚木 清司, 「5d 電子系イリジウム酸化物における新奇な絶縁体と超伝導」, 日本物理学会誌 **70**, 31 (2015), 査読有
<http://www.jps.or.jp/books/gakkaishi.php>

H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Theoretical study of insulating mechanism in multiorbital Hubbard models with a large spin-orbit coupling: Slater versus Mott scenario in Sr_2IrO_4 ”, Phys. Rev. B **89**, 165115 (2014), 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.89.165115

H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Monte Carlo Study of an Unconventional Superconducting Phase in Iridium Oxide $J_{\text{eff}} = 1/2$ Mott Insulators Induced by Carrier Doping”, Phys. Rev. Lett. **110**, 027002 (2013), 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.027002

T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Theoretical studies of a three-band Hubbard model with a strong spin-orbit coupling for 5d transition metal oxide Sr_2IrO_4 ”, J. Phys. Conf. Ser. **454**, 012068 (2013), 査読有
DOI: 10.1088/1742-6596/454/1/012068

[学会発表](計 13 件)

渡部 洋, 「 Sr_2IrO_4 における超伝導の可能性」, 基研研究会「多自由度電子状態と電子相関が生み出す新奇超伝導の物理」, 京都大学基礎物理学研究所(京都), 2014 年 10 月 22 日.

Hiroshi Watanabe, “Superconductivity and metal-insulator transition in Sr_2IrO_4 ”, New Horizon of Strongly Correlated Physics, ISSP, The University of Tokyo (Kashiwa), June 26, 2014.

Hiroshi Watanabe, “Novel insulating state and possible superconductivity in

Sr_2IrO_4 ”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, Ito international Research Center (Tokyo), August 8, 2013.

Hiroshi Watanabe, “Theoretical study of novel $J_{\text{eff}}=1/2$ insulator and possible superconductivity in Sr_2IrO_4 ”, Exotic States of Quantum Matter in Electronic Systems, Dresden (Germany), July 22, 2013.

Hiroshi Watanabe, “Theoretical study of novel superconductivity in Ir oxides with large spin-orbit coupling”, American Physical Society March Meeting 2013, Baltimore (USA), March 21, 2013.

Hiroshi Watanabe, “Theoretical study of novel insulating and superconducting states in Ir oxides with large spin-orbit coupling”, Conference on Computational Physics (CCP2012), Nichii Gakkan (Hyogo), October 16, 2012.

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

渡部 洋 (WATANABE, Hiroshi)
理化学研究所・創発物性科学研究センター・協力研究員
研究者番号: 50571238

(2) 研究協力者

白川 知功 (SHIRAKAWA, Tomonori)
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: 40571237