

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：32689

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2017

課題番号：26800198

研究課題名(和文) バンド間相互作用がもたらすエキシトン凝縮と新たな超伝導の理論

研究課題名(英文) Theory for exciton condensation and novel superconductivity induced by interband interaction

研究代表者

渡部 洋 (Watanabe, Hiroshi)

早稲田大学・高等研究所・助教

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、バンド間相互作用と電子格子相互作用によってもたらされるエキシトン凝縮に関して理想的なモデルと現実の物質に即したモデルに対する解析を行い、発現機構や詳細な性質を明らかにした。また、独自の電子・ホール変換を導入することで変分モンテカルロ法における計算コストを大幅に減らし、大規模な計算を可能にした。

また、ダイマー内電荷自由度と長距離クーロン相互作用を導入したモデルを解析し、分子性導体 (BEDT-TTF) 2Xにおける相競合と超伝導の発現機構を明らかにした。超伝導に関しては銅酸化物高温超伝導体に倣った従来の理論を越え、幾何学的フラストレーション系ならではの新奇な超伝導対称性を見出した。

研究成果の概要(英文)：In this research project, I have clarified the emergent mechanism and detailed property of the exciton condensation induced by interband interaction and electron-lattice interaction by using an ideal and a realistic theoretical models. I also have introduced the original electron-hole transformation to dramatically reduce the computational cost in the variational Monte Carlo method, and made massive calculation possible.

I also have studied the model that introduced the intradimer charge degree of freedom and long-range Coulomb interactions, and revealed the phase competition and emergent mechanism of superconductivity in molecular conductors (BEDT-TTF)2X. As for superconductivity, I have found a novel superconducting symmetry characteristic to the system with geometrical frustration. It is beyond the usual theory based on the analogy to the cuprate high-temperature superconductors.

研究分野：強相関電子系の理論

キーワード：バンド間相互作用 エキシトン凝縮 超伝導 分子性導体 ダイマー内電荷自由度 変分モンテカルロ法

1. 研究開始当初の背景

本研究を開始した頃、バンド間相互作用がもたらすエキシトン凝縮とその周辺での超伝導に関して興味深い実験結果が示され、注目を集めていた。特に層状ダイカルコゲナイド物質 1T-TiSe₂ と、擬一次元的な構造を持つ Ta₂NiSe₅ が精力的に研究されていた。エキシトン凝縮の研究は長い歴史を持つが、重要となるクーロン相互作用と電子格子相互作用の双方を適切に取り入れた理論研究は未だ不十分な状況にあった。また、現実の物質の格子構造・電子構造を反映した理論モデルも平均場近似の範囲での解析にとどまっており、解決すべき課題となっていた。

また、研究を進める中で、分子性導体で見られる磁性・電荷秩序・超伝導の発現機構が、上記のエキシトン凝縮と多くの類似点を持つことを見出した。分子性導体では特に κ-(BEDT-TTF)₂X と呼ばれる物質群で、以前は無視されてきたダイマー内の電荷自由度の重要性が指摘され、実験・理論の両面から注目を集め始めていた。

2. 研究の目的

(1)層状ダイカルコゲナイド物質を念頭に、クーロン相互作用と電子格子相互作用を導入した理論モデルを構築し、エキシトン凝縮とそれに伴う超伝導の発現機構を明らかにする。

(2)分子性導体を念頭に、ダイマー内電荷自由度と分子間クーロン相互作用を導入した理論モデルを構築し、磁性・電荷秩序・超伝導の発現機構を明らかにする。

3. 研究の方法

(1)バンド間相互作用を取り入れた 2 バンドハバード模型を構築し、変分モンテカルロ法 (VMC 法) を用いて基底状態の電子状態を解析する。様々なパラメータを変化させた基底状態相図を完成し、各相での物理量を計算し、BCS-BEC クロスオーバーなど、エキシトン凝縮の詳細な性質を明らかにする。また、計算方法の枠組みを改良し、より大規模な計算を可能にする。

(2)ダイマー内自由度と分子間の長距離クーロン相互作用を取り入れた二次元拡張ハバード模型を構築し、VMC 法を用いて基底状態の電子状態を解析する。パラメータを変化させることでバンド幅制御・フィリング制御モット転移の両者を再現し、各相の発現機構、特に超伝導について詳細を明らかにする。

4. 研究成果

(1)バンド間相互作用と電子格子相互作用によるエキシトン凝縮

まずは理想的な二次元正方格子上的 2 バンドハバード模型の解析を行った。バンド内相互作用 U^{aa} 、バンド間相互作用 U^{ab} をパラメータとした基底状態相図において、金属相 (PM)

とバンド絶縁体相 (BI) の間に広くエキシトニック絶縁体相 (EI) が安定化することを示した (図 1)。これは先行研究ともよく一致しており、計算の妥当性を支持している。また、秩序変数と相関長の振る舞いから、エキシトニック絶縁体相の中で BCS-BEC クロスオーバーが起きることを示した。さらに一方のバンドにのみ電子・ホール変換を行うことで計算コストを大幅に削減し、30×30×2 サイトという大規模な計算を可能にした。この変換は適用範囲が広く、他の系への応用も期待される。

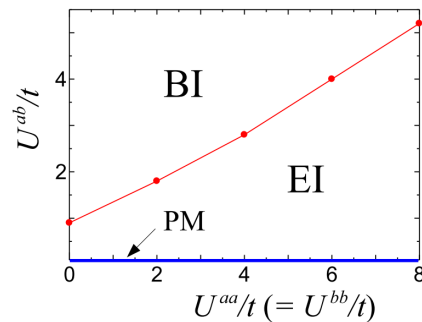


図 1

次に、エキシトン凝縮の候補物質として注目されている 1T-TiSe₂ をモデル化した二次元三角格子上的 2 バンドハバード模型の解析を行った。二次元正方格子とは対照的に、バンド間相互作用のみで起きる「純粋な」エキシトン凝縮は実現が難しく、電子格子相互作用とのカップルが必要不可欠であることを示した。これは、フェルミ面のネスティングがほとんど無く、電子系のみでは十分なエネルギー利得が得られないことに起因する。適切な電子格子相互作用を導入すると、金属相 (NM) とバンド絶縁体相 (BI) の間に CDW 絶縁体相 (CDWI) が現われることを示した (図 2)。

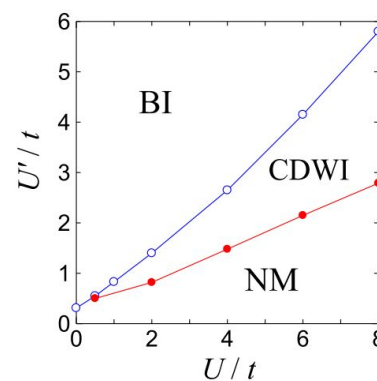


図 2

また、電子格子相互作用と協力して起きるエキシトン凝縮 (CDW) は常に BEC 的であり、実空間の短い距離でペアを組む状態が実現することが分かった。以上の結果は 1T-TiSe₂ に対する実験結果ともよく整合している。

(2)分子性導体 κ -(BEDT-TTF)₂Xにおける相競合と超伝導

ダイマー反強磁性相と超伝導相の境界付近に位置している $X=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ に対応するパラメータを用いた解析を行った。長距離クーロン相互作用は $1/r$ の距離依存性を仮定し、分子内クーロン相互作用 U/t と最近接分子間相互作用との比 V_{b1}/U を変化させた。その結果、基底状態相図には常磁性金属相、ダイマー反強磁性絶縁体相 (DMI)、誘電性電荷秩序絶縁体相 (PCOI)、3 倍周期電荷秩序金属相 (3-fold COM)、超伝導相 (SC) と様々な相が拮抗して現れることが分かった (図 3)。

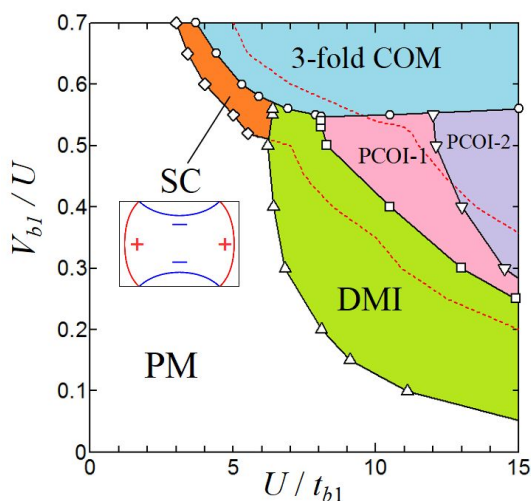


図 3

DMI-SC の相転移が実験で観測されているモット転移に対応している。興味深いことに、SC は二つの電荷秩序相 (PCOI と 3-fold COM) に向かって安定化され、電荷の自由度が発現機構に深く関わっていることを示唆している。超伝導対称性は extended- $s+d_{x^2-y^2}$ 波であり、従来の反強磁性スピン揺らぎ機構から期待される d_{xy} 波とは異なっている。これは κ -(BEDT-TTF)₂X に特有の変形した三角格子構造 (幾何学的フラストレーション) の効果である。際立って強い反強磁性相関を持つボンドが無く、全てのボンドが超伝導ペア形成に寄与するため、このような特異な対称性が実現すると考えられる。以上の結果は銅酸化物高温超伝導体とのアナロジーに立脚した従来の理論を越えて、分子性導体の理論の進展に大きく貢献すると期待される。

さらに近年実現した電気二重層トランジスタを用いたフィリング制御の実験を念頭に、電子密度を変化させた際の解析を行った。その結果、顕著な電子・ホールドーブ非対称性が確認され、二種類の異なる超伝導対称性が拮抗していることが分かり、実験結果ともよく整合している。このような非対称性はドーピングによってフェルミ面が変形することと、系に内在する幾何学的フラストレーションとの兼ね合いからもたらされる。これまで主に用いられてきたダイマー模型では上記のよう

な効果が十分に取り入れられないため、しばしば実験との不整合が見られるのだと考えられる。すなわち、本研究で導入したダイマー内自由度と分子間の長距離クーロン相互作用がこの系において本質的な役割を果たすと結論される。

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 3 件)

H. Watanabe, H. Seo, and S. Yunoki, “Phase Competition and Superconductivity in κ -(BEDT-TTF)₂X: Importance of Intermolecular Coulomb Interactions”, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 033703 (p1-5), (2017), 査読有
DOI: 10.7566/JPSJ.86.033703

H. Watanabe, K. Seki, and S. Yunoki, “Charge-density wave induced by combined electron-electron and electron-phonon interactions in 1T-TiSe₂: A variational Monte Carlo Study”, Phys. Rev. B **91**, 205135 (p1-6), 2015, 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.91.205135

H. Watanabe, K. Seki, and S. Yunoki, “A variational Monte Carlo Study of exciton condensation”, J. Phys.: Conf. Ser. **592**, 012097 (p1-7), 2015, 査読有
DOI: 10.1088/1742-6596/592/1/012097

[学会発表](計 28 件)

H. Watanabe, H. Seo, and S. Yunoki, “Importance of Intradimer Charge Degrees of Freedom in κ -(BEDT-TTF)₂X: Dimer-Mott insulator, Superconductivity and Charge Order”, ISCOM 2017, Miyagi, Japan, Sep 2017.

H. Watanabe, H. Seo, and S. Yunoki, “Unconventional Superconductivity and dimer-Mott insulator in 3/4-filled molecular conductors”, SCES2017, Prague, Czech Republic, Jul 2017.

H. Watanabe, H. Seo, and S. Yunoki, “Unconventional Superconductivity in Molecular Conductors: Importance of Intradimer Charge Degrees of Freedom”, SCES2016, Hanzhou, China, May 2016.

H. Watanabe, K. Seki, and S. Yunoki, “Charge-density wave and exciton condensation in 1T-TiSe₂”, APW-CEMS Joint Workshop, RIKEN, Japan, Jan 2016.

H. Watanabe, K. Seki, and S. Yunoki, “Charge-density wave and exciton condensation

induced by Coulomb interaction and electron-phonon interaction in 1T-TiSe₂”, ICM2015, Barcelona, Spain, Jul 2015.

H. Watanabe, K. Seki, and S. Yunoki, “A variational Monte Carlo study of exciton condensation and superconductivity in semimetal and semiconductor”, SCES2014, Grenoble, France, Jul 2014

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡部 洋 (WATANABE, Hiroshi)
早稲田大学・高等研究所・助教
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) 連携研究者

妹尾 仁嗣 (SEO, Hitoshi)
理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員
研究者番号：30415054

関 和弘 (SEKI, Kazuhiro)
SISSA (イタリア)・博士研究員
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

柚木 清司 (Yunoki, Seiji)
理化学研究所・柚木計算物性物理研究室・准主任研究員
研究者番号：70532141