

## 論文内容の要旨

論文題目 Theoretical study of multi-orbital correlated electron systems with Hund's coupling  
(Hund 結合をもつ多軌道強相関電子系の理論的研究)

氏名 酒井 志朗

遷移金属及びその化合物は金属-絶縁体転移、強磁性、異方的超伝導など多彩な物理現象を示す。これらの現象は主に遷移金属の d 電子が担っており、互いに相互作用しながら結晶中を遍歴する多電子系の問題として長い歴史をもち、物性物理学の中心的興味の一つとなってきた。この相関電子系についての従来多くの研究では、電子は電荷とスピンの2つの自由度をもった Fermi 粒子として扱われてきた。しかし、最近、電荷・スピンに加え、d 電子の軌道角運動量の自由度の重要性が多くの実験的・理論的研究から指摘されている。

本学位論文では、軌道自由度を考慮した d 電子系の模型として多軌道 Hubbard 模型を採用し、そこでの電子相関効果を非摂動的に取り入れる計算手法を開発した。そして、その方法を多軌道模型における金属強磁性の問題、及び3軌道系の典型例である  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の電子状態密度計算に応用し、軌道自由度の効果、特に Hund 結合の効果について明らかにした。

多軌道 Hubbard 模型は、各原子における電子間相互作用として、同一軌道にいる2電子間 Coulomb 相互作用  $U$ 、異なる軌道にいる2電子間 Coulomb 相互作用  $U'$ 、Hund 結合  $J$ 、及びペアホッピング相互作用  $J$  をもち (Fig. 1)、次のような Hamiltonian で記述される：

$$\begin{aligned}\hat{H} &\equiv \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \quad \hat{H}_{\text{int}} \equiv \hat{H}_U + \hat{H}_J, \\ \hat{H}_0 &\equiv \sum_{ij} \sum_{mm'\sigma} t_{ij}^{mm'} c_{im\sigma}^\dagger c_{jm'\sigma} - \sum_i \sum_{m\sigma} \mu_m n_{im\sigma}, \\ \hat{H}_U &\equiv U \sum_{im} n_{im\uparrow} n_{im\downarrow} + \sum_{i,m < m',\sigma} [U' n_{im\sigma} n_{im'-\sigma} + (U' - J) n_{im\sigma} n_{im'\sigma}] \\ \hat{H}_J &\equiv J \sum_{i,m < m'} (c_{im\uparrow}^\dagger c_{im'\downarrow}^\dagger c_{im\downarrow} c_{im'\uparrow} + c_{im\uparrow}^\dagger c_{im\downarrow}^\dagger c_{im'\downarrow} c_{im'\uparrow} + \text{H.c.}).\end{aligned}\tag{1}$$

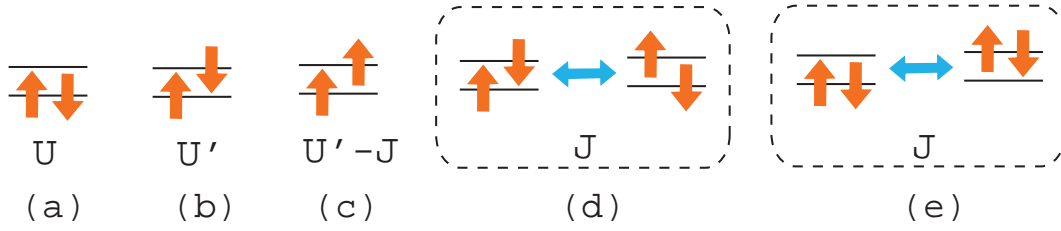


Figure 1: 多軌道系の Coulomb 相互作用。

$$e^{-\beta(\hat{H}_0 + \hat{H}_U) + \gamma - \beta \hat{H}_J} = \sum_k \int d\tau \int d\tau' \dots \left[ e^{-(\tau - \tau')(\hat{H}_0 + \hat{H}_U)} (\gamma - \beta \hat{H}_J) e^{-(\tau'' - \tau)(\hat{H}_0 + \hat{H}_U)} (\gamma - \beta \hat{H}_J) \dots \right]$$

Series expansion in  $\gamma - \beta H_J$  Trotter decomposition

Figure 2: (Hirsch-Fye + 級数展開) QMC 法。

ここで、 $c_{im\sigma}$  ( $c_{im\sigma}^\dagger$ ) は、格子点  $i$  の軌道  $m$  にいるスピン  $\sigma$  を持った電子の消滅 (生成) 演算子、 $\hat{H}_0$  は、電子の飛び移りを表す一体の項、 $\hat{H}_{\text{int}}$  は相互作用項であり、電子密度 ( $n$ ) 間相互作用で記述される部分 ( $\hat{H}_U$ ) と、そうではない部分 ( $\hat{H}_J$ ) から成る。

Hund 結合  $J$  は異なる軌道間のスピンを揃える方向に働くため、強磁性をはじめ多くの物性において興味深い働きを示す。しかし、Hund 結合のスピン成分及びペアホッピング項からなる  $\hat{H}_J$  は、理論的取り扱いが難しく、1次元2軌道模型の厳密対角化などの限られた場合でしか調べられてこられず、 $T_c$  も求められてこなかった。

近年、相関効果の空間揺らぎを無視する代わりに時間揺らぎを完全に取り入れることができる動的平均場理論 (DMFT)[1] が提案され、Mott 転移を記述することなどから、強相関電子系に有用な非摂動的手法として、様々な模型に応用がなされている。多軌道系も DMFT によって調べられ、Mott 転移における Hund 結合の役割などについて多くの知見が得られている。しかし、それらの研究の多くでは、多軌道模型 (1) の相互作用項のうち、 $\hat{H}_U$  は取り入れるものの  $\hat{H}_J$  は無視されている (すなわち、Hund 結合が Ising 型に置き換えられている)。これは、主に DMFT の 1 サイト問題を解く標準的な方法論である Hirsch-Fye 量子 Monte Carlo (QMC) 法が、 $\hat{H}_J$  を扱い難いためである。そのため、 $\hat{H}_J$  も取り入れたスピン及び軌道に関して回転対称な Hamiltonian (1) は、2 軌道系の基底状態に対する DMFT+厳密対角化計算を除いて、ほとんど調べられてこなかった。本著者は以前、Hirsch-Fye QMC 法に  $\hat{H}_J$  を取り入れる新しい方法を提案し [2]、その方法は、軌道自由度について反対称な超伝導の可能性 [2]、軌道選択型 Mott 転移の存在 [3,4] などについて一定の成果をあげたが、あまり低温を調べられない、3 軌道以上に拡張できないなどの困難があった。

そこで、本論文では、従来の Trotter 分解に基づく Hirsch-Fye QMC 法と異なり、級数展開を出発点とする新しい QMC 法を提案し、それを多軌道 DMFT へ応用した。特に、 $\hat{H}_J$  の項について級数展開 (結果として無限次まで取り入れる) を行い、 $\hat{H}_U$  については Trotter 分解を行う (Fig. 2) という工夫により、多軌道 Hubbard 模型 (1) を Hirsch-Fye QMC 法 [2] に比べ格段に低温まで調べられることを可能にし (Fig. 3)、また、3 軌道系への拡張を可能にした [5]。

この強力な方法を用いて、まず金属強磁性における軌道自由度の役割について調べた。

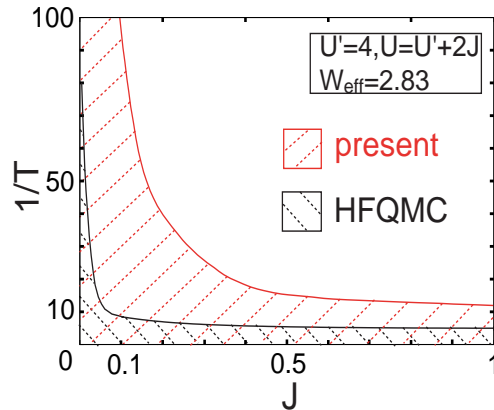


Figure 3: 計算可能領域 (斜線) : Hirsch-Fye QMC 法を 2 軌道に拡張した場合 [2] と (Hirsch-Fye + 級数展開) QMC 法の比較。

Hund 結合が重要となる例として、2 軌道 1/4 フィリング (サイトあたりの電子数  $n = 1$ ) の場合の、軌道秩序を伴った絶縁体の強磁性がよく知られているが、我々は、特に遷移金属・遷移金属酸化物等で現れる金属強磁性に注目した。これらの物質の金属強磁性については、主に、結晶の格子構造が重要であるという単一軌道 Hubbard 模型に基づく指摘と、Hund 結合が重要であるという 1 次元 2 軌道系の厳密対角化計算に基づく指摘がなされてきたが、そのどちらか、または両方が本質であるのか否か、は未解決の問題であった。

まず我々は、従来の Ising 型の Hund 結合 ( $\hat{H}_J$  を無視) の場合と、SU(2) 対称な場合で帯磁率の比較を行い、Ising 型の取り扱いが帯磁率を過大評価していることを示した [Fig. 4(a)]。その上で、SU(2) 対称な Hund 結合を用いて、単純立方格子と fcc 格子について Hund 結合を入れた場合と入れない場合に対して、Curie 温度を比較した。その結果は、格子構造と Hund 結合の両方が遷移金属系の金属強磁性に本質的に効いていることを示す。Fig. 4(b) は、fcc 格子 (有効バンド幅  $W_{\text{eff}}=4$ ) において、 $U=4$  とし、

(i) 単一軌道の場合 (多軌道で  $U'=J=0$ ) の場合、(ii) 多軌道で  $U'=U=4, J=0$  の場合、(iii) 多軌道で  $U'=3, J=0.5$  の場合の帯磁率 (の逆数) を比較した結果である。この結果は、軌道間の相互作用  $U', J$  が Curie 温度の決定に本質的に重要な役割を果たしていることを示す。これは、低電子密度で良い  $T$  行列近似を用いた金森理論を用いて  $J$  の役割は小さいと結論された、従来の認識とは異なる新しい結果である。

次に、我々は、上記の (Hirsch-Fye + 級数展開) QMC 法が、現実的な 3 軌道に適用できることを示すために、 $t_{2g}$  電子の 3 軌道系であり、スピントリプレット超伝導など興味深い性質を示す  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  について、LDA+DMFT 計算を行った。その結果、Hund 結合を従来の Ising 型で扱った場合と、スピン SU(2) 対称性を我々の方法で取り入れた場合とで、一電子状態密度は大きく異なり、特に中間結合領域  $[(U, J)=(2.4 \text{ eV}, 0.4 \text{ eV})]$  において、Fig. 5 のように定性的にも異なる結果を得た。この違いは、SU(2) では近藤共鳴状態が実現しているのに対し、Ising ではそうならないためであると考えられる。

近年、LDA+DMFT 法などによって、多軌道 DMFT は様々な物質の第一原理計算に応用され、光電子分光等の実験結果と比較がなされている。その多くの研究では強相関効果を取り入れるために Hirsch-Fye QMC 法を用いているが、そのとき、Hund 結合は Ising 型で扱われている。我々の結果は、Hund 結合のスピン回転対称性を取り入れることが、LDA+DMFT 法によるスペクトル計算にとっても極めて重要であることを示しており、将来の第一原理計算や物質設計における一つの方法を示唆すると思われる。

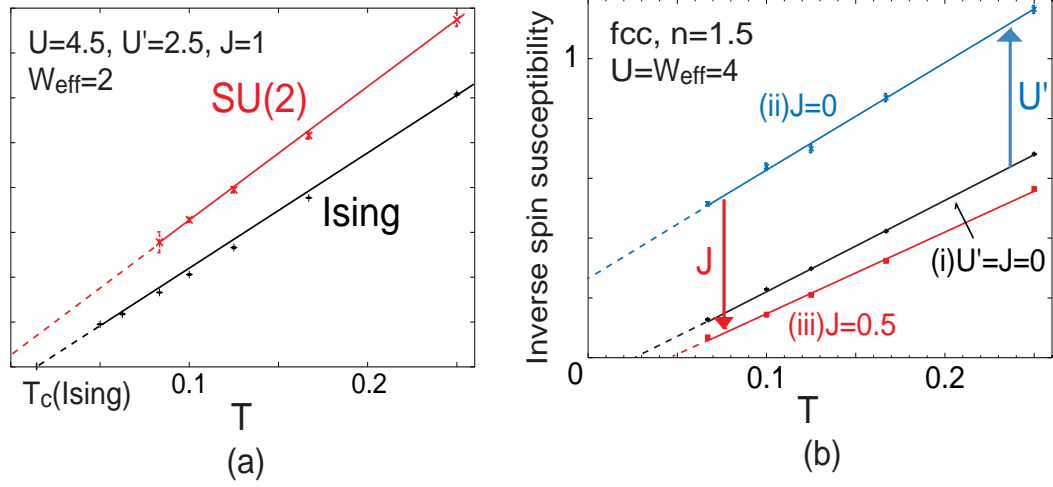


Figure 4: 帯磁率の逆数の温度変化：(a)Hund 結合を Ising 型で扱った場合と SU(2) 対称な場合の比較。(b)fcc 格子において SU(2) 対称な軌道間相互作用を順次入れていった場合の変化。

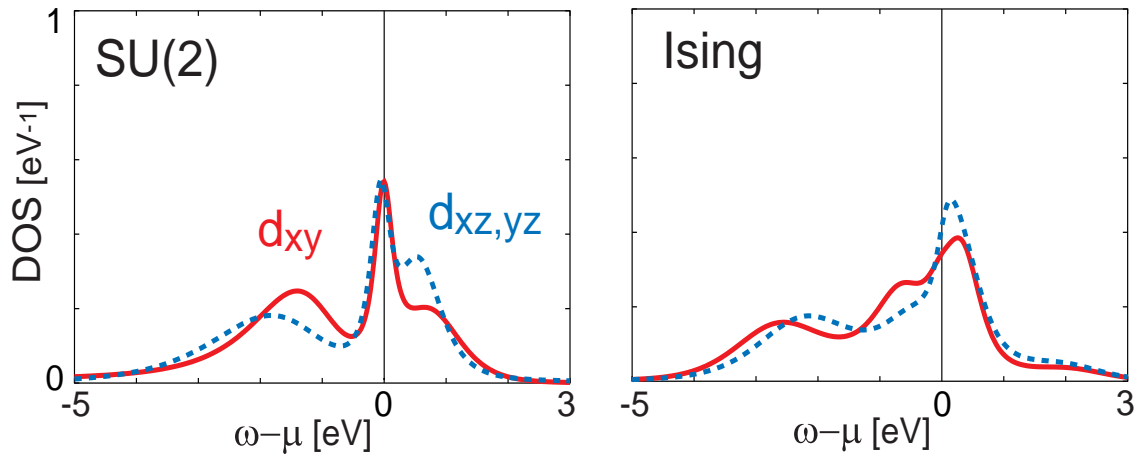


Figure 5:  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の LDA + DMFT 計算による状態密度：Hund 結合を Ising 型で扱った場合 (右) と SU(2) 対称な場合 (左) の比較。( $U, J$ )=(2.4 eV, 0.4 eV)。

- [1] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M.J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).
- [2] S. Sakai, R. Arita, and H. Aoki, Phys. Rev. B **70**, 172504 (2004).
- [3] R. Arita and K. Held, Phys. Rev. B **72**, 201102(R) (2005).
- [4] A. Koga, N. Kawakami, T. M. Rice, and M. Sigrist, Phys. Rev. B **72**, 045128 (2005).
- [5] S. Sakai, R. Arita, K. Held, and H. Aoki, Phys. Rev. B **74**, 155102 (2006).