

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 26 日現在

機関番号：15301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2016～2018

課題番号：16H07447

研究課題名(和文) 強相関準結晶物質における超伝導の理論

研究課題名(英文) Theoretical study of superconductivity in strongly correlated quasicrystals

研究代表者

上田 那由多(竹森那由多)(Takemori, Nayuta)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・特任助教

研究者番号：10784085

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、準結晶の超伝導を理解することを目的として、超伝導状態の安定性、超伝導ギャップの温度依存性、比熱の温度依存性、電流-電圧特性などの準周期超伝導体の物性を数値的に解析した。実空間動的平均場近似や、弱結合領域ではよい近似であると考えられるBdG平均場理論を用いて、ペンローズ構造上の簡単な理論模型(引力ハバード模型)を導入した。弱結合の超伝導状態が周期系と異なることや、超伝導転移時の比熱のジャンプが、BCS理論で知られる普遍的な値よりも10-20%程度小さいことを見いだした。このことから、準結晶における超伝導状態の実験結果はExtended超伝導状態と矛盾しないと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

準結晶とは、周期性とは異なる空間秩序を有する物質である。超伝導はいろいろな物質で発見されてきたが、並進対称性のない準結晶で発見された弱結合超伝導状態は周期結晶で知られるBCS超伝導状態と異なる可能性が高い。本研究では、準結晶を特徴づける構造として知られる準周期系で超伝導がどのような特徴を持つのか、という問題を数値シミュレーションを用いて理論的に考察した。その結果、準周期系の弱結合領域の超伝導状態がBCS超伝導とは異なる空間的に広がった(Extended)超伝導であることを示した。また、比熱の跳びが実験値と近い値を示し、実験結果はExtended超伝導状態と矛盾しないことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We numerically study the physical properties of quasiperiodic superconductors with the aim of understanding superconductivity in quasicrystals.

Considering the attractive Hubbard model on the Penrose tiling as a simple theoretical model, we calculate stabilities of superconductivity in quasiperiodic system and various basic superconducting properties and find deviations from the universal values of the Bardeen-Cooper-Schrieffer theory. In particular, we find that the jump of the specific heat at the superconducting transition is about 10-20% smaller than that universal value, in consistency with the experimental results obtained for the superconducting Al-Mg-Zn quasicrystalline alloy.

Furthermore, we calculate current-voltage characteristics and find that the current gradually increases with the voltage on the Penrose tiling in contrast to a rapid increase in the periodic system. These distinctions originate from the nontrivial Cooper pairing characteristic to the quasiperiodic system.

研究分野：物性理論

キーワード：超伝導 準周期系

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

広義の結晶でありながら並進対称性を持たない強相関準結晶物質  $\text{Au}_{51}\text{Al}_{34}\text{Yb}_{15}$  において電子相関に由来した量子臨界的挙動が発見された[Nat. Mater. 11, 1013-1016 (2012)]. さらに、この挙動は圧力に対して堅牢かつ長周期構造を持つ近似結晶においては出現しないため、準結晶の幾何学的構造を記述する準周期性が本質的な要因となる量子臨界性の存在を示している。準周期格子はフラクタル格子の 1 つであり、その幾何学的構造を反映して、自由電子模型において無限重縮退をもたらす自己相似状態などが厳密な固有状態として現れる。このため、強相関効果により量子臨界性のみならず多彩な物性が低温領域において発現することが、同様の無限重縮退が現れるカゴメ格子やパイロクロア格子における研究結果の類推から予想される。強相関準結晶物質  $\text{Au}_{51}\text{Al}_{34}\text{Yb}_{15}$  と類似したクラスター構造を持つ近似結晶  $\text{Au}_{64}\text{Ge}_{22}\text{Yb}_{14}$  及び  $\text{Au}_{63.5}\text{Ge}_{20.5}\text{Yb}_{16}$  において超伝導相が発見された[J. Phys. Soc. Jpn. 84, 023705 (2015)]ことにより、並進対称性のない準結晶系での超伝導の実現可能性及びその機構の解明が期待されている。しかしながら、強相関準結晶物質における超伝導現象は理論的にほとんど調べられていなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では、準結晶における電子相関効果をもたらす超伝導現象を説明する理論の体系化を目的とした。具体的には、強相関準結晶物質における輸送現象を、強相関効果及び準周期性を同時に取り入れた手法により明らかにする。そのため、本研究では簡素化された強相関準周期理論模型において、準結晶がもつ幾何学的構造である準周期系における相関効果をもたらす超伝導現象を明らかにし、実験的に周期結晶における超伝導現象との違いを示すための有力な実験観測量を提言することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究では、準周期系での超伝導を議論するための簡単な理論模型として、ペンローズタイリング上の引力ハバード模型を取り上げた。ペンローズタイリングは、狭角が及びの菱形で平面を埋め尽くした構造である。各菱形の頂点をサイトとして、菱形の各辺に電子のホッピング  $t$  を付与した。ハミルトニアン

$$H = -\sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} t (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) - \mu \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$

において、 $i, j$  は各サイトのラベル、 $\langle i, j \rangle$  はタイルの各辺によって結ばれる近接サイトを表す。また、 $c_{i\sigma}^\dagger$  は  $i$  サイトに電子を消滅 (生成) させる演算子、 $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$  は密度演算子、 $\mu$  は化学ポテンシャル、 $U < 0$  は引力相互作用である。以下では、 $t=1$  ととり、これをエネルギーの単位とみなす。

相互作用強度  $|U|$  の小さな BCS 領域から大きな BEC 領域までを単一の枠組みで取り扱うために、我々は上記の模型を実空間動的平均場理論により解析した。これは、動的平均場理論を非一様な実空間構造に拡張したものである。準周期構造では各サイトが非等価であるため、サイト毎に異なる不純物問題が自己無撞着に定義される。これを解き、サイト毎に異なる局所電子相関を取り入れる。一方で、サイト間の非局所相関は無視されるため、準周期構造はハミルトニアンの一部部分を通してのみ取り入れられる。

2 次元ペンローズ構造は 5 重回転対称性と 5 つの鏡映面をもつ  $C_{5v}$  対称性を持っている。そのため、サイト毎におおよそ 10 個の等価なサイトが存在する。本研究では、4181 サイトのクラスターを用いた。この場合、非等価なサイトの数は 444 サイトであり、このそれぞれについて不純物問題を厳密対角化法により解いた。

この超伝導状態における実空間動的平均場理論は、Bogoliubov-de Gennes (BdG) 平均場理論の動的な拡張であると言える。後者はより簡便であり、弱結合領域においては良い近似である。以下に紹介するように、最も非自明と思われる“クーパー対が空間的に広がった超伝導状態”は弱結合領域に現れる。また、現実の準結晶超伝導体も弱結合領域にあると考えられる。そこで、BdG 平均場理論を用いて、弱結合領域において、電子比熱を計算し実験と比較した。

### 4. 研究成果

最初に、実空間動的平均場理論を用いて、オンサイトの超伝導秩序変数  $OP_i \equiv \langle c_{i\uparrow} c_{i\downarrow} \rangle$  を計算した。平均電子密度  $\bar{n}=0.5$  (1/4 フィリング) で調べたところ、少なくとも  $|U| > 1$  の領域で、 $OP_i$  は実際に低温で有限となった。 $OP_i$  の大きさはサイトに依存するものの、全て同符号であり、また同一の  $T_c$  を示した。 $OP_i$  の空間分布は、 $|U|$  と  $\bar{n}$  によって異なる振る舞いを示す。第 1 図 (a)-(c) に、

超伝導相における各サイトの密度 $n_i$ と秩序変数 $OP_i$ の実空間構造を示す。いずれのパラメーター領域においても、 $n_i$ や $OP_i$ などの局所量は系の対称性を反映して $C_{5v}$ のパターンを示す。

まず、密度 $n_i$ の空間分布に注目すると、ほぼ1サイト毎に変化する細かい模様が見て取れる。これは、サイト毎に配位数などの周辺環境が異なることを反映したものであり、似た周辺環境をもったサイトは概ね似た $n_i$ を示している。つまり、 $n_i$ の値には、あまり遠くの構造は関与せず、次近接程度の周辺環境だけが反映されている。この $n_i$ の空間パターンは、 $U$ や $\bar{n}$ によってあまり変化しない。

一方で、 $OP_i$ の空間分布は $U$ や $\bar{n}$ によって大きく変化する。我々はこれを次の3種類に分類した。第1図(a)-(c)に対応して、

- (a)  $OP_i$ があまり秩序だった分布を示さない領域（弱結合領域）
  - (b)  $OP_i$ が $n_i$ と対応した分布を示す領域（強結合・低密度領域）
  - (c)  $OP_i$ が $n_i$ と異なる分布を示す領域（強結合・高密度領域）
- である。

空間分布の違いを解析するために、我々はクーパー対の空間的な広がりを調べた。まず、異なるサイト  $i, j$  間にまたがるクーパー対の強さを表す非局所秩序変数 $OP_{ij} \equiv \langle c_{i\uparrow}c_{j\downarrow} \rangle$ を定義する。この量は実空間動的平均場理論で求めた格子系の異常グリーン関数から計算することができる。

上で議論した第1図(a)-(c)に対応した3種類の $(U, \bar{n})$ において、 $OP_{ij} \equiv \langle c_{i\uparrow}c_{j\downarrow} \rangle$ を計算した結果を第1図(d)に示す。第1図(a)に対応する弱結合の場合(黄)には、 $OP_{ij}$ がサイト間の距離 $\|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j\|$  ( $\mathbf{r}_{i,j}$ はサイト  $i, j$ の座標)に対して緩やかに減衰する。これは、クーパー対が空間的に広がっていることを示す。一方、第1図(b)(c)に対応する強結合の場合(赤・青)は、 $OP_{ij}$ の減衰は非常に早い。第1図(d)の挿入図でこの2つを拡大して比較しているが、赤のほうが青より更に減衰が早いことが見て取れる。

この結果から第1図(a)-(c)の空間分布の違いについて以下の解釈が得られる。第1図(b)(赤)の場合は、クーパー対は局所的であり、局所電子密度 $n_i$ によって $OP_i$ が決定される。従って、 $OP_i$ は $n_i$ と同じ模様を示す。第1図(c)(青)の場合は、クーパー対は少しだけ空間的に広がっている。従って、 $OP_i$ は $n_i$ 以外の周辺構造を反映した値をとり、 $n_i$ とは異なる模様となる。このとき短距離の周辺環境が似たサイトは同じ $OP_i$ を示すと考えられるので、タイリング構造に由来した秩序だったパターンが見える。一方、第1図(a)(黄)の場合は、クーパー対は非常に大きく広がっているため、 $OP_i$ は広い範囲の構造によって決められる。広い範囲で見た場合、各サイトは( $C_{5v}$ 対称性によって等価となる場合を除き)全て非等価であるので、 $OP_i$ は様々な値を取り、その結果ははっきりした秩序構造を示さない。

この3つの状態を $U-\bar{n}$ 平面上で色分けして示したのが第2図である。各色は、第1図(d)の各色に対応して、黄:Extended、赤:Localized、青:Short-rangedのクーパー対による超伝導状態である。これらの状態は互いにクロスオーバーしている。

これらの3つの超伝導状態のうち、強結合領域で現れるLocalized状態(赤)は、通常のBEC的な描像でもよく理解できる。つまり、超伝導は各サイトで形成されたボソンの凝縮として理解され、準周期構造の反映はあまり見て取れない。Short-ranged状態(青)も、周辺の数サイトの中で局在しているため、非等価なサイトが複数ある場合のBECとして理解できる。一方で、Extended状態(黄)は非自明である。周期系では弱結合(BCS)領域の電子は運動量空間でクーパー対を作っていると理解されるが、準周期系ではこの運動量空間がそもそも定義できない。

このクーパー対の特徴を明らかにする目的で、次のような拡張された“運動量表示”での超伝導秩序変数 $OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ の計算を行った。まず、先ほど準周期系で定義できないと述べた運動量空間は、クーパー対 $c_{i\uparrow}c_{j\downarrow}$ の「相対座標」 $\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$ に関する運動量空間である。一方、座標 $\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j$ それぞれについての運動量 $\mathbf{k}, \mathbf{k}'$ を定義することはいつでもできる。これによって、秩序変数を $OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \equiv \langle c_{\mathbf{k}\uparrow}c_{\mathbf{k}'\downarrow} \rangle$ ,  $c_{\mathbf{k}\sigma} \equiv \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N c_{j\sigma} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}$ と定義する。Nはサイト数である。周期系では、 $OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ は $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$ のみ有限となる。

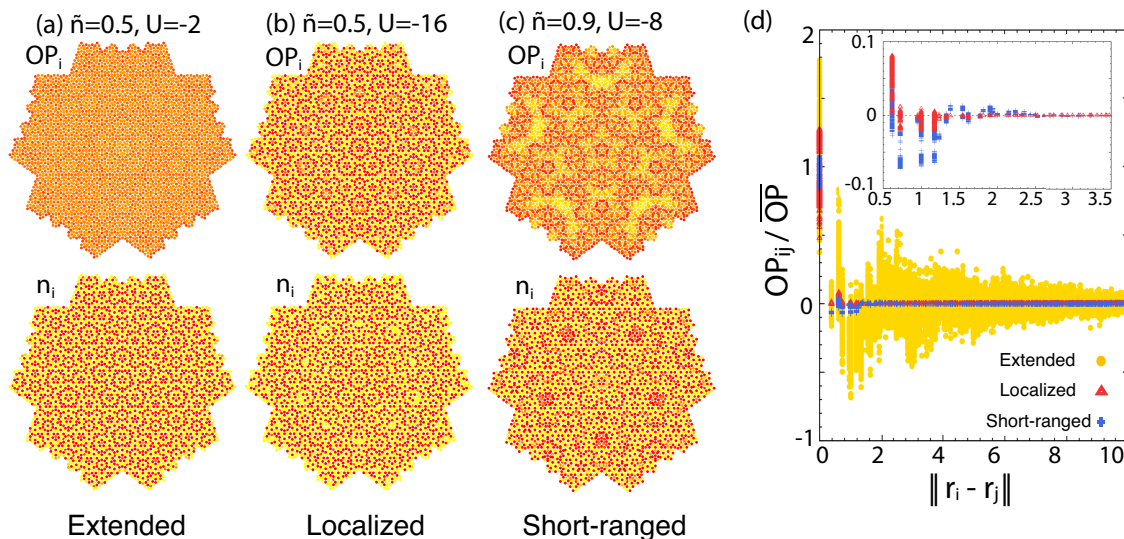
第3図に正方格子及びペンローズ構造における $|OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}|$ の強度図を示した。2次元プロットのために $k_x=k_y=k$ ,  $k_x'=k_y'=k'$ と選んでいる。まず、正方格子の結果を見てみると $|OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}|$ は確かに $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$ ライン上でのみ有限になっている。ここで、弱結合 $U=2$ の場合[第3図(a)]、 $|OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}|$ はフェルミ波数にのみ現れる。つまり、フェルミ面上の反対向きの波数をもつ2電子によるクーパー対形成を表している。一方、強結合 $U=16$ の場合[第3図(b)]は、実空間での局在を反映して $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$ 線上に広く分布した強度が見られる。

ペンローズ構造の場合、強結合領域に現れるLocalized及びShort-rangedクーパー対については第3図(d)(e)に示すように周期系のBECと同様の分布が見られた。一方、弱結合領域に現れるExtendedクーパー対については、 $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$ 線上から外れたところにも強度分布が見られる[第3図(c)]。この結果は、Extended超伝導状態が周期系のBCS超伝導状態とは本質的に異なり、クーパー対全体で重心運動量が0になるような超伝導状態が形成されていることを示している。

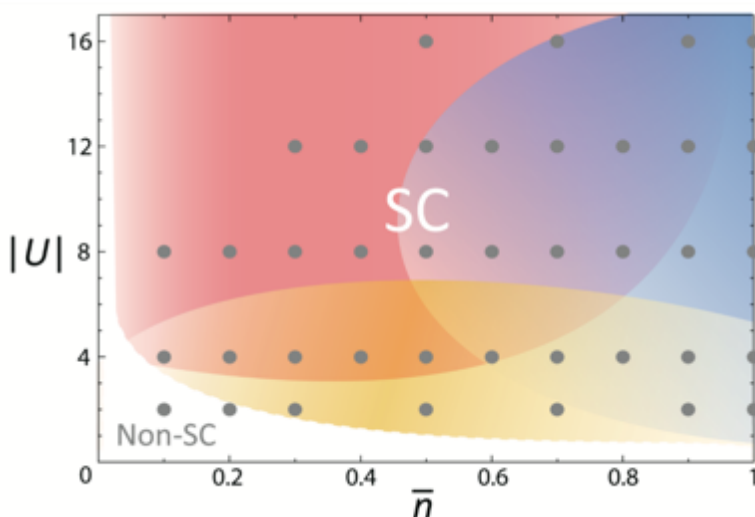
本研究の結果は、準周期系の弱結合領域の超伝導状態がBCS超伝導とは異なる空間的に広がった(Extended)超伝導であることを示した。Al-Zn-Mg準結晶超伝導体の引力はそれほど強く

ないであろうから弱結合領域にあると予想される。

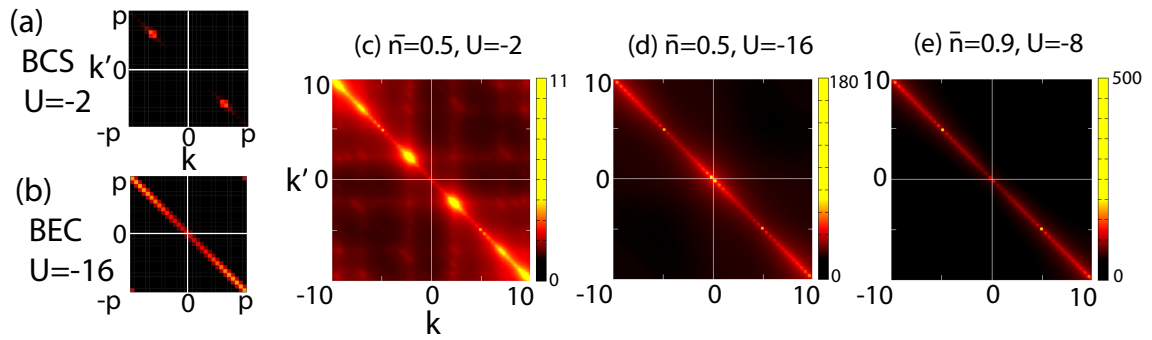
そこで我々は、Extended 超伝導状態が実験結果を説明するかを調べるため、弱結合領域ではよい近似であると考えられる BdG 平均場理論を用いて、ペンローズ構造上の模型(5)について電子比熱を計算した。その結果、比熱の跳び $\Delta C/C_{en}$  ( $C_{en}$ は  $T_c$ 直上の正常状態の電子比熱)は 1.13 と求まった。これは BCS 理論での値 1.43 よりも実験値の 1.09 に近い。ペンローズ構造上での比熱の跳びが、BCS の値よりだいぶ小さくなるのは、非一様な秩序変数の構造を反映していると考えられる。また、比熱の温度依存性も実験結果をよく再現した (第 4 図)。もちろん、格子構造や電子数などの違いがあり詳細な比較には意味がないが、少なくとも実験結果は Extended 超伝導状態と矛盾しないと言える。



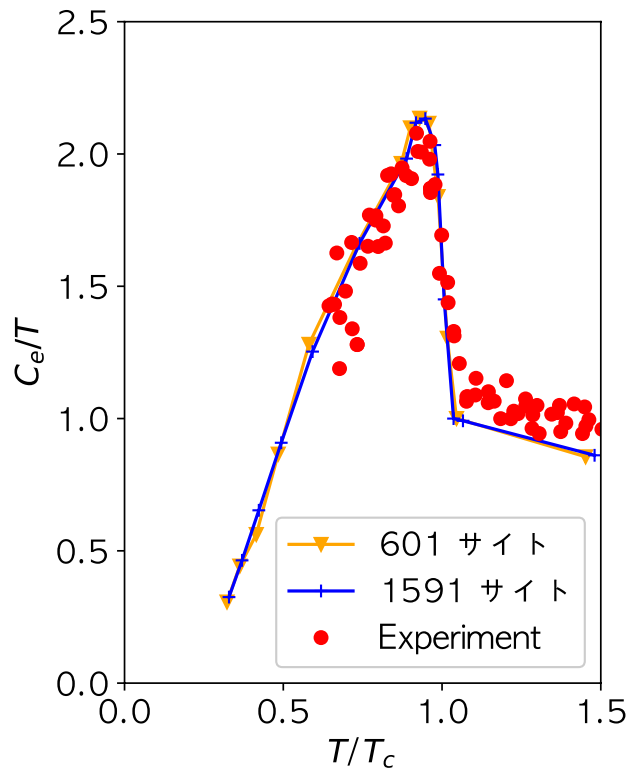
第 1 図. (a), (b), (c)超伝導状態における電子密度 $n_i$ とオンサイト秩序変数 $OP_i$ の実空間構造. それぞれの全サイト平均値( $\bar{n}, \overline{OP}$ )よりも大きな (小さな) 値を示すサイトを赤 (黄) で表した. Extended, Localized, Short-ranged は、(d)の結果が示すクーパー対の空間的広がり具合を表す。(d) オフサイト秩序変数 $OP_{ij}$  の距離( $\|r_i - r_j\|$ )依存性. タイルの一辺の長さを 1 とした. インセット: Localized, Short-ranged 状態についての短距離部分の拡大図.



第 2 図. ペンローズ構造上の引力ハバード模型の低温( $T=0.01$ )における  $\bar{n}$ - $|U|$ 相図. クーパー対の広がり具合に応じた 3つの超伝導状態(SC) を Extended(黄)、Short-ranged(青)、Localized(赤) で色分けした. 3つの領域は互いにクロスオーバーする.



第 3 図. 運動量空間における秩序変数 $|OP_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}|$ の強度図.  $k_x = k_y = k$ ,  $k'_x = k'_y = k'$ について表示した. (a)、(b) 1/4 フィリングの正方格子の場合 (c)–(e) 同フィリングのペンローズ構造での計算結果. 第 2 図に対応する Extended, Localized, Short-ranged の 3 つの場合について示した.



第 4 図. 2 次元ペンローズ構造(601 サイト、1591 サイト)上の引力ハバード模型( $U=-3$ ,  $\bar{n}=0.5$ )における  $T_c$  前後の電子比熱の温度依存性と実験結果との比較. ノーマル状態の電子比熱  $C_{en}$  を  $T_c$  で割ったものを単位とした.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Sakai, N. Takemori, A. Koga, R. Arita	4. 巻 95
2. 論文標題 Superconductivity on a Quasiperiodic Lattice: Extended-to-Localized Crossover of Cooper Pairs	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.024509">https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.024509</a>	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 佐藤憲昭, 神谷京佑, 酒井志朗, 竹森那由多	4. 巻 53
2. 論文標題 準結晶の超伝導 フラクタル超伝導研究の黎明	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 531-542
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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7件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Nayuta Takemori
2. 発表標題 Towards understanding of the superconductivity in quasicrystals: superconductivity in quasiperiodic system
3. 学会等名 Aperiodic2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nayuta Takemori
2. 発表標題 Physical properties of weak-coupling quasiperiodic superconductors
3. 学会等名 Interdisciplinary Symposium for Quasicrystals and Strongly Correlated Electron Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Nayuta Takemori
2. 発表標題 Local and short-range electron correlation effects on the Penrose lattice
3. 学会等名 ICQ13 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 竹森那由多
2. 発表標題 準周期系の超伝導
3. 学会等名 超伝導研究の最先端：多自由度、非平衡、電子相関、トポロジ
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 竹森那由多
2. 発表標題 準周期系の超伝導の理論研究
3. 学会等名 第21回準結晶研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 竹森那由多、酒井志朗、有田亮太郎
2. 発表標題 準結晶超伝導体を特徴づける実験観測量の理論計算
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 竹森那由多
2. 発表標題 準周期系における超伝導の理論的研究
3. 学会等名 第22回準結晶研究会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----