

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22340099

研究課題名（和文）強相関  $f$  電子化合物の量子臨界点近傍での電子状態計算法の開発研究課題名（英文）Development in calculations for electronic states near the quantum critical point in strongly correlated  $f$ -electron systems

研究代表者

播磨 尚朝（HARIMA HISATOMO）

神戸大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：50211496

研究成果の概要（和文）：強相関電子系の特異な物性は、あるパラメータを介して複数の基底状態が拮抗した処で実現している場合が多く、対称性が低い状態においても大きなクーロン相互作用が主要な役割を演じている。その対称性を正確に考慮した電子状態の計算を実行するための計算コードの開発などを行った。圧力下で量子臨界現象を見せる UCoAl などについて研究を行なった。

研究成果の概要（英文）：Novel physical properties in many strongly correlated electron systems are realized when a several ground states are competing in a certain parameter. A large Coulomb interaction plays a important role even in lower symmetry system. A computer code for performing calculations of such the electronic states, have been developed, considering the real symmetry. The electronic states of UCoAl, which shows quantum critical phenomena under pressure, and other systems have been studied.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2012年度	5,800,000	1,740,000	7,540,000
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：数物科学系

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関電子系、電子構造計算、 $f$  電子系、量子臨界点、フェルミ面、空間反転対称性

## 1. 研究開始当初の背景

強相関電子系の研究は、磁場や圧力の複合極限下での実験が精力的かつ精密に行われており、いわゆる量子臨界点近傍で興味ある新しい現象が明らかになりつつあるばかりでなく、充填スクッテルダイトに代表される新しい化合物群の発見などにより、近年特に、新奇な物性の発現が認識され大きな展開をみせている。例えば、新奇超伝導が強磁性の消失する圧力近傍や空間反転対称性のない結晶においても発現し、また、ある種の化合

物では高次の多極子秩序の発現が認識されている。これらの新奇な物性を微視的・統一的に理解しようとする場合、電子構造計算に立脚した物性解明は多くの研究の基礎となる。強相関電子系は  $f$  電子系と  $d$  電子系に大別する事が出来るが、いずれにしても混成の大きさ  $V$  とクーロン相互作用の大きさ  $U$  が拮抗した系で新奇な物性が発現している。 $d$  電子系はもともと  $V$  が大きく、遍歴性の強い  $sp$  電子をフェルミ準位近傍から排除して  $d$  電子間の実効的な  $U$  を大きくした酸化物な

どの場合に強相関電子系の領域に入るが、この場合は銅酸化物高温超伝導体や  $\text{SrRu}_2\text{O}_4$  あるいは最近の鉄系高温超伝導物質に典型的に見られるように伝導電子は基本的に  $d$  電子で構成されており、電子構造は比較的単純である。一方で、もともと  $V$  が小さい局在性の強い  $f$  電子系に関しては、金属間化合物において実効的に  $V$  を大きくする事によって強相関電子系の領域に入る場合が多い。このような金属間化合物の電子構造は一般に複雑であり、個々の物質に対する電子構造計算の助けなくしては、個々の物性を微視的に議論する事は出来ない。しかも、 $f$  電子系の研究においては精密な電子構造計算が極めて重要である。このような  $f$  電子系の場合は、後で述べるように量子臨界点と呼ばれる絶対零度で圧力などをパラメータとして相転移をする現象が注目を集めており、ここで電子の遍歴・局在の移り変りの問題が大きく議論されている。

## 2. 研究の目的

興味ある物性を示す物質は、必ずしも対称性が高く数値計算に適しているとは限らない。一方で、全ての空間群で  $L(S)DA+U$  法を実行可能にすることは将来的に必要ではあるが、時間も手間もかかる。よって、関心が高い、すなわち実験が盛んに行われている物質群を中心とした系に適用可能な計算コードを開発する。簡単な系での計算例を増やしつつ、非磁性の範囲でもっとも興味があり、もっとも構造が複雑な化合物は  $\text{CeCu}_6$  である。 $\text{CeCu}_6$  は  $dHvA$  効果の実験が 20 年前に行われているにも関わらず、フェルミ面の形状が未知のままであることから、 $\text{CeCu}_6$  のフェルミ面の解明を最大の目的とする。磁気多極子秩序状態を含め磁気的な状態は、自由度が増えるために容易ではない。したがって、開発と並行して多くの物質に対して手法の適用を行なう。対象物質としては、メタ磁性転移する  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  や圧力下で価数転移する  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ 、 $\text{CeIn}_3$  や  $\text{CeRhIn}_5$  や  $\text{CePd}_2\text{Si}_2$  の量子臨界点近傍の電子状態、 $\text{UGe}_2$  や  $\text{URhGe}$  などの強磁性基底状態、 $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  や  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  や  $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$  の多極子秩序などがある。これらの磁気的な化合物について計算手法の開発と改良を経て、複数例の電子状態を明らかにする。

## 3. 研究の方法

現有の計算手法を発展させるために必要な計算コードの開発を行い、計算による多くの実験結果の予測と比較を通じて、計算手法の確立を目指す。開発した計算コードは将来的には広く公開する事を考慮して、汎用性に留意しつつ開発する。汎用性を担保するためにも、強相関電子系や磁性体に関わらず多く

の興味ある系の電子構造計算を行なう。

## 4. 研究成果

本研究の主な目的は、これまで研究の対象にしていた系よりも対称性の低い、さらに磁気秩序した状態の電子状態を精密に議論できる計算方法の開発にある。

- (1)  $LDA+U$  法の計算プログラムの改良を行ない、一部ではあるが、対称性の低い系や磁気秩序状態での計算が可能となった。
- (2)  $\text{RT}_2\text{Al}_{10}$  ( $R=\text{La}, \text{Ce}; T=\text{Fe}, \text{Ru}, \text{Os}$ ) の電子構造とフェルミ面を調べた。実験は連携研究者の研究室で行われており、今後詳細な比較を行なう。
- (3)  $\text{LaRu}_2\text{Ge}_2$  の  $\text{Ge}$  位置の構造最適化を行ない、最適化された構造ではフェルミ面に関する実験結果を非常によく再現することを示した。
- (4)  $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  を想定して、 $LDA+U$  法で用いられる密度行列の多極子モーメントの大きさと  $\text{Sb}$  位置の電場勾配との関係を調べた。結論として、 $\text{Sb}$  位置での電場勾配は、 $\text{Pr}$  位置の多極子の変化より多極子の変化による格子パラメータの変化からの影響が大きいことが示唆された。
- (5) 重い電子系超伝導体の  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  は圧力下で価数ゆらぎによる超伝導の可能性が指摘されている。高压下の NQR 実験の解析を行なうために、高压下の格子定数を用いた電場勾配の計算を詳細に行い、比較した。(図 1)

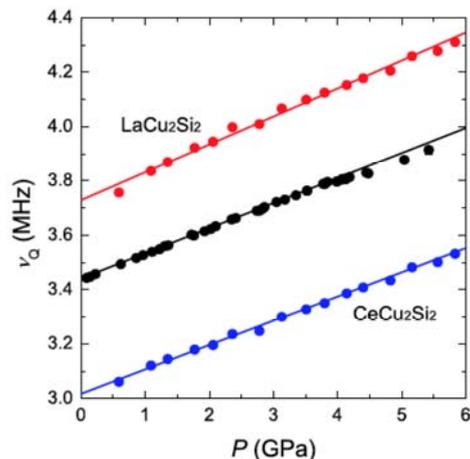


図 1  $\text{Cu}$ -核四重極共鳴 (NQR) 周波数の圧力依存性。上から、 $\text{LaCu}_2\text{Si}_2$  の計算値 (赤)、実験値 (黒)、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の計算値 (青)。計算は、どちらも格子定数の実測値を用いて、局所密度近似を用いた計算である。実験の 4GPa 付近の折れ曲がり価数転移を示唆している。

- (6) 圧力下で量子臨界現象を見せる UCoAl について強磁性秩序化の計算を実行した。今後、実験との比較を行なう。
- (7) YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub> のフェルミ面の解析を行なう目的で、対称性が低い系でのフェルミ面描画などのプログラムを整備した。CeCu<sub>6</sub> はさらに対称性が低いが、その場合のフェルミ面解析プログラムの作成につながる。
- (8) フラストレート系酸化物の電子状態を実行した。Cd<sub>2</sub>Os<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の金属・非金属転移の機構に対する推論を行った。実際の電子構造解析に着手した。
- (9) 若手理論研究者 20 名ほどを集めて「強相関電子系理論の最前線 - 若手によるオープン・イノベーション」と題する研究会を 2 回開催して、今後の強相関電子系の研究動向を議論した。強相関電子系の第一原理的な計算手法ばかりでなく、幅広い理論研究者が今度の研究手法を含めた自由な議論を行なうことが出来て、有意義であった。
- (10) 強相関電子系超伝導物質によく見られるジグザグ構造に注目して、構造由来して創出する特徴をパリティ混成現象として整理した。

#### 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 T. Terashima, ほか、H. Harima (10 人中 9 番目)、Large and homogeneous mass enhancement in the rattling-induced superconductor KOs<sub>2</sub>O<sub>6</sub>, Phys. Rev. B, 査読有、85、2012、180503 (R) (1-5)  
DOI: 10.1103/PhysRevB.85.180503
- ② Y. Yamaura, ほか、H. Harima (14 人中 12 番目)、Tetrahedral Magnetic Order and the Metal-Insulator Transition in the Pyrochlore Lattice of Cd<sub>2</sub>Os<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, Phys. Rev. Lett, 査読有、108、2012、247205 (1-5)  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.247205
- ③ Z. Hiroi, ほか、H. Harima (5 名中 5 番目)、Rattling and Superconducting Properties of the Cage Compound Ga<sub>x</sub>V<sub>2</sub>Al<sub>20</sub>, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、81、2012、124707 (1-11)  
DOI: 10.1143/JPSJ.81.124707
- ④ O. Sakai and H. Harima, First Principle DMFT Band Calculation for Ce Compounds with AuCu<sub>3</sub>-Type Crystal Structure, J. Phys. Soc. Jpn.

Supplement A, 査読有、80、2011、SA127(1-3)  
DOI: 10.1143/JPSJS.80SA.SA127

[学会発表] (計 31 件)

- ① H. Harima, Fermi surfaces in the mixed valent Yb system, 2012 年 7 月 12 日、International Conference of Magnetism, BESCO, Busan, Korea (韓国)
- ② 播磨尚朝、まとめと展望：物性物理学に遍在するパリティ混成現象、2012 年 3 月 27 日、日本物理学会第 68 回年次大会、広島大学
- ③ 酒井治、播磨尚朝、DMFT 計算による CeIn<sub>3</sub> と CeSn<sub>3</sub> のフェルミ面構造とサイクロトロン質量、2012 年 3 月 26 日、日本物理学会第 67 回年次大会、関西学院大学
- ④ 播磨真樹、播磨尚朝、LaT<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> (T=Fe, Ru, Os) の電子構造解析、2011 年 9 月 23 日、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学
- ⑤ 加藤花子、播磨尚朝 LDA+U 法を用いた CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の電子構造解析、2011 年 9 月 23 日、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学
- ⑥ 五宝健、播磨尚朝、PrOs<sub>4</sub>Sb<sub>12</sub> における多極子モーメントと電場勾配の関係の理論的解析 II、2011 年 9 月 23 日、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学
- ⑦ H. Harima、Fermi Surface Study for f-electron Systems, 2011 年 9 月 13 日、Brazil-Japan Mini Workshop on Heavy Electron Physics, Espaco Oliveira Castro in CBPF, Rio de Janeiro, Brazil (ブラジル)
- ⑧ H. Harima、Jewellery in filled skutterudites, 2011 年 9 月 5 日、From Blue Pigment to Green Energy Cobalt mines-Skutterudites-Thermoelectric, Tyrifjord Hotel, Vikersund, Norway (ノルウェー)
- ⑨ H. Harima、The spin-orbit interaction and parity mixing phenomena in condensed matter, 2011 年 9 月 3 日、Japan-French Workshop on Correlated Electronic System Colloquium in honor of Prof. Kazumasa Miyake, ILL, Grenoble, France (フランス)
- ⑩ T. Goho and H. Harima、Multipole Moments in PrOs<sub>4</sub>Sb<sub>12</sub>, 2011 年 8 月 30 日、International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2011)、University of Cambridge, Cambridge, UK (イギリス)
- ⑪ H. Kato and H. Harima、Electronic Structure and Fermi Surfaces of LaRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> Studied by FLAPW Method, 2011

- 年8月30日、International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2011)、University of Cambridge, Cambridge, UK (イギリス)
- ⑫ H. Harima, Spatial symmetry lowering without lattice distortion、Resonating Valence Bond Physics: Spin Liquids and Beyond dedicated to the memory of Patrik Fazekas, 2010年10月13日、the Research Institute of Solid State Physics and Optics、Bydapest、Hungary (ハンガリー)
- ⑬ H. Harima, Stealth Coupling in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>、International Conference on Strongly Correlated electron systems、2010年6月28日、The Santa Fe Convention Center、Santa Fe, NM, USA (アメリカ合衆国)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

播磨 尚朝 (HARIMA HISATOMO)  
神戸大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：50211496

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

小林 達生 (KOBAYACHI TATSUO)  
岡山大学・自然科学研究科・教授  
研究者番号：80205468  
(H23-H24)

菅原 仁 (SUGAWARA HITOSHI)  
神戸大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：60264587  
(H23-H24)

楠瀬 博明 (KUSUNOSE HIROAKI)  
愛媛大学・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号：00292201  
(H23-H24)

大槻 純也 (OTUKI JUNYA)  
東北大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：60513877  
(H23-H24)

鈴木 通人 (SUZUKI MICHITO)  
日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究員  
研究者番号：10596547  
(H23-H24)