

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 8 日現在

機関番号：73903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25400369

研究課題名(和文) 強相関電子系における超伝導機構の多様性に関する理論的研究

研究課題名(英文) Theoretical Study on Diversity of Mechanism of Superconductivity in Strongly Correlated Electron Systems

研究代表者

三宅 和正 (Miyake, Kazumasa)

公益財団法人豊田理化学研究所・フェロー事業部門・フェロー

研究者番号：90109265

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：超伝導の電荷移動ゆらぎ機構と深く関係する量子臨界価数ゆらぎの物理は、Ybを含む準結晶でも重要であるなど、予想以上に普遍的であることが実験的に分かってきたが、これらの事実を包括的に理解する理論を構成した。

電気4極子ゆらぎ超伝導機構の可能性が示唆されている、Pr-1-2-20系物質のノーマル状態で観測される非フェルミ液体的な種々の異常物性を、Pr³⁺イオンのもつ4極子自由度の効果を取り込んだ「2チャンネルアンダーソン格子モデル」にもとづいて統一的に説明した。

ESP状態のスピン3重項状態では、準粒子状態密度のエネルギー依存性を考慮すると、自発的にスピン磁化が誘起されることを理論的に示した。

研究成果の概要(英文)：The physics of quantum critical valence transition, closely related with the mechanism of superconductivity around there, offers the origin of unconventional quantum criticality which is rather ubiquitously observed in a series of compounds including Yb-based quasicrystal system. We succeeded in constructing the theory that explains these anomalous properties in a coherent way.

The unconventional non-Fermi liquid properties observed in a series of Pr-1-2-20 systems was explained in a coherent way on the basis of the two-channel periodic Anderson model which takes into account the quadrupole degrees of freedom of Pr³⁺ ion.

In Equal-Spin-Pairing superconducting state, the spin polarization was shown to be induced spontaneously if the energy dependence of the density of states near the Fermi level is taken into account properly.

研究分野：物性理論

キーワード：量子臨界価数転移 原子価スキッピング 電荷移動ゆらぎ超伝導機構 スピンゆらぎ超伝導機構 重い電子系 スピン3重項超伝導 カイラル超伝導 2チャンネルアンダーソン格子モデル

1. 研究開始当初の背景

この四半世紀の間に、強相関電子系における超伝導機構においては何らかのスピンのゆらぎが重要な役割を果たすというパラダイムが浸透してきた。しかし、20世紀末からこのパラダイムを超える現象が顕在化してきた。たとえば、重い電子系における価数ゆらぎ機構の重要性が認識されはじめた。実際、重い電子系物質 $\text{CeCu}_2(\text{Si}, \text{Ge})_2$ や CeRhIn_5 の加圧下で観測される超伝導転移温度の顕著な増大とそれに伴う非フェルミ液体的振る舞いは、Ce の価数がほぼ+3 価に近い「近藤領域」から+4 価の方向に増大した「価数揺動領域」への急激なクロスオーバーに関連する現象であることが次第に分かってきた。

また、銅酸化物高温超伝導体の研究においても、5層系物質での（ドーピングに伴う乱れの効果を押さえたときに実現する本来の）超伝導転移温度 T_c とキャリア濃度 δ の相図は、金属反強磁性が $\delta=0.15$ 付近まで張り出し、超伝導相は反強磁性と共存しつつ反強磁性が消失した更に高ドーピング側に T_c のピークをもっている。これは、キャリア濃度 δ を圧力に置き換えると上記 CeRhIn_5 の加圧下の相図と酷似している。この事実は、既に四半世紀以上研究されてきた銅酸化物高温超伝導体においても、これまで見過ごされてきた重要な物理が埋もれていることを示唆しているように見える。

すなわち、重い電子系物質と銅酸化物に代表される強相関電子系の超伝導機構の研究は新しいフェーズに入ってきたと云えるのではないかと、という考えが本研究計画の背景をなしている。

2. 研究の目的

本研究の目的の一つは、これら超伝導機構の多様性を理論的に検討することを通じて、銅酸化物高温超伝導体より高い超伝導転移温度をもつ超伝導体の理論的可能性を探究することである。具体的には、電荷移動ゆらぎ（軌道・価数ゆらぎ）超伝導機構、原子価スキッピング系（ネガティブU）超伝導機構、などの理解の深化に努めることである。また、超伝導機構の理解にはその起源となる相互作用の理解が不可欠であるが、それはしばしばノーマル状態での普通ではない性質を研究することで得られる。そのため、ノーマル状態で様々な異常な性質の起源を解明するのがもう一つの目的である。

3. 研究の方法

ファイマン図形を用いる量子多体問題の方法により基本的に解析的な理論手法に基づきつつ数値解析的手法も駆使して研究を進めた。国内外の研究者との討論も研究の発展にとって極めて有益であった。

4. 研究成果

(1) 量子臨界価数ゆらぎに関する成果

① 重い電子系の価数ゆらぎ超伝導機構と密接な関係にある「臨界価数ゆらぎの理論」を展開し、f 電子と伝導電子の混成の強さが空間的に分布している場合には、価数転移の量子臨界点が有限の領域に広がることを示した。これは準結晶物質 $\text{Yb}_{15}\text{Al}_{34}\text{Au}_{51}$ で観測された圧力効果に鈍感な量子臨界性を説明する。また、 $\beta\text{-YbAlB}_4$ や $\text{Yb}_{15}\text{Al}_{34}\text{Au}_{51}$ で観測される、磁化 M が温度と磁場の比 (T/B) の関数で与えられること（いわゆる、 T/B -スケーリング）を、f 電子と伝導電子の間の斥力 U_{fc} の効果を取り込んだ「拡張アンダーソン格子モデル」にもとづくモード結合理論により導いた。準結晶物質 $\text{Yb}_{15}\text{Al}_{34}\text{Au}_{51}$ については佐藤グループ（名大理）のその後の実験により確認された。

② 量子臨界価数ゆらぎが輸送現象にどのような影響を与えるかという問題を解明するための第一ステップとして、周期アンダーソンモデルの電気抵抗およびホール係数の性質を記述する理論的枠組みを完成させた。

③ 量子臨界転移現象に関するレビュー論文を2編執筆した。一つは、この現象は特殊なものではなく、かなり遍在性をもつものであることを具体例に即して議論したものであり、もう一方は、圧力依存性に注目して理論と実験の現状を整理したものである。

(2) f^2 電子配置の重い電子系に関する成果(2-1) UPt_3 の電子状態

重い電子系超伝導体 UPt_3 では、強相関電子系金属のNMRで期待されるKorringa-Shibaの関係が破れていることが（その超伝導機構を考える上でも）残された大きな謎であった。その不純物モデルを数値くりこみ群の方法で調べたところ、 U^4 の f 電子の結晶場基底状態が f^2 -結晶場1重項であることを仮定すると矛盾なく理解できることを示した。また、 UPt_3 の超伝導の微視的機構の解明をめざして、 f^1 - f^2 - f^3 の電子配置を考慮する回転不変のスレーブボソン法を用いて、 f^2 電子配置近傍での準粒子状態を決める理論的枠組みを構築した（論文準備中）。

(2-2) 2チャンネルアンダーソン格子モデルの非フェルミ液体状態

① $\text{PrV}_2\text{Zn}_{20}$, $\text{PrRh}_2\text{Zn}_{20}$, $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ などの (Pr-1-2-20 系と略称) ノーマル状態で観測される非フェルミ液体的な種々の異常物性を、 Pr^{+3} イオンのもつ4極子自由度の効果を取り込んだ「2チャンネルアンダーソン格子モデル」にもとづいて統一的に説明した。とりわけ、電気抵抗の示す非フェルミ液体的温度依存性は、温度を特性温度でスケールすると単一の関数で表せることが分かり、加圧下や磁場下で観測される電気抵抗の温度依存性に関するスケーリング則をよく説明する。

②上記 Pr-1-2-20 系で観測された超伝導は Pr^{+3} イオンのもつ 4 極子自由度のゆらぎによって誘起されることを、これらの物質のよいモデルと考えられている「2チャンネルアンダーソン格子モデル」にもとづいて示した。とりわけ圧力下の超伝導転移温度の振る舞いを定性的に再現できた (論文準備中)。

(3) スピンゆらぎ超伝導機構に関する成果
 CeCu_2Si_2 の超伝導機構として反強磁性スピンゆらぎ超伝導機構の重要性を研究代表者が最初に提案したが、最近の中性子散乱により観測された動的スピン帯磁率と電気抵抗の温度依存性測定の実験にもとづいて微視的な理論を展開し、定量的に実験事実を再現する結果を得た。

(4) 原子価スキッピング効果と電荷近藤効果に関する成果

①電荷近藤効果と超伝導を示す $\text{Pb}_{1-x}\text{Tl}_x\text{Te}$ ($x=0.01$) は Tl イオンの原子価スキッピング効果であると考えられているが、最近、Tl 近傍にある ^{125}Te の NMR 縦緩和率が $T < 10\text{K}$ で降温とともに顕著な増大を示すことが分かった。この現象は原子価スキッピング効果として理解できることを理論的に示した (実験家と共著論文投稿中)。

②原子価スキッピング超伝導機構に関する解説を執筆するとともに、それを可能にする微視的機構が対遷移クーロン相互作用であることに注目して、「くりこみ群」的観点からその相互作用が低エネルギーに向けて多体効果により増大することを示した (論文準備中)。

(5) 電荷移動ゆらぎ超伝導機構に関する成果

①Ce を含む重い電子系物質 $\text{CeCu}_2(\text{Si}, \text{Ge})_2$ などで観測される臨界価数ゆらぎに起因する超伝導機構について理論と実験の総合報告を J. Phys. Soc. Jpn. 誌から依頼を受けて執筆した。

②高温超伝導体の微視的標準モデルである d-p モデルに Cu サイトの 3d 電子と O サイトの 2p 電子との間に働くクーロン相互作用 U_{dp} の効果を、オンサイトの 3d 電子間に働く強い電子相関効果を取り込むことが可能な $1/N$ 展開の方法にもとづいて議論し、超伝導転移温度が最大になるホール濃度の近辺で d-p 電荷移動の量子臨界転移が可能であることを示した。電荷移動のパターンは時間反転対称性を自発的に破っていることが分かった (論文準備中)。

③Pu の価数ゆらぎ超伝導機構が有力視されている PuCoGa_5 で観測された熱膨張係数の温度依存性の異常を量子臨界価数ゆらぎの理論の観点から議論し、実験家と共著論文を執筆した。

(6) 時間反転対称性が破れた超伝導状態の性質に関する成果

(6-1) スピン 3 重項超伝導体での自発的時間反転対称性の破れの理論

①Equal-Spin-Pairing 状態のスピン 3 重項状態において、ノーマル状態での状態密度のエネルギー依存性を考慮すると、自発的にスピン磁化が誘起されて時間反転対称性が破れることを理論的に示した。これは石田グループ (京大理) により観測された Sr_2RuO_4 のナイフシフトが転移温度以下で増大する効果を説明する。

②2次元引力ハバードモデル (ハーフフィロド) の磁場下の基底状態における BCS-BEC クロスオーバーを議論し、弱結合 ($U < 2t$) では FFL0 的状态は現れず、強結合 ($U \gg t$) においては、 $H > 0.25U$ の高磁場において重心運動量 $q = (\pi/a, \pi/a)$ の FFL0 状態が現れることが分かった。

(6-2) カイラル超伝導状態の理論

①スピン 3 重項カイラル超伝導体 Sr_2RuO_4 の性質を理解することを目的として、2次元正方格子上で再隣接格子の電子間に引力が働くモデルの固有角運動量・固有磁気モーメントの大きさについて Bogoliubov-de Gennes 方程式の数値解にもとづいて研究し、その観測可能性について議論した。

②スピン 3 重項カイラル超伝導と考えられている Sr_2RuO_4 において μSR で観測される 0.5G 程度の小さな自発磁場は、 μ^+ により誘起された電子がその周りのカイラル超伝導を破壊する効果として理解できることを、Bogoliubov-de Gennes 方程式の数値解にもとづいて示した (強相関電子系国際会議 2017 で発表予定)。

(7) その他の成果

(7-1)

結晶が反転対称中心を持たない超伝導体などで重要な役割を演じる「反転対称性スピン軌道相互作用」は磁気転移にともなう量子磁気臨界ゆらぎの影響で非自明な「くりこみ効果」を受け、その結果、フェルミ面の変形や準粒子の (新しいタイプの) 有効質量の発散が起こることを示した。

(7-2)

奇周波数超伝導状態が実現する現実的な系として、ギャップレスのスピン波励起モードをもつ反強磁性と超伝導との共存相が有力視されている。そこではそのスピン波を交換することで奇周波数ペアが偶周波数ペアに比べて安定化することが弱結合近似の範囲で分かっていたが、強結合効果まで考慮したときにもその安定性は保たれることが分かった (論文準備中)。

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 24 件)

1. S. Nishiyama, K. Miyake, C. M. Varma: “Superconducting Transition Temperatures for Spin-Fluctuation Promoted Superconductivity in Heavy Fermion Compounds” *Phys. Rev. B* Vol. 88, No. 1, 014510-1-10 (2013) 査読有り
2. K. Miyake: “Theory of Pairing Assisted Spin Polarization in Spin-Triplet Equal Spin Pairing: Origin of Extra Magnetization in Sr_2RuO_4 in Superconducting State” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.83, No.5, 053701-1-4 (2014) 査読有り
3. A. Tsuruta, S. Hyodo, K. Miyake: “BCS-BEC Crossover in Two-Dimensional Attractive Hubbard Model under Magnetic Field” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.83, No.6, 063706-1-4 (2014) 査読有り
4. A. Tsuruta, S. Imamura, K. Miyake: “Ginzburg-Landau Formalism for 2n-Body Condensation” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.83, No.9, 094603-1-19 (2014) 査読有り
5. Y. Fujimoto, K. Miyake, H. Matsuura: “Deformation of the Fermi Surface and Anomalous Mass Renormalization by Critical Spin Fluctuations through Asymmetric Spin-Orbit Interaction” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.84, No.4, 043702-1-5 (2015) 043702-1-5 査読有り
6. A. Tsuruta, S. Yukawa, K. Miyake: “Intrinsic Angular Momentum and Intrinsic Magnetic Moment of Chiral Superconductor on Two-Dimensional Square Lattice” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.84, No.9, 094712-1-11 (2015) 査読有り
7. K. Ishida, M. Manago, T. Yamanaka, H. Fukazawa, Z. Q. Mao, Y. Maeno, K. Miyake: “Spin Polarization Enhanced by Spin-Triplet Pairing in Sr_2RuO_4 Probed by NMR” *Phys. Rev. B* Vol.92, No.10, 100502(R)-1-5 (2015) 査読有り
8. A. Tsuruta, K. Miyake: “Non-Fermi Liquid and Fermi Liquid in Two-Channel Anderson Lattice Model: Theory for $\text{PrA}_2\text{Al}_{20}$ (A=V, Ti) and $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ ” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol.84, No.11, 114714-1-14 (2015) 査読有り
9. Y. Yotsuhashi, K. Miyake, H. Kusunose: “Anomalous Local Fermi Liquid in f^2 -Singlet Configuration: Impurity Model for Heavy Electron System UPt_3 ” *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol. 85, Vol.3, 034719-1-8 (2016) 査読有り
10. R. Eloirdi, C. Giacobbe, P. Amador Celdran, N. Magnani, G. H. Lander, J.-C. Griveau, E. Colineau, K. Miyake, R. Caciuffo: “Thermal Expansion of the Heavy-fermion Superconductor PuCoGa_5 ” *Phys. Rev. B* Vol.95, No.9, 094517-1-5 (2017) 査読有り
11. K. Miyake, S. Watanabe: “Ubiquity of Unconventional Quantum Criticality due to

Critical Valence Fluctuations in Heavy Fermion Metals” *Phil. Magazine*, ISSN: 1478-6435 (Print) 1478-6443 (Online), 22 頁 (2017), 査読有り
DOI: 10.1080/14786435.2017.1314561.

15. 松浦弘泰, 三宅和正: 「原子価スキッピング現象における近藤効果と超伝導」*固体物理*, 第 48 巻, 第 8 号, 399-407 頁, 2013 年.

[学会発表] (計 59 件) (招待講演 17 件)

1. K. Miyake, “Quantum Criticality due to Valence Transition”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (invited), August 8, 2013, Tokyo, Japan
2. S. Nishiyama, K. Miyake, C. M. Varma, “D-Wave Superconductivity from Measured AFM Fluctuations in a Heavy-Fermion Compound”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (invited), July 7, 2014, Grenoble, France
3. K. Miyake, “Spontaneous Time-Reversal-Symmetry Breaking in Spin-Triplet Superconductivity with Equal-Spin Pairing: Excess Knight Shift in Superconducting State of Sr_2RuO_4 ”, 13th Theoretical and Experimental Magnetism Meeting (invited), July 16, 2015, Abingdon, UK
4. K. Miyake, “Changes of Paradigm for Origins of Superconductivity”, IGER International Symposium on Science of Molecular Assembly and Biomolecular Systems 2016 (invited), September 30, 2016, Nagoya, Japan
5. 鶴田篤史: 「四極子近藤格子の理論: Pr 1-2-20 系の異常物性をめぐって」日本物理学会第 71 回年次大会 (招待講演) (2016. 03. 23) 東北学院大学 (仙台市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三宅 和正 (MIYAKE KAZUMASA)
公益財団法人豊田理化学研究所・フェロー
事業部・フェロー
研究者番号: 90109265

(2) 研究分担者

鶴田 篤史 (TSURUTA ATSUSHI)
大阪大学・大学院基礎工学科・助教
研究者番号: 40397716