

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400380

研究課題名(和文)電子相関機構に基づく高温超伝導機構の解明と新規超伝導体のデザイン

研究課題名(英文) Theoretical study of the mechanism of high-temperature superconductivity and design of new superconductors based on the electron-correlation mechanism

研究代表者

柳澤 孝 (Yanagisawa, Takashi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・上級主任研究員

研究者番号：90344217

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)：高温超伝導の機構を、電子相関モデルに基づいて研究した。高温超伝導体は電子間に強い相互作用が働き、電子相関が強い系である。この系に対する波動関数を最適化し、世界的に見て最良の波動関数を得ることに成功した。この波動関数に基づいて電子状態を調べた。その結果、弱相関領域から強相関領域へのクロスオーバーが起こり、そのクロスオーバーにおいて反強磁性相関を壊す強いゆらぎが生じることが明らかになった。この強相関ゆらぎにより超伝導が引き起こされ、高温超伝導を可能にすることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We investigated the mechanism of high-temperature superconductivity on the basis of electronic models with strong correlation. The cuprate high-temperature superconductors are known as a typical strongly-correlated-electron system. We tried to optimized the wave function of many-electron systems and succeeded to obtain the most optimized wave function. The electronic state was examined by using this wave function. We found that there is a crossover between weakly correlated and strongly correlated regions. In the strongly correlated region, the antiferromagnetic correlation is suppressed and at the same time the superconducting pair correlation is enhanced. This leads to the result that the superconducting transition occurs in the strongly correlated region as a result of crossover from weakly to strongly correlated regions.

研究分野：多体量子物理学

キーワード：強相関係 高温超伝導 多体波動関数 モンテカルロ法 超伝導機構 反強磁性 強相関スピンゆらぎ  
クロスオーバー

### 1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体が発見されてから25年以上が経過したが、臨界温度は向上していない。これは、超伝導機構がまだ明らかになっていないためと、新超伝導体の開発が確個たる物質開発指針に則っていないこととに原因がある。銅酸化物の超伝導機構が明らかになっていないのは、この超伝導体が典型的な強相関電子系であり、二次元強相関電子系の電子状態を明らかにするのが難しいためである。また、モデルが明らかになっていないのもその原因である。ここで、モデルというものはミニマムモデルと言うべきもので、そのモデルから出発すれば高温超伝導体の現象が理解できるようなモデルのことである。

我々はこれまでいくつかの電子相関モデルに基づいて、量子シミュレーション法を使うことにより超伝導機構の研究を行ってきた。ここで、電子相関モデルとは、ハバードモデル、**d-p** モデルなどのように電子間の相互作用を含むモデルを意味する。電子相関モデルにおいては、相互作用のエネルギースケールが大きいと高い超伝導臨界温度  $T_c$  が期待できる。シミュレーションの結果は高温超伝導が可能であることを示している。特に、変分モンテカルロ法により計算された銅酸化物の超伝導凝縮エネルギーは実験により得られた値と非常に良く一致した。これは、銅酸化物における高温超伝導の起源が電子間相互作用にあることを強く示唆している。電子相関モデルにおいて超伝導の可能性は示されたが、実際に高温超伝導が可能であるか、また、どのような物質パラメータに対して高温超伝導が実現するかは明らかになっていない。

### 2. 研究の目的

超伝導の起源と成り得る相互作用はいろいろ考えられており、それらに対応した電子相関モデルも各種存在する。代表的なものとして、各原子上のクーロン相互作用、隣接原子間の交換相互作用およびクーロン相互作用がある。これらはスピンと電荷のゆらぎにより、超伝導の起源である電子間の引力を引き起こす。これらの相互作用の大きさは、第一原理計算や各種の実験から見積もることができる。相互作用の大きさを表わす量をここでは相互作用パラメータとよぶ。研究の目標は、「電子相関モデルにおいて、どのような物質・相互作用パラメータに対して高温超伝導が可能であるか」を明らかにすることにある。これらのマルチパラメータの空間において、最適なパラメータのセットを探し出すのが本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

電子相関系における超伝導は、スピンと電荷のゆらぎが起源であると考えられてい

る。そのような超伝導体の例として、銅酸化物高温超伝導体、重い電子系などの強相関系、鉄ヒ素超伝導体、および最近注目を集めつつある価数スキップ系などがある。価数スキップとは、特定の価数がスキップされる現象で、例えば、 $\text{Bi}^{3+}$ や $\text{Bi}^{5+}$ は存在するが、 $\text{Bi}^{4+}$ は存在しにくいという現象である。これは有効的に引力相互作用が存在することを示しており、高い臨界温度が期待できる。

量子変分モンテカルロ法は、最初に波動関数を設定して期待値を計算する方法であり、厳密ではないが相互作用が非常に強い系にも適用できる。波動関数を改良、最適化し、その波動関数により多体電子系の電子状態を明らかにする。

### 4. 研究成果

強相関電子系に対する多体波動関数を最適化し、世界的に見て最良の波動関数であることを示した。これまで世界中の研究者により色々な多体波動関数が提案されて来たが、我々の波動関数はそれらのどの波動関数よりもエネルギー期待値が下がり、最良の波動関数であることを示した。最適化された波動関数による期待値は、モンテカルロ法により計算した。この波動関数に基づいて、二次元ハバードモデル及びd-pモデルの基底状態の電子状態を調べた。

二次元ハバードモデルのエネルギーを、クーロン相互作用の強さ  $U$  の関数として表したものを図1に示す。

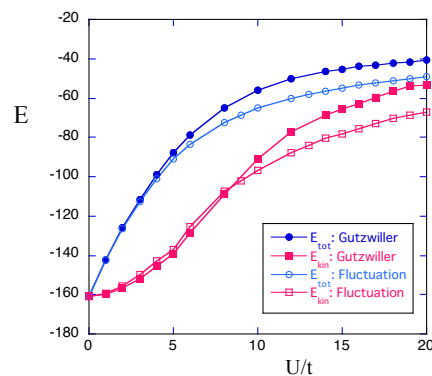


図1. 基底状態エネルギーと  $U/t$ . Gutzwiller 関数による期待値との比較。10x10 の系において電子数は88個とした。

キャリアーがドーピングされた二次元ハバードモデルにおいて、電子間相互作用  $U$  が大きくなるに従い、弱相関領域から強相関領域へのクロスオーバーが起きる。すなわち、反強磁性相関は  $U$  の関数として見ると、 $U$  がほぼバンド幅の大きさである時に最大となり、さらに  $U$  が大きくなると減少に転ずる。相互作用  $U$  が大きい領域で反強磁性相関が抑えられるのは、反強磁性によるエネルギーの下がり  $t^2/U \sim J$  (交換相互作用) のように小さくなるためである。よりエネルギーを下げるために

反強磁性の相関を壊してホールを動かし、運動エネルギーを得しようとするのである。U が大きい強相関領域においては反強磁性相関が抑えられることにより、強いスピんゆらぎが生じ、この強いゆらぎが高温超伝導を引き起こす。これを、図2に示す。

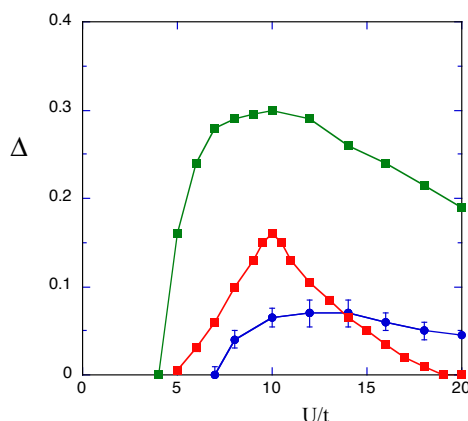


図2. 反強磁性と超伝導オーダーパラメーターとU。緑印(四角)はGutzwiller関数による反強磁性、赤印(四角)は最適化された波動関数による反強磁性秩序の大きさを示す。青丸は超伝導秩序の大きさを表す。

図2からわかるように、超伝導相関は強相関領域において最大を示す。これは、高温超伝導は弱相関から強相関へのクロスオーバーに伴って起きることを示している。クロスオーバーに伴う特異性が超伝導の起源であると言える。このクロスオーバーに伴う特異性の出現は非常に普遍的な現象である。例えば、近藤効果における対数特異性も、弱結合状態から強結合状態へのクロスオーバーにおいて現れるものである。すなわち、強相関ゆらぎによる高温超伝導と近藤効果とは、同じユニバーサルティークラスに属していると言える。

我々の波動関数により、金属絶縁体転移であるモット転移を記述することができる。クーロン相互作用が $U \sim 7t$ において金属絶縁体転移が起こることを示した。すなわち、 $U > 7t$ が強相関領域であると言える。図3にUを変えた時の運動量分布を示す。U=7tを境界にして、振る舞いが変わり運動量分布のフェルミ面におけるとびが消滅することがわかる。すなわち、金属から絶縁体への相転移が起きている。また、銅原子と酸素原子を含んだd-pモデルにおいても、dとpのレベル差が大きくなると金属絶縁体転移が起きることを示した。これは、電荷移動型の金属絶縁体転移である。

また、新奇超伝導体のデザインについての考察をおこない、いくつかの新奇超伝導体を提案した。実際に、いくつかの新奇超伝導体を発見することができた。元素置換により状態密度の増大を理論的に予言し、それに伴って超伝導臨界温度の上昇が可能であること

を示した。実際、実験によりその通りであることが示された。

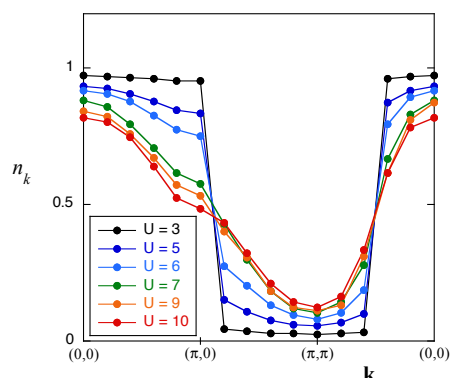


図3. キャリアがない系におけるUの増大に伴う運動量分布の変化。Uの増大に伴いモット転移が起きる。

新奇超伝導体のデザインに関して、価数スキップゆらぎによる超伝導を集中的に考察し、新超伝導体の候補物質を吟味した。その中から、実際に幾つかの新規超伝導体が発見された。

#### 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 11 件)

1. T. Yanagisawa, M. Miyazaki, Mott transition in cuprate high temperature superconductors, Europhysics Letters 107, 27004 (2014).
2. A. Iyo, K. Hira, K. Tokiwa, Y. Tanaka, I. Hase, T. Yanagisawa, N. Takeshita, K. Kihou, P. Shirage, P. Raychaudhuri, H. Eisaki, Superconductivity at highest transition temperature of 8.1K in simple cubic Ab-Sb-TE and Au-Sb alloys, Supercond. Sci. Tech. 27, 025005 (2014).
3. A. iyo, Y. Yanagi, S. Ishida, K. Oka, Y. Yoshida, K. Kihou, C.H. Lee, H. Kito, N. Takeshita, I. Hase, T. Yanagisawa, T. Kinjo, T. Nishio, H. Eisaki, Superconductivity at 4.4K in Ba<sub>2</sub>Bi<sub>3</sub>, Supercond. Sci. Tech. 27, 072001 (2014).
4. T. Yanagisawa, Y. Tanaka, Fluctuation-induced Nambu-Goldstone boson in a Higgs-Josephson model, New Journal of Physics 16, 123014 (2014).
5. S. Koikegami, T. Yanagisawa, Inhomogeneous Electronic Distribution in High-Tc Cuprates, J. Phys. Soc. Jpn. 84, 054704 (2015).
6. A. iyo, Y. Yanagi, S. Ishida, K. Oka.

- Y. Yoshida, K. Kihou, C.H. Lee, H. Kito, N. Takeshita, I. Hase, T. Yanagisawa, T. Kinjo, T. Nishio, H. Eisaki, Enhancement of superconducting transition temperature of SrBi<sub>3</sub> induced by Na substitution for Sr, Scientific Reports 5, 10089 (2015).
7. T. Yanagisawa, Chiral sine-Gordon model, Europhysics Letters 113, 41001 (2016).
  8. T. Konjo, S. Kajino, T. Nishio, K. Kawashima, Y. Yanagi, I. Hase, T. Yanagisawa, S. Ishida, H. Kito, N. Takeshita, K. Oka, Y. Yoshida, A. Iyo, Superconductivity in LaBi<sub>3</sub> with AuCu<sub>3</sub>-type structure, Supercond. Sci. Tech. 29, 03LT02 (2016).
  9. T. Yanagisawa, Crossover from weakly to strongly correlated regions in the two-dimensional Hubbard model, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 114707 (2016).
  10. I. Hase, T. Yanagisawa, K. Kawashima, One way to design a valence-skip compound, Nanoscale Research Lett. 12, 127 (2017).
  11. T. Yanagisawa, I. Hase, K. Odagiri, Isotope shift of the ferromagnetic transition temperature in itinerant ferromagnets, Phys. Lett. A381, 737 (2017).

[学会発表] (計 11 件)

1. T. Yanagisawa, Electron Correlation and Superconductivity in High Temperature Cuprates, Spring World Congress of Engineering and Technology, 招待講演, 2014年4月17日、中国、上海.
2. T. Yanagisawa, Multi-phase physics of multi-condensate superconductors, Erice International School on Solid State Physics, 招待講演, 2014年7月20日、イタリア、エリーチェ.
3. T. Yanagisawa, Exotic Superconductivity in Multi-Condensate Superconductors, 9<sup>th</sup> International Conference on Computational Physics, 招待講演, 2015年1月8日、シンガポール、シンガポール国立大学.
4. T. Yanagisawa, Superconductivity and Stripes in High-Temperature Cuprates, 招待講演, International Conference on Quantum Matter Superstripes 2015, イタリア、イスキア, 2015年6月15日.
5. 柳澤孝, 低抵抗導電材料の理論的背景と将来展望, 新化学技術戦略提言部会, 招待講演, 東京都, 新化学技術推進協会, 2015年4月9日.
6. 柳澤孝, 近藤効果研究の進展・はじめに,

日本物理学会秋季大会, 招待講演, 大阪府, 関西大学, 2015年9月16日.

7. 柳澤孝, マルチバンド超伝導における新しい物理の進展, 日本物理学会年次大会, 仙台市, 東北学院大学, 2016年3月20日.
8. T. Yanagisawa, Nambu-Goldstone-Leggett and Higgs modes in multi-condensate superconductors, 招待講演, International Conference on Superstripes 2016, イタリア, イスキア, 2016年6月26日.
9. T. Yanagisawa, Theory of spontaneous symmetry breaking and an application to superconductivity, 招待講演, International Conference on Computational Physics 10, 中国、マカオ, 2017年1月8日.
10. I. Hase, T. Yanagisawa, K. Kawashima, One way to design a valence-skip compound, 招待講演, EMN Meeting on Alloys and Compounds, オーストラリア, メルボルン, 2016年10月12日.
11. A. Iyo, S. Ishida, H. Kito, H. Eisaki, Y. Fujihisa, Y. Goro, K. Oka, K. Kihou, N. Takeshita, I. Hase, T. Yanagisawa, Y. Yoshida, T. Nishio, K. Tokiwa, K. Kawashima, Recent Discovery of New Superconductors in AIST, 招待講演, 1st Asian ICMC-CSSJ 50<sup>th</sup> Anniversary Conference, 金沢市, 2016年11月9日.

[図書] (計 2 件)

1. 超伝導磁束状態の物理, 門脇和雄、池田隆介、市岡優典、伊豫彰、宇治進也、大井修一、大熊哲、加藤勝、町田昌彦、柳澤孝、ほか、裳華房、2017年.
2. Vortices and Nanostructured Superconductors, A. Crisan, T. Yanagisawa, V. Moshalkov, Y. Tanaka, N. Long, C. S. Kien, P. Mele, L. Miu, P. Iaviano, J. Ge, Springer-Verlag, Berlin, 2017年.

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 出願年月日：  
 国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
 発明者：  
 権利者：

種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等  
<http://staff.aist.go.jp/t-yanagisawa>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

柳澤 孝 (YANAGISAWA TAKASHI)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部  
門・上級主任研究員  
研究者番号：9034217

### (2) 研究分担者

長谷 泉 (HASE IZUMI)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部  
門・主任研究員  
研究者番号：00357774

### (3) 研究分担者

伊豫 彰 (IYO AKIRA)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部  
門・上級主任研究員  
研究者番号：50356523

### (4) 研究分担者

竹下 直 (TAKESHITA NAO)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部  
門・主任研究員  
研究者番号：60292760