

平成21年5月20日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18540338
 研究課題名（和文） リング交換機構による強磁性結合を起源としたスピン三重項超伝導の微視理論
 研究課題名（英文） Microscopic theory of spin triplet superconductivity originated by the ferromagnetic coupling due to ring-exchange mechanism
 研究代表者
 氏名（ローマ字）：太田 幸則（OHTA YUKINORI）
 所属機関・部局・職：千葉大学・大学院理学研究科・教授
 研究者番号：70168954

研究成果の概要：

三角格子上を運動する電子系の電子スピン間に働くリング交換機構と呼ばれる強磁性結合のミクロな機構を利用してスピン三重項超伝導を導くという新規な超伝導発現機構を提案し、その機構の実現可能性を、三角格子ハバード模型、および関連するジグザグ梯子模型に密度行列繰り込み群（DMRG）という数値的手法を適用し、詳細に検討した。その結果、幅広いパラメータと電子密度の領域に於いて、f 波対称性を持つスピン三重項超伝導の発現を示唆する強い数値的証拠を得た。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,200,000	0	1,200,000
2007年度	800,000	240,000	1,040,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	450,000	3,150,000

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：超伝導、磁性、強相関電子系、物性理論、リング交換、スピン三重項超伝導

1. 研究開始当初の背景

物性物理学における古くからの大問題のひとつに金属強磁性の発現機構がある。最近では基底状態が厳密に強磁性である理論模型も提案されている。三角格子上を運動する電子系においては、電子スピン間に強磁性結合を生み出すリング交換機構と呼ばれるミクロな機構が存在する。格子構造中のひとつの三角形を2個の電子が2/3周して互いの位置を入れ替える時、飛び移り積分の符号に依存する運動エネルギーの利得が、2電子のスピンを三重項（triplet）にそろえる機構で

ある。

この機構を、金属強磁性にではなく、スピン三重項超伝導の発現に利用できないだろうか。また、この機構が働く現実の超伝導物質は存在しないだろうか。

申請者らは、2005年の時点に於いてこの問題に取り組み、リング交換機構による強磁性結合を起源としたスピン三重項超伝導の発現機構を提案した。その当時、ベッチガード塩と呼ばれる分子導体においてスピン三重項超伝導を示唆する実験的証拠が見つけたが、これが本研究の物質的背景として存

在している。また、その他の物質系においても、新たな非従来型の超伝導の発現を示唆する数多くの実験事実が蓄積されつつあった。申請者らのスピン三重項超伝導の新しいメカニズムの提案には、従って、非常に大きな学術的意義を持つことが認識され、更なる研究の展開が大いに期待された。

一方で、申請者らは十数年以上に渡り、遷移金属酸化物や分子性導体といった強相関電子系を対象に、密度行列繰り込み群 (DMRG) などの最新の計算物理学的手法を用いて、異方的超伝導など特異な電子状態の発現機構の解明に関する研究を推進してきた。これを今後も更に発展させることが求められている。

本研究計画は、こういった研究を背景にした申請者らの研究計画の全体構想の中に位置付けられている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、密度行列繰り込み群 (DMRG) 等の数値的手法を駆使することにより、異方的三角格子系を含む特殊な低次元格子構造を持つ種々の強相関電子系物質を対象に、リング交換機構によるスピン三重項超伝導の微視理論の更なる展開を行うことである。

申請する研究期間の3年間で、次の3点を明らかにすることを目標にした。

- (1) ジグザグ梯子格子ハバード模型の低エネルギー電子状態の解明
- (2) 2次元異方的三角格子系におけるスピン三重項超伝導の発現機構の実証
- (3) 現実の物質群で観測される超伝導と理論との対応付け

これら3点の究明は、上記の研究目的達成にとって必要十分である。

3. 研究の方法

本研究は、研究分担者・連携研究者を持たない個人研究である。研究経費は、データ処理の高速化のため若干の設備投資 (小型計算機)、国内および外国旅費、若干の消耗品費に使用された。

本研究では、主に次の2種類の数値計算法を問題に応じて使い分けることにより、研究成果を得ている。(i) 数値的厳密対角化法: 基本的にはランチョス法による大規模行列の対角化であり、モデル・ハミルトニアンに対する少数有限格子上の電子状態、特に基底状態および種々の静的および動的相関関数を厳密に求めることができるものである。(ii) DMRG 法: S. R. White により提案された密度行列繰り込み群 (density-matrix renormalization group, DMRG) の考えを用

いた数値計算手法であり、種々の1次元量子系の研究に威力を発揮する。本研究では、有限系・無限系のアルゴリズム、周期境界条件を課した有限系のアルゴリズム、さらには、動力学量を計算する方法や有限温度のアルゴリズムが、幾つかの準1次元格子のハバード模型、 $t-J$ 模型に対し利用された。

海外の共同研究者が本研究に参画した。特に、西本理博士 (Max-Planck-Institute, Dresden) は DMRG 研究の最先端で活躍しており、その知識は本研究にとって極めて有用であった。DMRG のプログラム開発・改良、および数値計算を遂行することで、本研究計画に参画した。また、江島聡博士 (Univ. Marburg) および白川知功博士 (Univ. Hannover) の貢献も、本研究計画の推進に欠くことのできないものであった。彼らとは、電子メールやウェブ電話により情報の頻繁な交流を行った。

平成18年度~20年度において、次の各課題を順次あるいは同時並行的に実行に移すことにより、本研究計画を遂行した。

- (1) ジグザグ梯子ハバード模型の基底電子相図と低エネルギー励起構造の解明
- (2) フェロ結合した2鎖ハバード模型におけるスピン三重項超伝導の研究
- (3) 擬1次元及び2次元分子性導体に固有の有効強相関電子模型の導出
- (4) 遷移金属酸化物系におけるスピン三重項超伝導の可能性の探索
- (5) リング交換機構が働く三角格子関連の2次元系に理論を拡張
- (6) 関連する新物質への理論の展開
- (7) 成果の公表
- (8) 年度ごとの研究のまとめと次年度以降の方向性の確認
- (9) 3年間の研究成果のまとめと研究全体の総括および新規プロジェクトの立案

4. 研究成果

本研究の研究期間における主な研究成果は下記の(1)~(6)である。

(1) 2本鎖ジグザグボンダハバード梯子模型における電荷およびスピン励起スペクトル

ベッチガード塩 (TMTSF)₂X の超伝導について、我々はリング交換機構によって生じる鎖間の強磁性的結合がスピン三重項超伝導を生み出すという新規な発現機構の可能性を提案してきたが、これに関して、対応する2本鎖ジグザグボンダハバード模型のスピンおよび電荷励起スペクトルを動的密度行列繰り込み群の方法 (DDMRG) を用いて計算した。計算結果から、これら励起スペクトルが、基本的には「独立な2本鎖」に対する励起スペ

クトルと類似のものと解釈できること示した。しかしながら、弱い鎖間のホッピング積分が、短距離のスピンの電荷相関に決定的な役割を果たしていることも明らかにした。すなわちこれは、鎖間の最近接サイト間に強磁性的なスピン相関をもたらす、同時にスピン三重項ペアリング相関を増強する。そしてその証拠が、計算されたスピンおよび電荷励起スペクトルの低エネルギー部分に明確に見て取れることを示した。

(2) 2本鎖ジグザグボンドハバード梯子模型の広域基底電子相図

密度行列繰り込み群の方法とハートリーフック近似を用いて、最近接と次近接サイト間にホッピングがある1次元ハバード模型（ジグザグ梯子ハバード模型）の電子状態を研究した。スピンギャップ、全スピン量子数、朝永ラッティンジャー流体パラメータ等を詳しく計算し、この模型の全フィリングと幅広いパラメータ空間に渡る基底電子相図を描いた。フェルミ点が4個ある領域では、弱結合理論はスピンギャップがある流体を予言するが、強結合領域においては、フィリングとパラメータ空間中のかなり広い領域でスピンギャップが消えることが見出された。また、このような簡単な模型であるにもかかわらず、強結合領域では、常磁性金属相、スピンギャップ流体相、シングレットおよびトリプレット超伝導相、完全分極した強磁性相など極めて多彩な電子相が現われることが明らかとなった。

(3) 3本鎖ジグザグボンドハバード模型におけるスピン三重項 f 波超伝導

ベッチガード塩 (TMTSF)₂X の超伝導について、我々はリング交換機構によって生じる鎖間の強磁性的結合がスピン三重項超伝導を生み出すという新規な発現機構の可能性を提案してきたが、これに関して、クーパーペアの波動関数が f 波対称性を持つ可能性を提案した。すなわち、1次元三角格子（鎖間ジグザグボンドで結合した3本鎖）上で定義されたクォーターフィリングのハバード模型の基底状態を DMRG の方法を用いて研究し、我々が提案したリング交換機構によるスピン三重項超伝導のクーパー対波動関数の対称性は、これまでの2鎖ハバード模型の計算を3鎖系に拡張して対相関関数を計算することにより、クーパーペア波動関数が60度回転毎に符号を変える対称性を持つことを示した。この系の超伝導は、従って f 波ということになる。2次元系に拡張すれば、擬1次元的なフェルミ面上に4個の節を持ったものとなり、長距離クーロン斥力を仮定したハバード模型の FLEX 近似等による理論計算と同様の結果を与える。リング交換機構は、

鎖間の最近接サイト間に強磁性的なスピン相関の存在を予言するので、NMR 等の実験の詳細な解析でこれを検証することができる。隣接するスピン密度波相が強い電荷揺らぎを有するという実験事実は、サイト間クーロン斥力の重要性を示唆するが、少なくとも鎖内のクーロン斥力は、リング交換によるフェロ結合および超伝導相関を大きく抑制することはない。今後は、鎖間の斥力相互作用の効果も含めた定量的な検討が必要である。

(4) 強磁性交換相互作用で結合した2本のハバード鎖模型における超伝導

ベッチガード塩 (TMTSF)₂X の超伝導について我々は、リング交換機構による鎖間の強磁性的結合がスピン三重項超伝導を生み出すという新規な発現機構の可能性を提案してきたが、これに関して最近、より簡単な模型である強磁性交換相互作用で結合した1次元ハバード鎖系の超伝導の研究を行った。すなわち、上記のリング交換機構による鎖間強磁性結合の効果を、ハイゼンベルグ型の強磁性交換相互作用 J として「手で」入れた、2鎖ハバード模型の電子状態と超伝導を、弱結合理論による解析的手法、および密度行列繰り込み群 (DMRG) と数値的対角化の方法を用いて考察した。リング交換による強磁性結合とは異なり、結合の大きさを手で制御できるので、計算は著しく簡単化される。鎖間は、通常の梯子的なボンドでつなぐ。梯子的ボンドの2鎖系の場合、鎖間の強磁性交換相互作用をフント結合とみなせば、この模型は軌道縮退系の模型とみなすこともできる。この観点から相図が得られており、クォーターフィリングにおいては鎖間に斥力が働かない限り、強磁性状態になることはない。また、この模型はハーフフィリングにおいて、ハルデンギャップ系になる事が知られている。ハーフフィリング近傍では、ハルデンギャップの影響が残り、梯子間でペアを組んだ超伝導相関が支配的となる。また、フント結合が十分大きいときには系は強磁性金属となり、スピン三重項超伝導が支配的となる。弱結合理論と厳密対角化、密度行列繰り込み群を用いて電子状態を詳しく調べた結果、電子数の少ない領域においては強磁性金属が実現し、鎖間で三重項のペアを組んだ超伝導が支配的となることを示した。また、電子数の多い領域においては、オンサイトのクーロン斥力と強磁性結合がそれほど大きくなければ強磁性金属にはならず、基底状態の全スピンは0になる。この時、スピンギャップの開いた一重項の超伝導が支配的になっていることを示した。すなわち、強磁性的結合があるからといってそれほど簡単にはスピン三重項超伝導は発現しないということが本研究から明

らかになった。

(5) Θ -(ET)₂X 塩における異なる電荷揺らぎの共存

Θ -(ET)₂X 塩において観測される3倍周期の電荷揺らぎが注目を集めている。これを背景に、本研究では、異方的三角格子上で定義された、サイト間クーロン斥力のある拡張ハバード模型のクォータフィリングでの基底状態と低エネルギー励起を調べる。この研究は、リング交換機構による超伝導が、サイト間斥力の効果でどの程度抑制されるかを検討することにもつながる。基底状態の計算に対して密度行列繰り込み群 (DMRG) を、また光学伝導度などの励起スペクトルの計算に対して数値的厳密対角化の方法や動的密度行列繰り込み群 (DDMRG) の方法を用いた。オンサイト斥力とサイト間斥力によって引き起こされる電化秩序化 (charge ordering, CO) に焦点を当てる。ホール密度と二重占有の計算結果に基づいて、diagonal stripe, vertical stripe, three-fold CO という三種類の電荷秩序構造を含む、パラメータ空間での基底状態の電子相図を決定した。また、あるパラメータ領域における diagonal stripe と three-fold CO の電荷揺らぎの共存の可能性を、動的密度相関関数の結果から示唆した。さらに、各相における光学伝導度スペクトルの特徴について議論した。スピン三重項超伝導相関は、この模型では強く抑制されることが分かった。

(6) グラファイト用に吸着した2次元ヘリウム3の異常量子物性

グラファイト表面上で実現する、零点空孔を導入した2次元 ³He 原子一層系や、整合固体 ³He 原子一層上にさらに ³He 原子を吸着させた ³He 二層系が、新たな2次元強相関フェルミオン系として注目を集めている。本研究では、本研究計画のひとつの発展として、この2次元 ³He 原子系が発現する特異な量子物性について理論的研究を展開した。強相関電子系の研究で培った研究手法を新たに2次元 ³He 原子系に適用することで、研究を総合的かつ迅速に遂行することができた。すなわち、多体リング交換項を含んだ三角格子 t - J 模型に対し、厳密対角化法を用いて、零点空孔を導入した2次元 ³He 原子系が示す異常物性の研究を進めた。この研究は、2次元強相関フェルミオン系における異常量子物性の発現機構という普遍的な物理概念の構築に向けて、大きな貢献を成すものである。具体的には、零点空孔を導入した三角格子上の ³He 原子系が示す特異な量子物性の解明を目指して、多体リング交換項を含んだ三角格子 t - J 模型に対し厳密対角化法を適用し、比熱の温度依存性やスピンと密度の励起スペク

トル、1粒子励起スペクトルの計算を行った。これにより、実験で観測される比熱の温度依存性の二重ピーク構造を再現し、各ピークの起源に関し理論的考察を進めた。また、1粒子励起スペクトルの計算結果から、スピン励起の衣を着た準粒子状態の出現を予言した。

得られた成果の国内外における位置付けとインパクト

新しい超伝導発現機構の研究は、超伝導研究の歴史を紐解けば五万と存在するが、強磁性発現のためのリング交換機構をスピン三重項超伝導の発現に結びつけた研究は、申請者らの提案以外には、これまで存在しなかった。また、本研究で提案するスピン三重項超伝導の新しい機構は、従来の FLEX 近似等の弱結合理論では不可能な、強相関極限からの非摂動論的アプローチからのみ得られる機構であることから、物性物理学における新概念の創出という大きな意義を有する。

ジグザグ梯子格子ハバード模型の電子状態の理論的研究は、これまで幾つか行われている。例えば、弱結合領域に対するボソン化法による研究、DMRG による数値的研究、サイト間斥力を入れた模型における電荷秩序の融解などである。しかし、ジグザグ梯子格子ハバード模型の強相関領域は、普通の梯子系とは異なり解析が極めて難しく、多くの点で未だよく分かっていない。すなわち、この模型の解析には、最新の高精度の数値的手法を駆使することが必要不可欠である。我々はこのため、非摂動論的手法として、世界最先端のレベルにある DMRG の方法を駆使した。

本研究は、2次元異方的三角格子系に対するリング交換機構によるスピン三重項超伝導の研究という、これまでなされてこなかった研究を遂行し、重要な成果を得たものである。すなわち、リング交換機構に基づいたスピン三重項超伝導発現機構の世界で最初の研究である。

今後の展望

本研究計画の3年間の成果から十分に到達できなかった課題に関して、今後の展望を下記に示す。

(1) リング交換機構によるスピン三重項超伝導の有効平均場理論の構築。すなわち、リング交換機構による引力相互作用を有効模型に置き換える方法を、ヘリウムIIIの超流動理論を参照しつつ考案する。有効模型に対する平均場理論を構築し、DMRG 等による数値実験の結果を再現する解析的理論を提案する。また、有効平均場理論の適用限界について、揺らぎの効果の重要性という観点から検討す

る。

(2) 遷移金属酸化物系におけるスピン三重項超伝導の可能性の探索。 すなわち、擬1次元系ないし2次元系物質の異方的超伝導に関して実験事実の系統的整理を行う。最近発見されたCuO二重鎖系 $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-8}$ 等の超伝導に関して調査を進め、有効電子模型を導出する。さらに、三角格子関連の低次元格子構造を持つ種々の物質系(CoO系超伝導体を含む)を調査し、有効電子模型を導出する。

(3) 関連する新物質への理論の展開。 すなわち、スピン三重項超伝導・強磁性・異方的三角格子などといったキーワードで特徴付けられる強相関電子系(遷移金属酸化物系、分子性導体系を含む)に常に注目し、理論的観点から更なる展開をはかる。

(4) リング交換機構によるスピン三重項超伝導状態の物性の特徴の抽出。 すなわち、リング交換機構が働いた金属状態でのスピン三重項超伝導以外の特徴を抽出し、実験による理論の検証の方法を提案する。また、スピン密度波状態と超伝導状態の競合について詳しく検討する。また、電荷秩序化の効果が超伝導に与える影響について詳しく検討する。このため、動的DMRGを駆使し、スピン・電荷自由度との結合の効果を定量化する。

(5) 格子(フォノン)の自由度の導入。 格子の自由度がリング交換機構によるスピン三重項超伝導に与える影響を検討する。

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16件)

- (1) Spin and Density Excitations in the Triangular-Lattice t - J Model with Multiple-Spin Exchange Interactions: ^3He on Graphite, K. Seki, T. Shirakawa, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **79**, 024303/1-8 (2009). (査読あり)
- (2) Spin and Mass Excitations in the Doped Multiple Spin Exchange Model on a Triangular Lattice: ^3He on Graphite, K. Seki, T. Shirakawa, and Y. Ohta, J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 032095/1-4 (2009). (査読あり)
- (3) Coexistence of Distinct Charge Fluctuations in θ -(BEDT-TTF) $_2$ X, S. Nishimoto, M. Shingai, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **78**, 035113/1-9 (2008).

(査読あり)

- (4) Charge and Spin Excitation Spectra in the One-Dimensional Hubbard Model with Next-Nearest-Neighbor Hopping, S. Nishimoto, T. Shirakawa, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **77**, 115102/1-6 (2008). (査読あり)
- (5) Phase Diagram of the One-Dimensional Hubbard Model with Next-Nearest-Neighbor Hopping, S. Nishimoto, K. Sano, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **77**, 085119/1-10 (2008). (査読あり)
- (6) Superconductivity in a Model of Two Hubbard Chains Coupled with Ferromagnetic Exchange Interaction, T. Shirakawa, S. Nishimoto, and Y. Ohta, Phys. Rev. B **77**, 224510/1-10 (2008). (査読あり)
- (7) Variational Monte Carlo Study on Superconductivity in the Anisotropic Triangular-Lattice Hubbard Models, Y. Kataoka and Y. Ohta, J. Phys. Chem. Solids **69**, 3330-3333 (2008). (査読あり)
- (8) Numerical Study on the Anisotropic Triangular-Lattice Hubbard Model at Quarter Filling: Charge Fluctuations with Three-Fold Periodicity, M. Shingai, S. Nishimoto, and Y. Ohta, J. Phys. Chem. Solids **69**, 3382-3384 (2008). (査読あり)
- (9) Phase Separation, Spin Polarization, and Triplet Superconductivity in the Hubbard Chains Coupled with Ferromagnetic Zigzag Bonds, S. Nishimoto, T. Shirakawa, and Y. Ohta, J. Mag. Mag. Mater. **310**, 669-671 (2007). (査読あり)
- (10) Spin-Triplet f -wave Superconductivity in One-Dimensional Triangular-Lattice Hubbard Models, Y. Ohta, T. Shirakawa, and S. Nishimoto, J. Mag. Mag. Mater. **310**, 578-580 (2007). (査読あり)
- (11) Spin-Triplet Superconductivity in the Double-Chain Hubbard Model with Ferromagnetic Exchange Interaction, T. Shirakawa, Y. Ohta, and S. Nishimoto, J. Mag. Mag. Mater. **310**, 663-665 (2007). (査読あり)
- (12) Spin-Triplet Superconductivity in the Hubbard Chains Coupled with Ferromagnetic Exchange Interaction, S. Nishimoto, T. Shirakawa, and Y. Ohta, Physica C **460-462**, 1059-1060 (2007). (査読あり)
- (13) Spin-Triplet f -Wave Pairing in the

One-Dimensional Triangular-Lattice Hubbard Model: Possible Relevance to Superconductivity in Bechgaard Salts, Y. Ohta, S. Nishimoto, and T. Shirakawa, *Physica C* **460-462**, 246-247 (2007). (査読あり)

- (14) Triplet Superconductivity in a Two-Chain Hubbard Model by the Ring-Exchange Mechanism, T. Shirakawa, S. Nishimoto, and Y. Ohta, AIP Conference Proceedings Series **850**, 625-626 (2006). (査読あり)
- (15) Ring-Exchange Mechanism for Triplet Superconductivity in a Two-Chain Hubbard Model, Y. Ohta, S. Nishimoto, T. Shirakawa, and Y. Yamaguchi, *Physica B* **378-380**, 439-440 (2006). (査読あり)
- (16) Ring-Exchange Mechanism for Triplet Superconductivity in a Two-Chain Hubbard Model: Possible Relevance to Bechgaard Salts, Y. Ohta, S. Nishimoto, T. Shirakawa, and Y. Yamaguchi, *Phys. Rev. B* **72**, 012503/1-4 (2006). (査読あり)

[学会発表] (計8件)

- (1) グラファイト上に吸着した ^3He のスピン及び密度励起: リング交換を含む三角格子 t - J 模型の研究、関和弘、白川知功、太田幸則、日本物理学会第64回年次大会(2009年3月30日、立教大学)。
- (2) Phase Diagram of the One-Dimensional Hubbard Model with Next-Nearest-Neighbor Hopping、西本理、佐野和博、太田幸則、日本物理学会第62回年次大会(2007年9月21日、北海道大学)。
- (3) 異方的三角格子拡張ハバード模型における3倍周期電荷揺らぎと励起スペクトル、白川知功、新貝学、西本理、太田幸則、日本物理学会2007年春季大会(2007年3月19日、鹿児島大学)。
- (4) 変分モンテカルロ法による異方的三角格子ハバード模型の研究、片岡祐己、太田幸則、日本物理学会2007年春季大会(2007年3月19日、鹿児島大学)。
- (5) 三鎖拡張ハバード模型の電荷秩序化と超伝導に関する弱結合理論、中田翔、白川知功、太田幸則、日本物理学会2007年春季大会(2007年3月19日、鹿児島大学)。
- (6) 強磁性相互作用で結合した2鎖ハバード模型の超伝導の理論、白川知功、太田幸則、西本理、日本物理学会2006年秋季大会(2006年9月23日、千葉

大学)。

- (7) 異方的三角格子系における電荷秩序の融解と異常金属相に関する数値的研究、新貝学、白川知功、西本理、太田幸則、日本物理学会2006年秋季大会(2006年9月24日、千葉大学)。
- (8) 変分モンテカルロ法による三鎖ハバード模型の超伝導に関する研究、片岡祐己、太田幸則、日本物理学会2006年秋季大会(2006年9月24日、千葉大学)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

太田 幸則 (OHTA YUKINORI)
千葉大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号: 70168954

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし