

第一原理計算と量子多体計算による多バンド系の電子状態と超伝導

First-principles and quantum many-body calculations for electronic states and superconductivity in the multi-band systems

大野 義章
新潟大学理学部

1. 研究目的

本申請課題では、これまで申請者が鉄系超伝導などの研究を通して構築してきた多バンド系超伝導体に対する理論手法、即ち「物質のバンド構造を正確に記述する第一原理計算に基づき低エネルギー多バンド有効モデルを導出し、電子間相互作用や電子格子相互作用による強相関・強結合効果を十分に考慮できる量子多体計算を適用する計算手法」をさらに軌道（バンド）数の多い場合に発展させる。具体的には、① 重い電子 Pr1-2-20 系における四極子秩序とその揺らぎによる超伝導機構、② タングステンブロンズ A_xWO_3 (A はアルカリ金属) における Jahn-Teller フォノンと結合した軌道揺らぎによる超伝導転移温度 T_c の増強効果および希薄なドーピング領域における高温超伝導の発現機構、③ 励起子相候補物質 Ta_2NiSe_5 の常圧励起子相における強相関効果および高压下の新規励起子相と励起子揺らぎが生み出す異常物性や新規超伝導、④ Al-Zn-Mg 準結晶およびその近似結晶において始めて発見された超伝導の機構とその電子状態を明らかにする。

2. 研究成果の内容

① 重い電子系の中でも最近最も活発に研究されている Pr1-2-20 系に発展させて、その四極子秩序を調べた。まず、第一原理計算 (WIEN2k) のバンド分散を良く再現する 196 バンドの有効モデルを構築した。次に、この複雑なモデルに基づいて、四極子 (軌道) 感受率を求めた。さらに、その四極子揺らぎを媒介とした Pr の 4f 電子間に働く RKKY 相互作用を導出し、その空間・波数依存性から、どのような四極子秩序が各物質で実現するかを議論した。その結果、 $PrTi_2Al_{20}$ では強四極子秩序、 PrV_2Al_{20} では反強四極子秩序になるという実験を説明する結果を得た (学術論文[4]、学会発表 [3,18,22])。

② タングステンブロンズ A_xWO_3 に対して Quantum ESPRESSO を用いて第一原理計算を行い、超伝導転移温度 T_c の x 依存性を調べた。得られた T_c は、 x の減少とともに増大する振舞いは実験とコンシステントであるが、実験と比べてその値は小さく、また、希薄なドーピング領域における High- T_c も得られない。これは、通常の BCS 理論の範囲では、特に低ドーピング領域の実験の T_c が説明できないことを示している。そこで、第一原理計算から導出した t_{2g} -3 軌道有効モデルに基づいて、Jahn-Teller フォノンとの電子

フォノン相互作用を RPA により考慮した結果、構造相転移点に向けて増大する軌道揺らぎの効果により T_c が増強され、High- T_c も説明可能であることが示された（学術論文[2]、学会発表[2,11,15,19]）。

③ 高圧下の半金属 Ta_2NiSe_5 の結晶パラメータを用いて第一原理バンド計算を行い、最局在 Wannier 関数を用いて、Ta の $5d$ 軌道、Ni の $3d$ 軌道、Se の $4p$ 軌道からなる 60 バンド $d-d-p$ 模型を構築し、高圧下の Ta_2NiSe_5 の励起子秩序を調べて実験との比較検討を行った。また、従来の平均場近似では無視されていた電子相関効果が十分に考慮できる動的平均場理論（DMFT）に基づき、励起子相およびその近傍の正常状態を調べた。その結果、バンド間相互作用が大きな領域における励起子相の周辺において、準粒子繰り込み因子 Z が非常に小さく、絶縁体に近い強相関電子状態が実現することが分かった（学術論文[1,3]、学会発表[1,4,16,17,21,24]）。

④ Al-Zn-Mg 近似結晶の電子状態を、1/1 近似結晶の場合と 2/1 近似結晶の場合に、第一原理計算 OpenMX を用いてそれぞれ調べた。1/1 近似結晶の状態密度は、先行研究と同様に 1eV のオーダーの広い擬ギャップを示すが、フェルミ準位近傍を詳細に見ると 0.1eV 程度の小さなピークをもつ。一方、準結晶により近い構造をもつ 2/1 近似結晶はフェルミ準位近傍で 0.1eV 程度の鋭い擬ギャップを示し、電気抵抗の温度依存性とも整合することが分かった（学術論文[5]、学会発表[5,8,9,12,20]）。

3. 学際共同利用が果たした役割と意義

Pr1-2-20 系の 196 バンド模型や Ta_2NiSe_5 の 60 バンド模型、さらに、Al-Zn-Mg 近似結晶のような複雑な多バンド系に対する量子多体計算は、学際共同利用によるスーパーコンピュータによりその計算が可能となった。物質の構造を正確に記述する複雑な多バンド系に基づく計算により、従来は困難であった実験との定量的な比較が可能となった。

4. 今後の展望

今年度、 A_xWO_3 に対して行ったように、Quantum ESPRESSO を用いた T_c の計算は、それを実験と比較することにより、その系の超伝導が BCS 理論の範囲で説明可能かどうかを議論する上でも重要である。既に、高温超伝導が観測されている A_xWO_3 表面やナノワイヤ、Al-Zn-Mg の 1/1 および 2/1 近似結晶の超伝導が BCS 理論の範囲内で説明可能かを議論するため、Quantum ESPRESSO による T_c の計算を進めつつあるが、バンド構造が非常に複雑であるため、現時点では未だ結果が得られていない。今後は、他の計算手法なども含めて検討を進めていく。

5. 成果発表

(1) 学術論文

1. FFLO Superconductivity Mediated by Excitonic Fluctuation in Semimetallic Ta₂NiSe₅, Takemi Yamada, Kaoru Domon, and Yoshiaki Ōno, Journal of the Physical Society of Japan 88, 064701-1~11 (2019).
2. First-Principles Study and Orbital-Fluctuation Effect on the Superconductivity in Tungsten Bronze A_xWO₃, Takuya Sekikawa, Rai Watabe, Jun Ishizuka, Yoshihiro Nitta, Kazuhiro Sano and Yoshiaki Ōno, JPS Conference Proceedings 30, 011043-1~5 (2020).
3. Dynamical Mean-Field Study of Excitonic Phase in the Spinless Two-Band Hubbard Model for Electron-Hole System, Kento Sasaki, Takemi Yamada, Kaoru Domon and Yoshiaki Ōno, JPS Conference Proceedings 30, 011070-1~4 (2020).
4. RKKY Interaction and Quadrupole Order in PrT₂Al₂₀ (T=Ti, V) Based on Effective 196 Orbital Model Extracted from First-Principles Calculation, Yuto Iizuka, Takemi Yamada, Katsurou Hanzawa and Yoshiaki Ōno, JPS Conference Proceedings 30, 011152-1~6 (2020).
5. Electronic states of Al-Mg-Zn quasicrystal and its approximant based on the first-principles calculations, Masaki Saito, Takuya Sekikawa, Yoshiaki Ōno, Physica Status Solidi B, in press.

(2) 学会発表

1. Theory of excitonic order and superconductivity in Ta₂NiSe₅, Kaoru Domon, Takemi Yamada, and Yoshiaki Ōno, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES '19), 2019.9.23-9.28, Okayama, Japan
2. First-Principles Study and Orbital-Fluctuation Effect on the Superconductivity in Tungsten Bronze A_xWO₃, Takuya Sekikawa, Rai Watabe, Jun Ishizuka, Hiroyuki Kawai, Yoshihiro Nitta, Kazuhiro Sano, and Yoshiaki Ōno, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES '19), 2019.9.23-9.28, Okayama, Japan
3. RKKY Interaction and Quadrupole Order in PrT₂Al₂₀ (T=Ti, V) Based on Effective 196 Orbital Model Extracted from First-Principles Calculation, Yuto Iizuka, Takemi Yamada, Katsurou Hanzawa, and Yoshiaki Ōno, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES '19), 2019.9.23-9.28, Okayama, Japan
4. Dynamical Mean-Field Study of Excitonic Phases in the Multi-Band Hubbard Models for Electron-Hole Systems, Kento Sasaki, Takemi Yamada, Kaoru Domon, Yoshiaki Ōno, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES '19), 2019.9.23-9.28, Okayama, Japan

5. First-principles Study of Superconducting Al-Zn-Mg Quasi-crystals: Comparison between 1/1 and 2/1 Approximants, Masaki Saito, Takuya Sekikawa, Yoshiaki Ōno, The 22nd Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (ASIAN-22), 2019.10.28-10.30, Osaka, Japan
6. First-Principles Calculation of DNA Energy Band Responsible for Superconductivity, Takuya Sekikawa, Hiroyuki Kawai and Yoshiaki Ōno, The 22nd Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (ASIAN-22), 2019.10.28-10.30, Osaka, Japan
7. Superconductivity in DNA and its sequence dependence based on first principles calculations and Tomonaga-Luttinger theory, Takuya Sekikawa, Hiroyuki Kawai, Yoshiaki Ōno, 11th symposium on Discovery, Fusion, Creation of New Knowledge by Multidisciplinary Computational Sciences, 2019.10.15, Tsukuba, Japan
8. First-principles calculations for electronic states of Al-Zn-Mg quasicrystal and its approximant, Masaki Saito, Takuya Sekikawa, Yoshiaki Ōno, 11th symposium on Discovery, Fusion, Creation of New Knowledge by Multidisciplinary Computational Sciences, 2019.10.15, Tsukuba, Japan
9. Electronic states of Al-Mg-Zn quasicrystal and its approximant based on the first-principles calculations, Masaki Saito, Takuya Sekikawa, Yoshiaki Ōno, 14th International Conference on the Structure of Non-Crystalline Materials (NCM14), 2019.11.3-11.8, Kobe, Japan
10. A Specific Band Dispersion of DNA Responsible for Superconductivity Based on First-Principles Calculation, Takuya Sekikawa, Hiroyuki Kawai, Yoshiaki Ōno, The 1st Asian International Conference in Science, 2019.11.13-11.15, Taoyuan City, Taiwan
11. First-Principles and RPA studies of Electronic states and Superconductivity in Tungsten Bronze A_xWO_3 , Takuya Sekikawa, Rai Watabe, Jun Ishizuka, Yoshihiro Nitta, Kazuhiro Sano, Yoshiaki Ōno, The 1st Asian International Conference in Science, 2019.11.13-11.15, Taoyuan City, Taiwan
12. 第一原理計算による Al-Zn-Mg 準結晶および近似結晶の電子状態, 齋藤雅樹, 関川卓也, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
13. 第一原理計算による DNA のエネルギーバンドの塩基配列依存性と超伝導, 関川卓也, 川井弘之, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
14. Modified Becke-Johnson 交換ポテンシャルを用いた FeSe の第一原理バンド計算, 今野元, 関川卓也, 飯塚優人, 山田武見, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)

15. 第一原理計算に基づく A_xWO_3 の有効多バンドモデルにおける軌道揺らぎと超伝導, 関川卓也, 渡部来, 石塚淳, 新田祥大, 佐野和大, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
16. 第一原理計算に基づく Ta_2NiSe_5 の圧力下における電子状態と励起子秩序, 土門薫, 山田武見, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
17. 動的平均場理論による電子-正孔 2 バンドハバードモデルの励起子状態 III, 佐々木健人, 山田武見, 土門薫, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
18. Pr1-2-20 系の四極子秩序と超伝導: 第一原理計算に基づく 196 軌道有効モデルによる解析, 飯塚優人, 山田武見, 半澤克郎, 大野義章, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日~13 日, 岐阜大学 (柳戸キャンパス)
19. 第一原理計算による WO_3 ナノワイヤの電子状態と電気伝導, 関川卓也, 長島一樹, Guozhu Zhang, 広瀬雄介, 摂待力生, 柳田剛, 大野義章, 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 2020 年 3 月 12 日~15 日, 上智大学 (四谷キャンパス)
20. 第一原理計算による Al-Zn-Mg 準結晶および近似結晶の電子状態 II, 齋藤雅樹, 関川卓也, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)
21. 動的平均場理論による電子-正孔スピンレス 2 バンドハバードモデルの励起子状態と金属絶縁体転移, 佐々木健人, 山田武見, 土門薫, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)
22. Pr1-2-20 系の四極子秩序と超伝導: 第一原理計算に基づく 196 軌道有効モデルによる解析 II, 飯塚優人, 山田武見, 半澤克郎, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)
23. 動的平均場理論による多バンド・ハバードモデルの超伝導感受率, 猪熊祐輔, 山田武見, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)
24. FeSe における励起子秩序の可能性とフェルミ面, 今野元, 土門薫, 山田武見, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)
25. 第一原理計算と朝永ラッティンジャー液体論による DNA のエネルギーバンドの塩基配列依存性と超伝導, 関川卓也, 川井弘之, 大野義章, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日~19 日, 名古屋大学 (東山キャンパス)

(3) その他

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース*	
		当初配分	追加配分
Cygnus	○	6000	0
Oakforest-PACS	○	75000	0
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			