

第一原理計算と量子多体計算による様々な多バンド系の 電子状態と超伝導

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

大野 義章

新潟大学理学部

1. 研究目的

複雑に絡み合ったエネルギーバンドや多数のフェルミ面をもつ多バンド系では、単一バンド系には見られない非自明な電子状態や新規超伝導の可能性が期待される。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 タングステンブロンズ Na_xWO_3 の超伝導、② 準結晶 Al-Zn-Mg 系の電子状態と超伝導、③ 流体水銀の金属絶縁体転移について明らかにする。

2. 研究成果の内容

① 第一原理計算コード Quantum ESPRESSO を用いて Na_xWO_3 の電子状態を調べ、フォノンを媒介とする超伝導転移温度 T_c を McMillan の式を用いて求めた。その際、電子状態や電子フォノン結合のドーピング x 依存性に加えて、従来は考慮されていなかったプラズモン効果によるクーロン斥力の効果 μ^* の値の x 依存性も考慮した。フォノン機構による T_c の評価に用いられる McMillan の式では、クーロン斥力の効果 μ^* の値は通常は金属では通例 0.1 程度の定数とすることが多いが、 Na_xWO_3 に対して $\mu^*=0.1$ として求めた T_c は、先行研究と同様に実験値の 10 分の 1 以下の小さな値となった。しかし、 Na_xWO_3 はユニットセルが大きく、電子数密度が通常金属の 10% 程度以下になるため、長距離クーロン相互作用によるプラズマ振動の効果が無視できず、 μ^* は実効的により小さな値（-0.05 程度の x に依存する変数）としなければならない。この効果を考慮すると、実験の T_c の絶対値に加えて、指数関数的な T_c の x 依存性もよく再現された。

② 第一原理計算コード OpenMX を用いて Al-Zn-Mg 系の 1/1 および 2/1 近似結晶の電子状態を調べた。特に、準結晶に近い局所構造をもつ 2/1 近似結晶の第一原理計算は本研究が初めてである。また、1/1 近似結晶については先行研究があったが、本研究では組成比依存性を詳細に調べ、ボルツマン方程式を用いて電気抵抗を求めて実験との比較を行った。Al-Zn-Mg の 1/1 近似結晶ではフェルミ準位近傍に O(1eV) の擬ギャップが現れる一方、2/1 近似結晶では O(0.1eV) という幅の狭い擬ギャップが生じるとともに、鋭い状態密度の落ち込みを示すことが分かった。フェルミ準位における状態密度から求めた電子比熱係数 γ の値は、1/1 および 2/1 近似結晶ともに実験と定量的によく一致する。また、得られたエネルギーバンドに基づいてボルツマン方程式を用いて計算

した電気抵抗の結果は、1/1 および 2/1 近似結晶の実験による電気抵抗の違いを良く再現するとともに、両者の間の超伝導転移温度 T_c の違いについても概ね説明された。さらに、1/1 近似結晶において、様々な Al 組成比依存性を調べ、実験の電子比熱係数や電気抵抗の組成比依存性とおおむねコンシステントな結果を得た。

③ 第一原理分子動力学コード CP2K を用いて流体水銀の電子状態を調べた。経験的に、遍歴、局在、臨界状態のスケーリング挙動が電子軌道のマルチフラクタルメジャー α の原子数依存性に反映されていることを踏まえて、様々な異なる原子数でのシミュレーションを行い、遍歴局在転移を議論した。流体水銀のエネルギー準位が -0.2eV 周辺の電子軌道について、流体水銀の密度の減少に伴って、 α の原子数依存性が反転した。また、密度 8.26g cm^{-3} のものはフェルミ準位に近い軌道と離れた軌道の間で α の原子数依存性の反転がみられ、遍歴局在転移の存在を明確に示す結果が得られた。

3. 学際共同利用が果たした役割と意義

本研究が対象とする複雑な多バンド系では、第一原理計算は物質の複雑な構造を正確に記述する唯一の方法であり大規模計算が必要不可欠となる。大規模計算機を有しない大学の研究者にとって、学際共同利用はこのような大規模計算を実現するための貴重なプログラムである。また、プロジェクトメンバーの博士課程および修士課程の大学院生にとっても、学際共同利用によって学位論文の主要な内容となる研究成果をあげることができた。

4. 今後の展望

① バルクの $A_x\text{WO}_3$ のドーピング量 $x=0.15\sim 0.3$ における T_c は、本研究のフォノン+プラズモンの機構でよく説明されたが、さらに希薄 ($x\sim 0.05$) にドーピングされた WO_3 の表面で観測された T_c が 91K ($A=\text{Na}$) や 120K ($A=\text{H}$) の高温超伝導は、その機構では説明不可能である。 $x\sim 0.05$ では Orthorhombic から Monoclinic への構造相転移が起こるため、その相転移点近傍で発散的に増大する軌道揺らぎの効果が High- T_c を導く可能性が期待される。そこで、鉄系超伝導体の研究を通して構築された多バンド系超伝導の理論手法を適用し、この系における高温超伝導の議論を進めつつある。

② Al-Zn-Mg 系の超伝導がフォノン機構で説明可能かを調べるため、 Na_xWO_3 と同様に Quantum ESPRESSO を適用したが、ユニットセル内の原子数が膨大であるため、計算が実行できなかった。今後は、別の計算コードを用いることや、フェルミ準位近傍の状態に制限するなどの対処方法を検討する必要がある。

③ 流体水銀の密度に対する電子軌道の α の挙動は、一様分布に従うランダムポテンシャル下のポテンシャル強度に対するものと似たような形を示し、流体水銀では密度が遍歴局在転移の制御変数となることが確認された。その結果、過去の第一原理計算で考えられていたよりも比較的高密度側に転移点がみられることが示されたが、より明確な結論を得るためには、さらに原子数の大きなシミュレーションが必要となる。

5. 成果発表

(1) 学術論文

1. Transition Temperature of Superconductivity in Sodium Tungsten Bronze –Theoretical Study Based on First-principles Calculations – : Kazuhiro Sano, Yoshihiro Nitta and Yoshiaki Ōno, *Journal of the Physical Society of Japan* 89, 113704/1-5 (2020)
2. Electronic states of Al-Mg-Zn quasicrystal and its approximant based on the first-principles calculations: Masaki Saito, Takuya Sekikawa and Yoshiaki Ōno, *Physica Status Solidi B* 257, 2000108/1-4 (2020)
3. A study of extended-to-Localized transition of electronic states of fluid mercury around the metal-to-insulator transition region using the framework of multifractal analysis: K. Kobayashi, T. Sekikawa and K. Maruyama, *Journal of Non-Crystalline Solids* 553, 120468/1-8 (2021)
4. $1/f^2$ spectra of decoherence noise on ^{75}As nuclear spins in bulk GaAs: Susumu Sasaki, Keisuke Matsumoto, Takanori Miura, Kohsuke Ikeda, Masahiro Sakai, Tatsuro Yuge, Takuya Sekikawa, Masaki Saito, Yoshiro Hirayama, *Scientific Reports*, 10:10674/1-9 (2020)

(2) 学会発表

1. 第一原理計算による Al-Zn-Mg 近似結晶の電子状態と輸送係数: 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開催, 齋藤雅樹, 関川卓也, 大野義章
2. 第一原理計算に基づく SmS の反強磁性相における電子状態: 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開催, 関川卓也, 大野義章
3. 第一原理計算に基づく WTe_2 の巨大磁気抵抗効果: 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開催, 長谷川巧, 関川卓也, 中村康晴, 大野義章
4. 動的平均場理論によるハバード模型のスピン一重項と三重項の超伝導感受率: 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開催, 猪熊祐輔, 山田武見, 大野義章
5. 有効 196 軌道模型に基づく $\text{PrT}_2\text{Al}_{20}$ (T=Ti, V) の多極子揺らぎと超伝導, 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開, 飯塚優人, 山田武見, 半澤克郎, 大野義章
6. 第一原理計算による WO_3 ナノワイヤの電気伝導と超伝導の検討, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 2020 年 9 月 8 日~11 日 オンライン開催, 関川卓也, 長島一樹, Guozhu Zhang, 広瀬雄介, 撰待力生, 柳田剛, 大野義章
7. Superconductivity in WO_3 nanowire based on first principles calculations and Tomonaga-Luttinger theory, *12th symposium on Discovery, Fusion, Creation of New Knowledge by Multidisciplinary Computational Sciences 2020*, 2020.10.6 Online, Takuya Sekikawa,

Masaki Saito, Kentaro Kobayashi and Yoshiaki Ōno

8. 周期的アンダーソン模型における価数転移と励起子秩序-SmS における可能性, 日本物理学会第 76 回年次大会, 2021 年 3 月 12 日~15 日 オンライン開催, 高野真一, 関川卓也, 大野義章
 9. 第一原理計算による Na_xWO_3 系の超伝導転移温度, 日本物理学会第 76 回年次大, 2021 年 3 月 12 日~15 日 オンライン開催, 佐野和博, 関川卓也, 大野義章
 10. 第一原理計算に基づく超伝導体 A_xWO_3 の表面及びナノワイヤの電子状態, 日本物理学会第 76 回年次大会, 2021 年 3 月 12 日~15 日 オンライン開催, 関川卓也, 川井弘之, 長島一樹, 大野義章
 11. 動的平均場理論によるハバード模型のスピン一重項と三重項の超伝導感受率II 日本物理学会第 76 回年次大会, 2021 年 3 月 12 日~15 日 オンライン開催, 猪熊祐輔, 大野義章
 12. 第一原理計算による WO_3 ナノワイヤの電気伝導と超伝導の検討 II, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 2021 年 3 月 16~19 日 オンライン開催, 関川卓也, 長島一樹, Guozhu Zhang, 柳田剛, 大野義章
- (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	○	6,300	0
Oakforest-PACS	○	160,000	
※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。			