

## 第一原理計算と動的平均場理論による多バンド系の超伝導

### First-principles calculation and dynamical mean-field theory for superconductivity in multi-band systems

大野 義章

新潟大学理学部

#### 1. 研究目的

遷移金属カルコゲナイド  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  は、常圧では  $T_s=328\text{K}$  で斜方晶（半導体）から単斜晶（半導体）へ構造相転移を示す。最近、この転移温度以下で、角度分解光電子分光（ARPES）により価電子バンドの上端の平坦化が観測され、構造相転移の起源として励起子秩序の可能性が提案された。この物質は加圧により半金属化し、構造相転移は抑制され約  $8\text{GPa}$  で消失する。最近、その近傍で超伝導が発見され、励起子秩序に関係した超伝導機構の可能性に注目が集まっている。理論的には、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  に対する第一原理バンド計算を再現する3鎖ハバード模型に基づいて、励起子秩序のBCS型平均場近似により、半導体 ( $T > T_s$ ) から励起子相 ( $T < T_s$ ) への2次相転移として実験結果が良く説明されていた。

我々はこれまでの研究で、上述の3鎖ハバード模型を圧力下の半金属状態において調べ、伝導バンド（2重）と価電子バンド（1重）の縮重度の違いにより必然的に生じる電子と正孔のインバランスにより、励起子が有限の重心運動量を持つFFLO励起子状態が安定化されることを示した。しかし、圧力下で発見された超伝導については調べられていない。そこで本研究では、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の圧力下において発見された超伝導に関して、その対称性や発現機構の解明を目的とする。

#### 2. 研究成果の内容

第一原理バンド計算を再現する低エネルギー有効模型として、従来の3鎖ハバード模型に対して鎖間のトランスファーも考慮したより現実的な擬次元3鎖ハバード模型を構築し、伝導電子と価電子のサイト間クーロン相互作用の効果を、乱雑位相近似（RPA）の範囲で調べた。この模型は、常圧では伝導バンドと価電子バンドの間に小さなバンドギャップのある半導体を再現し、加圧とともにギャップが縮小し、高圧では伝導バンドと価電子バンドが重なった半金属を再現する。まず、常圧のギャップの小さな半導体、および、低圧で僅かにバンドが重なった半金属状態では、励起子感受率が波数  $\mathbf{Q}=(0,0)$  に対して最大となり、低温ではUniform励起子秩序が実現する。一方、圧力が増大してバンドの重なりが大きくなると、励起子感受率が有限の波数  $\mathbf{Q}_1=(Q_{\text{ph1}},0)$  に対して最大となり、低温では重心運動量  $\mathbf{Q}_1$  をもつ励起子が凝縮したFFLO励起子秩序（FFLO1相）が実現する。さらに、高圧でバンドの重なりが大きくなると、励起子感

受率が有限の波数  $Q_2=(Q_{ph2}, \pi)$  に対して最大となり、低温では重心運動量  $Q_2$  をもつ励起子が凝縮した励起子秩序 (FFLO2 相) が実現する。

次に、励起子秩序近傍で増大する励起子揺らぎを媒介とする有効ペアリング相互作用を導出し、エリアシュベルグ方程式を解くことにより超伝導について調べた。その結果、FFLO1 相の近傍ではクーパー対の重心運動量が有限  $Q=(Q_{ph1}, \pi)$  をもつ FFLO 超伝導、FFLO2 相の近傍ではクーパー対の重心運動量が有限  $Q=(Q_{ph2}, 0)$  をもつ FFLO 超伝導が実現する事が分かった。これまで、FFLO 超伝導は強磁場下でその可能性が議論されてきたが、本研究によりゼロ磁場の高圧下において FFLO 超伝導が実現する可能性が初めて示され、今後の実験による検証が大いに期待される。

一方、常圧や低圧の半導体的状況においては、励起子対の preformed-pair や BCS-BEC クロスオーバーが示唆され、強結合状態の可能性が議論されている。本研究ではさらに、上述の RPA を超えてこのような強結合状態の記述に有効な動的平均場理論 (DMFT) を適用し、励起子秩序と強相関効果や半金属側の平均場理論で示された FFLO 励起子揺らぎとの関係について議論した。その結果、オンサイトクーロン相互作用をサイト間クーロン相互作用と同時に考慮すると、RPA の範囲では電荷密度波 (CDW) 秩序が励起子秩序よりも先に実現するが、DMFT では CDW 秩序は抑制され、励起子秩序が安定化されることが分かった。

### 3. 学際共同利用として実施した意義

第一原理バンド計算を再現する現実的な擬一次元 3 鎖ハバード模型は、従来の 3 鎖ハバード模型に比べて RPA および DMFT において必要とされるメモリや計算時間が格段に増大したが、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。また、4. 今後の展望に記載するように、励起子相  $Ta_2NiSe_5$  の研究と並行してさらに複雑な系への応用を開始しており、そこでもスーパーコンピュータによる計算が必要不可欠となっている。

### 4. 今後の展望

これまでの鉄系超伝導研究や、本申請課題の励起子相  $Ta_2NiSe_5$  の研究を通して構築した理論手法をさらに軌道 (バンド) 数の多い場合に発展させ、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新規超伝導、② タングステンブロンズ  $A_xWO_3$  (A はアルカリ金属) におけるヤーンテラーおよびオフセンターモード (ラットリング) 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  $A_xWO_3$  の表面の 2 次元的電子系で観測された高温超伝導の発現機構、③ DNA における電子状態の塩基配列依存性および朝永・ラッティンジャー液体論に基づく 1 次元超伝導の可能性を明らかにする。

5. 成果発表

(1) 学術論文

1. Takemi Yamada, Kaoru Domon, and Yoshiaki Ōno, *Journal of the Physical Society of Japan* 88, 064701 (2019).

(2) 学会発表

1. First-principles study of electronic structure and superconductivity in  $A_xWO_3$  with bulk and surface geometries 10th symposium on Discovery, Fusion, Creation of New Knowledge by Multidisciplinary Computational Sciences 2018 2018.10.15-2018.10.16 Tsukuba, Ibaraki, Japan, Takuya Sekikawa, Hiroyuki Kawai, Yoshiaki Ōno
2. GaN 自発分極の第一原理計算による検討、第 66 回応用物理学会春季学術講演会 2019、2019.3.9-2019.3.12、東京工業大学大岡山キャンパス、関川卓也、白石賢二、佐々木進、大野義章
3. 第一原理計算による GaN 表面の電子状態と電界効果、第 66 回応用物理学会春季学術講演会 2019、2019.3.9-2019.3.12、東京工業大学大岡山キャンパス、齋藤雅樹、関川卓也、佐々木進、大野義章
4. 励起子相候補物質  $Ta_2NiSe_5$  の圧力下における電子状態の理論 II、日本物理学会第 74 回年次大会 2019、2019.3.14-2019.3.17、九州大学伊都キャンパス、土門薫、山田武見、大野義章
5. 第一原理計算と軌道揺らぎ理論によるタングステンブロンズ  $A_xWO_3$  のバルクと表面における超伝導、日本物理学会第 74 回年次大会 2019、2019.3.14-2019.3.17、九州大学伊都キャンパス、関川卓也、大野義章、渡部来、石塚淳、川井弘之、新田祥大、佐野和博
6. 第一原理計算による Pr1-2-20 系の RKKY 相互作用と四極子秩序 II、日本物理学会第 74 回年次大会 2019、2019.3.14-2019.3.17、九州大学伊都キャンパス、飯塚優人、山田武見、半澤克郎、大野義章

(3) その他

なし

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
COMA			
Oakforest-PACS	○	95000	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。			