

令和元年6月13日現在

機関番号：15101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K21175

研究課題名(和文)新規磁気揺らぎ超伝導体の候補探索を目指した第一原理多体モデル計算システムの構築

研究課題名(英文) Building of a first-principles and many body model simulation system for searching spin-fluctuation-mediated superconducting materials

研究代表者

榊原 寛史 (SAKAKIBARA, Hirofumi)

鳥取大学・工学研究科・助教

研究者番号：20734354

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：第一原理バンド計算は物理法則のみに基づいて物質中の電子の状態を計算する方法である。これに基づいて、ハバード模型の相互作用のパラメータを求める方法を構築した。ハバード模型とは、電子間の相互作用の効果を現実的に記述できる模型であり、磁性や超伝導の理論計算に良く用いられる。構築した方法をmodel-mapped RPA法(mRPA)と名付けた。更に、mRPAを用いて現存する高温超伝導物質La₂CuO₄とHgBa₂CuO₄の超伝導転移温度をシミュレーションによって評価した。結果は実験結果を良く再現する。このシステムを用いて、新しい超伝導物質を理論的に予言することも原理的には可能である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導現象とは、低温で電気抵抗が完全に0になる現象である。超伝導現象を上手く応用できれば、電気が関わる多くのエネルギー問題が解決する可能性がある。本研究は、未だ発見されていない超伝導物質を、実際の物質合成・測定実験をせずとも、数値計算によって発見する事を最終目標としている。そのためには、存在し得る全ての物質に対して、同一の評価方法に基づいて超伝導の性質を評価する必要がある。本研究の成果として、電子の状態を物理法則のみに基づいて計算できる極めて客観的な方法(=第一原理バンド計算)に基づき、超伝導の性質を評価するシステムが構築できた。この成果は今後、社会に貢献する可能性がある。

研究成果の概要(英文)：First-principles is a method for evaluating electronic structure of materials based only on the physical principles. I built a new method to derive model parameters of Hubbard-type models, which realistically describe effects of electron interaction especially effective for magnetism and superconductivity. I named the method model-mapped random phase approximation (mRPA). Based on mRPA, I evaluated superconducting critical temperature of two cuprate high-temperature superconductors La₂CuO₄ and HgBa₂CuO₄ numerically. Numerical results are consistent with experimental observations. Therefore, we can predict a new superconducting material based on mRPA, in principle.

研究分野：低温物理学

キーワード：第一原理バンド計算 電子間相互作用 ハバード模型 超伝導 磁性 物質探索

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導現象が一部の層状銅酸化物にて発見されてから 30 年あまり経つ。常圧下において、液体窒素の沸点を超える温度で超伝導転移する物質は、銅酸化物超伝導以外には発見されていない。新しい超伝導物質の探索方法としては、系統的な合成実験によって発見する方法の他に、理論的に計算される電子状態を根拠に探索する方法があり得る。後者の目的のためには、固体中の電子状態を全ての物質に適用可能で且つ信頼性のおける方法で計算する必要があり、その手法を構築しなくてはならない。

一般的に、超伝導や磁性などの低温で起こる物理現象は電子の低エネルギーの運動の効果によって引き起こされる。電子運動は、量子力学の法則から導かれる、電子のバンド構造に大きく影響される。電子のバンド構造を理論的に計算する方法として第一原理バンド計算がある。第一原理バンド計算は、実験的には未だ合成されていないものを含めて、全ての結晶構造について適用できる。また、近年では最局在ワニエ軌道法と呼ばれる方法を用いることで、第一原理バンド計算の結果から低エネルギーの運動に関わる部分だけを取り出すことが可能になっている。

バンド構造以外で超伝導や磁性に関わる物理量は、電子間に働く相互作用である。最局在ワニエ軌道法はバンド構造を取り出すことにおいて大きく成功した方法であるが、そこから電子間の相互作用を評価する方法はさまざまな方法が提案されている。また、相互作用する電子が運動する時、電子相関効果が働く。電子相関の効果は特に超伝導物質や磁性物質が多い遷移金属の化合物などで強く働く事が知られている。電子相関効果を第一原理バンド計算の範囲で正確に取り扱うことは原理的には不可能ではないが、計算コストがとて大きく、事実上は難しい。

2. 研究の目的

第一原理バンド計算の結果に基づいて、ハバード模型のパラメータを導出する方法を目指した。ハバード模型とは、電子の運動をタイトバインディング模型で記述し、そこに局所的な電子間相互作用の効果を加えた模型である。ハバード模型を数値的に解く事ができれば、電子相関効果を正確に反映した物性値を理論計算することが可能である。また本研究では、得られたハバード模型に基づいて、超伝導転移温度を「実験を再現するためのパラメータを一切含めずに」計算するシステムの構築の構築を目指した。

3. 研究の方法

ハバード模型の相互作用を求める方法として、model-mapped Random Phase Approximation (mRPA) を構築した。mRPA とは、第一原理 RPA 計算から求まる遮蔽された相互作用 W を、ハバードモデルによる計算で再現するように、モデルパラメータ U を決定する方法である。その流れ図を図 1 に示す。この時、モデルの関数基底として最局在ワニエ軌道を用いている。mRPA はよく知られた方法である制限 RPA 法 [F. Aryasetiawan *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 195104 (2004)] とよく似ているが、 W のモデル計算における再現度の高さという点で mRPA が優れている。

また、求めたモデルパラメータを用いて、電子相関の効果揺らぎ交換近似 [N. E. Bickers *et al.*, Phys. Rev. Lett. **62**, 961 (1989)] を用いて計算した。得られた電子相関効果を考慮して、線形化エリアシュベルグ方程式を解くことで超伝導転移温度を評価した。

4. 研究成果

まず mRPA 法を用いて高温超伝導体 HgBa₂CuO₄ の単一軌道模型の電子間相互作用を評価した。結果を図 2 に示す。単一バンドの場合、ハバード模型の相互作用 U は、モデル計算で得られる U - W 曲線と第一原理バンド計算から得られる定数 W の交点から決定する事が出来る (図 1 の Step 2 に相当)。その結果を図 2 に示す。またこの時、通常の電子相関効果の計算方法である局所密度近似 (Local Density Approximation, LDA) だけでなく、Quasi-particle self-consistent

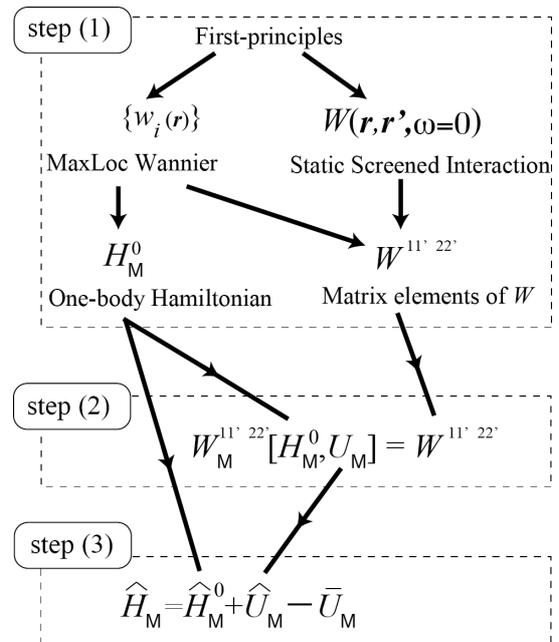


図 1: mRPA の流れ図。3つのステップから成り、特にステップ(1)は第一原理計算で閉じる。(2)(3)はモデル計算より決定する。 H_M はハバードモデルのハミルトニアンを表す。

GW法(QSGW)に基づいて評価した結果も示している。この図から、LDAあるいはQSGWを用いる場合でも、 U の値がおよそ3-5eVの程度になる事がわかる。この値は、 t を最隣接サイトへのホッピング積分とすると、 $U/t \sim 6-10$ 程度であり、モデル計算で超伝導現象が再現できる値である。これは、mRPAで現実的な大きさの U が得られている事を意味する[雑誌論文2]。

次に、mRPA法を用いて高温超伝導体 La_2CuO_4 及び $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$ の2軌道模型を導出した。図2の赤線にて2軌道模型のバンド構造を示した。ここで青線は第一原理バンド計算から得られたバンド構造であり、フェルミ準位($E=0$)の近辺の構造をよく再現している。一般の高温超伝導現象の模型は先述の単一軌道模型が多いが、文献[H. Sakakibara *et al.*, Phys. Rev. Lett **105**, 057003 (2010)]によれば、超伝導転移温度の物質依存性を決定する因子として、フェルミ面を主に構成する軌道である $d_{x^2-y^2}$ 軌道だけでなく、 d_z 軌道も重要であることが分かっている。故に、今回は2軌道模型を仮定し、パラメータを導いた[雑誌論文3]。得られたパラメータは La_2CuO_4 で $U=2.76$ eV、 $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$ で $U=2.99$ eVである(いずれもLDAによる計算)。この値はcRPAによる計算結果[雑誌論文1]と大きくは異ならないが、詳細には違う値になっている[雑誌論文3]。この時、一般に多軌道模型では交点から U を決めることは不可能なので、数値的に多変数方程式の解を求めするためのプログラムを構築し用いている。

得られた2軌道ハバード模型のパラメータを用いて、超伝導転移温度(T_c)を評価した。超伝導転移温度の理論指標として、線形化エリアシュベルグ方程式の最大固有値 λ を計算した。この λ という量は、超伝導転移する温度で計算を行った場合にちょうど1になる量であるが、 T_c よりも高い一定温度で計算した場合には相対値が大きい物質が T_c が高いと定性的に解釈できる。そこで今回は $T=0.01$ eV(絶対温度で約110 K)で計算を La_2CuO_4 及び $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$ で行い、値を比較した。得られた値はそれぞれ $\lambda=0.50, 0.71$ である。実験測定結果はそれぞれ40K, 98Kなので、定性的傾向は一致する。ここでは「実験結果を再現するために人為的に導入したパラメータ」は一切用いていない。この点がこの研究方法の美点である。言い換えれば、mRPA法を用いることで、結晶構造のデータのみを用いて(準)第一原理的に超伝導 T_c が評価できる様になったと言える。

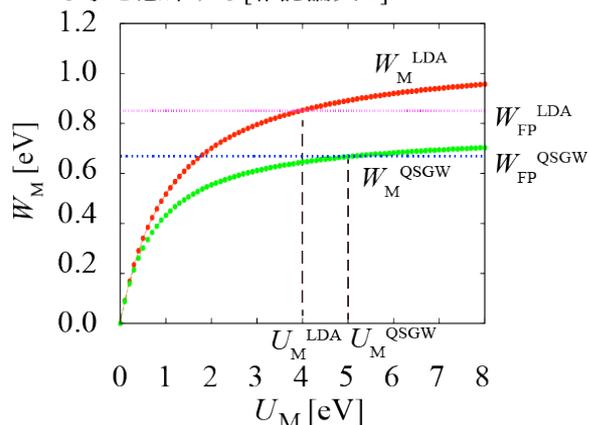


図2: mRPAによる電子間相互作用の決定。LDA, QSGWの2つの手法で U の値を評価した。

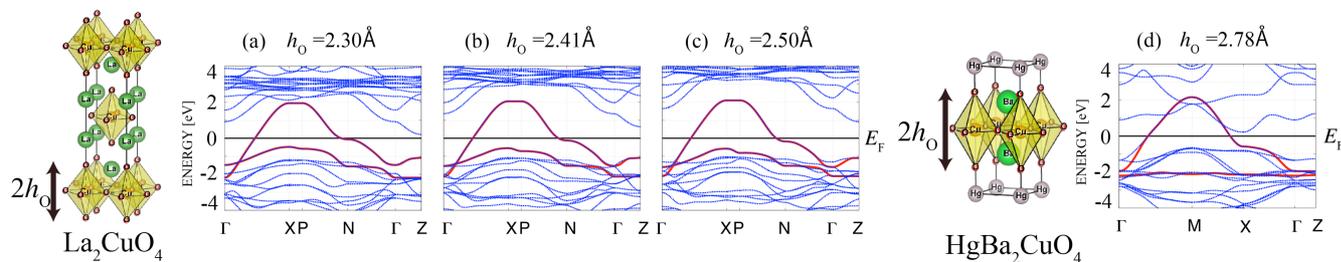


図3: mRPAで用いた結晶構造及び2軌道模型のバンド構造(赤線)と全体のバンド構造(青線)。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

[1] H. Sakakibara and T. Kotani, “Model-mapped random phase approximation to evaluate superconductivity in the fluctuation exchange approximation from first-principles”, Phys. Rev. B, 査読あり, vol. 99, 195141 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.99.195141

[2] H. Sakakibara, S. W. Jang, H. Kino, T. Kotani, M.J. Han and K. Kuroki, “Model-mapped RPA for determining the effective Coulomb interaction”, J. Phys. Soc. Jpn., 査読あり, vol. 86, 044714 (2017). DOI: 10.7566/JPSJ.86.044714

[3] S.W. Jang, H. Sakakibara, H. Kino, T. Kotani, K. Kuroki, and M.J. Han, “Direct theoretical evidence for weaker correlations in electron-doped and Hg-based hole-doped cuprates.”, Sci. Rep. 査読あり, vol. 6, page 33397 (2016). DOI: 10.1038/srep33397

〔学会発表〕（計 11 件）

[1] 榑原寛史, 小谷岳生, “オフサイト相互作用パラメータを含む拡張ハバード模型の第一原理計算による導出”, 日本物理学会 74 回年次大会(2019).

[2] H. Sakakibara, S.W. Jang, M.J. Han, T. Kotani, “Model mapped RPA: first-principles method to determine a Hubbard model Hamiltonian”, The 21st asian workshop on first-principles electronic structure calculations (2018).

[3] H. Sakakibara, S.W. Jang, H. Kino, M.J. Han, K. Kuroki, T. Kotani, “Model- mapped RPA to determine a model Hamiltonian from first-principles”, International Conference on Magnetism (2018).

[4] 榑原寛史, S.W. Jang, 木野日織, M.J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “mRPA 法多軌道ハバード模型への拡張”, 京都大学基研研究会「電子相関が生み出す新規な秩序と超伝導現象:トポロジ, 液晶状態, 動的現象」(2018).

[5] 榑原寛史, S.W. Jang, 木野日織, M.J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “mRPA 法による超伝導物質のハバード型相互作用の評価”, 超伝導かけはしワークショップ (2018).

[6] 榑原寛史, S. W. Jang, 木野日織, M.J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “多軌道ハバード模型における相互作用パラメータの第一原理的導出方法: mRPA 法及び cRPA 法の比較”, 日本物理学会 2018 秋季大会, (2018).

[7] 榑原寛史, “モデルマップ RPA 法の開発と多軌道系への適用”, 物性研スパコン共同利用・CCMS 合同研究会-計算物質科学の今と未来-(2018).

[8] 榑原寛史, S. W. Jang, 木野日織, M. J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “mRPA 法による多軌道相互作用パラメータの導出及び” それを用いた超伝導物質の解析”, 日本物理学会 73 回年次大会(2018).

[9] 榑原寛史, S. W. Jang, 木野日織, M. J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “第一原理低エネルギーモデル導出のための Model-mapped RPA 法の提案”, 日本物理学会 2016 秋季大会 (2016).

[10] 榑原寛史, “銅酸化物高温超伝導体の第一原理バンド計算を基盤とする理論研究”, 高温超伝導フォーラム(2016).

[11] 榑原寛史, “第一原理ダウンフォールディング法に基づくスピン揺らぎ超伝導体の理論研究”, 応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会シンポジウム「超伝導における新しい対称性と機構」(2016).

6. 研究組織

(2)研究協力者

研究協力者氏名：小谷 岳生,
ローマ字氏名：(KOTANI, takao)

研究協力者氏名：黒木和彦
ローマ字氏名：(KUROKI, kazuhiko)

研究協力者氏名：木野日織
ローマ字氏名：(KINO, hiori)

研究協力者氏名： M.J. Han
ローマ字氏名：(HAN, M.J.)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。