

令和 2 年 6 月 2 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05452

研究課題名(和文) 第一原理エリアシュベルグ計算コード開発と実証研究

研究課題名(英文) Development of first-principles Eliashberg code and application to real materials

研究代表者

中村 和磨 (Nakamura, Kazuma)

九州工業大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：60525236

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本申請課題では、第一原理計算を用いた超伝導物質の超伝導転移温度評価を目的として、マクミラン方程式を数値的に解くプログラムを開発し、現実物質の転移温度評価を行った。また、実験研究者と協力して、銅酸化物、Nb, Ta, V, NdNiO₂, などの代表的な物質について調べた。このプログラム作成の中で開発したフォノン分散曲線の評価プログラムについても単独で利用し、スピン軌道相互作用系 Ca₅Ir₃O₁₂ などのイリジウム酸化物のフォノン物性について研究を行った。開発プログラムは、汎用性ソフトウェア RESPACK としてまとめられ公開された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本申請課題では、物質の超伝導機構の理解を得るために、第一原理計算プログラムの開発に取り組み、また実験グループとの協力のもと実証研究を進めた。開発プログラムは第一原理電子構造計算汎用ソフトウェアRESPACKとして公開された(2017年10月)。2020年3月までにダウンロード数1750である。2018年には東大物性研が公募するソフトウェア開発・高度化プロジェクトの対象ソフトウェアに採択され、高精度整備のもと、現在、東大物性研スーパーコンピュータの公式アプリケーションとして多くのユーザに利用されている。

研究成果の概要(英文)：We developed a program that numerically solves the Macmillan equation for the purpose of evaluating the superconducting transition temperature of superconducting materials from first principles. Using this code, we calculated the transition temperature for several real materials. Also, in collaboration with experimental groups, we investigated representative materials such as Al, Nb, cuprate, and NdNiO₂. The phonon-calculation program developed in the program development was also used to study the phonon properties of spin-orbit interaction system Ca₅Ir₃O₁₂ and other iridium oxides. Our developed program was released as an open-software RESPACK at 2017.

研究分野：計算物質科学

キーワード：第一原理計算 超伝導 フォノン計算 スピン軌道相互作用

1. 研究開始当初の背景

超伝導は物性研究の活発な研究対象であり、BCS 理論によるフォノン系超伝導機構解明、1988 年の銅酸化物超伝導体、2008 年の鉄系超伝導体と新しい知見と興味をもたらしてきた。物性研究は、実験による検証を通して研究が進むが、これまでは測定誤差や試料内不純物・不均一性などのため、現象の定性理解を重視する傾向があった。近年では、測定・試料合成技術の進展により、定量かつ物質合成の指針を与えうる非経験的計算の進展が期待されている。固体第一原理電子構造計算は主に密度汎関数理論に基づき、計算機の性能進歩と相まって、基盤整備が進んできた。現在では、電子構造だけでなく、電子物性、フォノン物性、電子格子相互作用などの物理量評価が進んでいる。第一原理計算は実験研究との親和性が高く、実験と理論がチームとなって物質科学研究を行うことが年々増えており、実験の期待に応える整備が望まれている。超伝導転移温度の第一原理評価においては、エリアシュベルグ理論に基づくマクミラン公式を用いた BCS 超伝導体の転移温度評価も試みられるようになってきているが、プログラムは予備的なレベルにとどまっており、依然として物質の多様性に耐えうる基盤技術になっていない。

2. 研究の目的

本研究では、超伝導転移温度評価と微視的機構解明を目的として、第一原理計算に基づくプログラム開発とこれを用いた実証研究を行う。申請者はこれまで第一原理多体摂動計算コード(乱雑位相近似, GW 自己エネルギー)を自作し、多くの物質に対して実証研究を行ってきた。この計算技術を超伝導に拡張し、第一原理計算の適用範囲を拡大させる。これまで申請者は電子系の集団励起モードであるプラズモン揺らぎを研究対象としてきたが、本申請課題では、フォノン物性のための第一原理計算と、電子格子相互作用評価に基づく超伝導転移温度の第一原理計算に焦点を当てる。またこれを実現するための様々なモジュール(高精度状態密度評価モジュール, ワニエ内挿モジュール等)整備を進める。現実物質の超伝導理解のために実験との共同研究を実施し、開発ツールが十分に機能するか検証する。開発プログラムの汎用ソフトウェア整備をすすめ、ユーザのための研究インフラ構築を行う。

3. 研究の方法

第一原理電子構造計算プログラム xTAPP, フォノン計算プログラム Phonopy, 第一原理多体摂動論プログラム RESPACK を併用して第一原理計算に基づく超伝導転移温度評価を行うプログラムを開発する。エリアシュベルグ理論に基づく修正マクミラン公式を用いて、評価に必要な電子状態密度, 電子格子相互作用, 実効的電子間相互作用, デバイ温度等を評価するプログラムを開発する。開発プログラムのチェックのために、BCS 系超伝導体に対して計算を行う。また、この開発の中で得られる様々なモジュール(電子状態密度モジュール, フォノン分散計算モジュール, 電子間相互作用モジュール等)の性能をチェックするため、実験研究者と広範な物質に対する共同研究を実施する。

4. 研究成果

本申請課題で取り組んだ課題の内、超伝導研究およびこの課題を実施する中で開発された研究ツールを用いたもの6つについて紹介する。

Al, Nb の超伝導転移温度計算

図1は開発プログラムより得られたフォノン分散曲線である[(a) Al, (b) Nb]。赤線が計算結果で青点の実験結果である。表1および表2は Al および Nb の転移温度を評価するためのパラメータ(特性振動数 \log , 電子格子相互作用 μ^* , 電子間相互作用 μ^*)とマクミラン公式より得られた超伝導転移温度 T_c の他の計算結果および実験との比較である。まずまずの一致が得られている。

表 1: Al の超伝導転移温度および主要パラメータ

Al	$\log(K)$		μ^*	T_c (K)
ours	248	0.46	0.10	2.0
[1]	308	0.42	0.11	1.4
[2]	270	0.44	0.12	1.2
Expt.	-	0.42 [3]	-	1.2 [4]

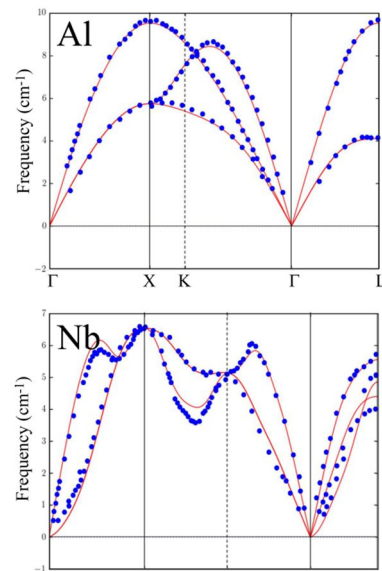


図 1: xTAPP-Phonopy より得られたフォノン分散曲線 [(a) Al, (b) Nb]。赤: 計算, 青: 実験。

表 2: Nb の超伝導転移温度および主要パラメータ

Nb	log(K)		μ^*	Tc (K)
ours	199	1.36	0.14	18.2
[1]	164	1.31	0.13	14.5
[2]	185	1.26	0.21	10.5
Expt.	-	1.22 [3]	-	9.3 [4]

- [1] R. Akashi, K. Nakamura, R. Arita, M. Imada, Phys. Rev. B 86, 054513 (2012).
 [2] S. Y. Savrasov, D. Y. Savrasov, Phys. Rev. B 54, 16487 (1996).
 [3] E. L. Wolf, in Principles of Electronic Tunneling Spectroscopy (Oxford University Press, New York, 1985).
 [4] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, Solid State Physics (Thomson Learning, Singapore, 1976).

銅酸化物の Tc に対する異方性圧縮効果

実験グループとの共同で水銀系銅酸化物 HgBa₂Ca₂Cu₃O₁₄ (Hg-1223) の超伝導転移温度に対する異方性圧縮効果を調べた。図 2 上に Hg-1223 の結晶構造を示す。開発したプログラム RESPACK ではワニエ関数計算モジュール、状態密度計算モジュールが備わっており、これを用いて Hg-1223 に対する高圧実験にて測定された転移温度の上昇メカニズムを調べた。バンド計算およびワニエ解析より、フェルミ準位近傍のバンドは、CuO₂ 面のバンドだけでなく、Hg バンドの寄与もあることが分かった。図 2 下に Hg-1223 に対する第一原理計算によるフェルミ準位近傍の電子状態密度解析の結果を示す。(a) 静水圧, (b) 等方圧縮, (c) 異方性的 c 軸圧縮, (d) 異方性的 ab 面内圧縮の 4 パターンに対して、全電子状態密度(青), CuO₂ ブロックを構成するバンドからの状態密度寄与(赤), HgO ブロックを構成するバンドからの状態密度寄与(緑)に分けて表示した。圧縮にともない、HgO ブロックの状態密度(緑)がレッドシフトしていることが分かる[(a) と (b), (c), (d) の比較]; すなわち状態密度の裾が低エネルギー側に広がる傾向が見て取れる。状態密度の変化は、各ブロックの占有数の変化に反映される。調査の結果、HgO ブロックの占有数は等方圧縮に対して 0.1 程度の増加を示し、この変化量は異方性圧縮の場合の増加量 0.05 よりも大きい。電子数増加をホール数の観点から見ると、HgO ブロックから CuO₂ ブロックへのホールドーピングを示唆する。結果、Hg-1223 への圧力印可は HgO ブロックからの CuO₂ ブロックへのホールドーピングとみなされ、結果、転移温度の上昇することが分かった。また実験で確認された等方圧縮において最も高い Tc 上昇効果をもたらされる傾向も説明できた。

Nb の Tc に対する高圧歪み加工効果

実験グループとの共同で Nb に高圧ねじり(High Pressure Torsion; HPT) 加工を施した際の超伝導転移温度の上昇機構を調べた。Nb は単体金属の中では常圧で最も高い超伝導転移温度 Tc を示す (9.2 K)。我々は Nb の HPT 加工材に対して、高圧力下磁気測定を実施し Tc の変化を追跡することで、せん断ひずみを利用した高圧力下での Tc 上昇の可能性を追求した。実験では、HPT 加工後、静水圧を 2 GPa 程度かけることで Tc は最大値 9.9 K をわずかに超えた。この観測事実を理解するために、

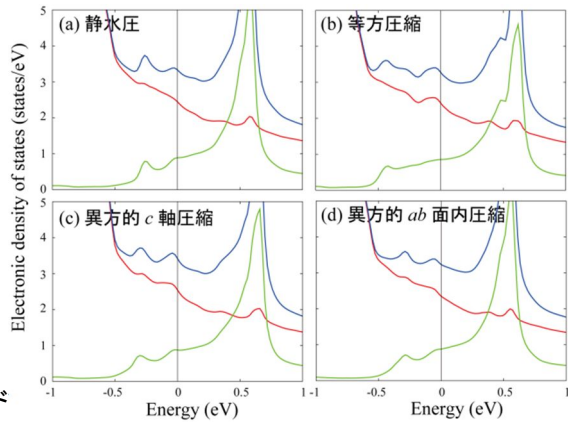
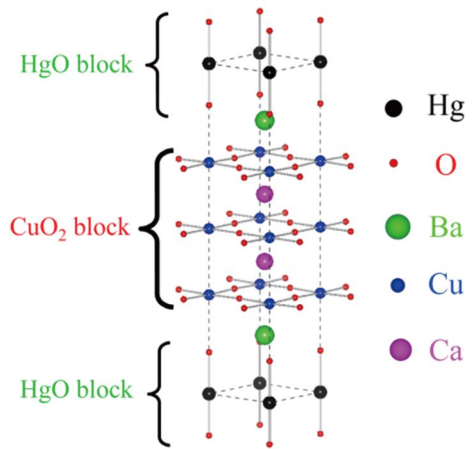


図 2: (上) Hg-1223 の結晶構造および (下) 電子状態密度 (DOS) のワニエ分割。(a) 静水圧, (b) 等方圧縮, (c) 異方性的 c 軸圧縮, (d) 異方性的 ab 面内圧縮。青: total DOS, 赤: CuO₂ 由来 DOS, 緑: HgO 由来の DOS。

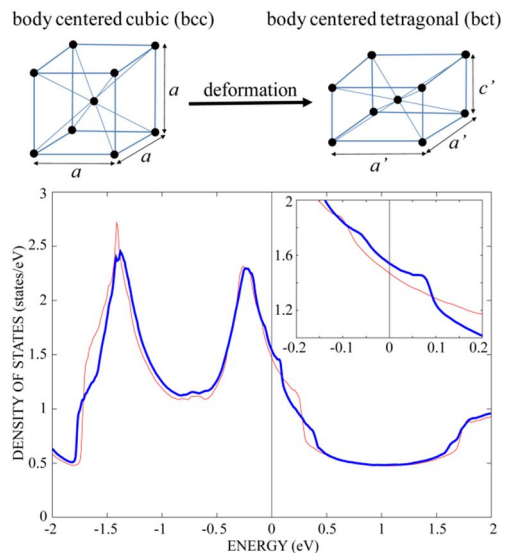


図 3: Nb の HPT 加工による電子状態密度変化。(上) HPT 加工+加圧による bcc 工 bct 変形。(下) 状態密度の変化: 赤: 変形前, 青: 変形後

HPT 加工を模した結晶構造に対して第一原理計算を行った。解析の結果、HPT 加工により bcc 構造から bct 構造への変形が起こり (図 3 上)、この変形によってフェルミ準位近傍の電子状態密度の増加が誘起された (図 3 下)。マクミラン公式に基づくフェルミ準位での状態密度の増加は T_c 上昇をもたらす。よって、理論計算の結果は実験結果を説明できることが分かった。

新規超伝導体 NdNiO₂ の低エネルギー有効模型導出

最近発見された超伝導体 NdNiO₂ の低エネルギー物性を評価し、これの有効模型を第一原理的に導出した。xTAPP+RESPACK による制限乱雑位相近似計算により、多軌道系拡張 Hubbard 模型および Ni-3dx²-y² 単一軌道模型のパラメータを決定した。分かったことは以下の通りである: (1) この物質の低エネルギー物性は単一軌道モデルで記述できる、(2) 強相関度 $U/t \sim 8$ 程度の強相関系である、(3) 電子-フォノン結合定数は T_c 10 K の超伝導を媒介出来るほど大きくない、(4) 転移温度を上昇させるためには Nd レイヤーをブロックレイヤーに置き換えるとよいことを報告した。この論文は世界で最初に出版された NdNiO₂ の理論系論文であることを評価され Physical Review B 誌の Editor suggestion に選ばれた。

イリジウム酸化物 Ca₅Ir₃O₁₂ のフォノン計算

申請課題を実施する中で、実験グループからの強い要請でスピン軌道相互作用を考慮できるバンド計算プログラムの開発を行った。これを用いてイリジウム酸化物 Ca₅Ir₃O₁₂ の相転移機構調査を行った。スピン軌道相互作用を実装した RESPACK を用いてバンド計算、フェルミ面計算、フォノン計算、有効模型導出計算を行い、相転移機構解明を進めている。図 4 は xTAPP+Phonopy 計算より得られた Ca₅Ir₃O₁₂ のフォノン分散である。(a) は超格子を 1x1x3 に選んだ場合のフォノン分散であり、(b) は 2x1x1 の場合のフォノン分散である。これから分かる通り、2x2x1 スーパーセルでは不安定フォノンモードが検出されており、この物質の相転移機構を理解するための重要な証拠が得られた。Raman 実験、X 線非弾性散乱を実施して、理論計算の示唆が実験でも検証できるか調査を行っている。

汎用性ソフトウェア公開

本申請課題で開発された計算アルゴリズムとプログラムを汎用ソフトウェア RESPACK として公開した。すでに日本語・英語マニュアルを整備し、計算アルゴリズムに特化した論文を英文雑誌へ投稿中である。図 5 は公開に際して作成した RESPACK のロゴである。公開を通して他分野の研究者や企業研究者との共同研究がスタートし、現在応用研究を進めている。物性コミュニティでは、2010 年代から高度化した第一原理計算プログラムをコミュニティの共有インフラとして多くのユーザが共有できるようにしようという機運が高まった。このような背景のもと、RESPACK プロジェクトがスタートし、2017 年 10 月にバージョン 1 が公開された。2020 年 3 月までにダウンロード数は 1750 である。2018 年には東京大学物性研究所が公募するソフトウェア開発・高度化プロジェクトの対象ソフトウェアに採択され [5]、高精度整備のもと、現在、物性コミュニティの共同利用施設である東大物性研スーパーコンピュータの公式アプリケーションとして、多くのユーザに利用されている。また RESPACK を用いて行った鉄系超伝導体の低エネルギー有効模型導出の業績が評価され、2018 年度日本物理学会第 23 回論文賞に選ばれた。

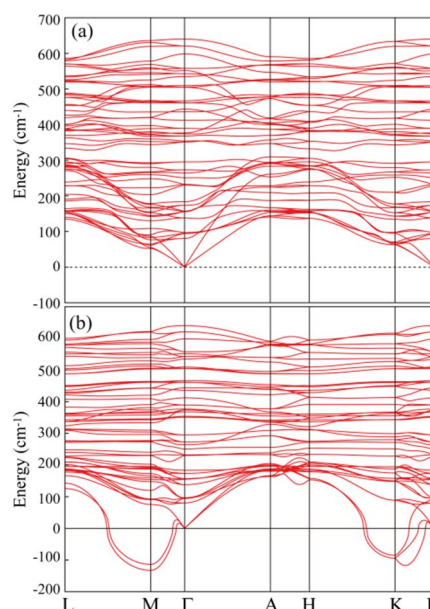


図 4: スピン軌道相互作用を考慮できる xTPAA-Phonopy により計算された Ca₅Ir₃O₁₂ のフォノン分散曲線。(a) 1x1x3 スーパーセルに基づく。(b) 2x1x1 スーパーセルに基づく。



図 5: RESPACK のロゴ

[5] 第一原理有効模型導出プログラム RESPACK と模型解析プログラム H /mVMC の融合による非経験的強相関電子構造解析ソフトウェアの整備 (2018)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 M. Mito, Y. Kitamura, T. Tajiri, K. Nakamura, R. Shiraishi, K. Ogata, H. Deguchi, T. Yamaguchi, N. Takeshita, T. Nishizaki, K. Edalati, Z. Horita	4. 巻 125
2. 論文標題 Hydrostatic pressure effects on superconducting transition of nanostructured niobium highly strained by high-pressure torsion	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 125901/1-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5083094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Mito Masaki, Ogata Kazuma, Goto Hiroki, Tsuruta Kazuki, Nakamura Kazuma, Deguchi Hiroyuki, Horide Tomoya, Matsumoto Kaname, Tajiri Takayuki, Hara Hiroshi, Ozaki Toshinori, Takeya Hiroyuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 95
2. 論文標題 Uniaxial strain effects on the superconducting transition in Re-doped Hg-1223 cuprate superconductors	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 064503/1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.064503	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Matsuhira Kazuyuki, Nakamura Kazuma, Yasukuni Yuki, Yoshimoto Yoshihide, Hirai Daigorou, Hiroi Zenji	4. 巻 87
2. 論文標題 Nonlinear Conductivity of Geometrically Frustrated Iridate Ca5Ir3O12	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 013703 ~ 013703
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.87.013703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 M. Mito, H. Matsui, K. Tsuruta, T. Yamaguchi, K. Nakamura, H. Deguchi, N. Shirakawa, H. Adachi, T. Yamasaki, H. Iwaoka, Y. Ikoma, and Z. Horita	4. 巻 5
2. 論文標題 Large enhancement of superconducting transition temperature in single-element superconducting rhenium by shear strain	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 36337
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/srep36337	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yusuke Nomura, Motoaki Hirayama, Terumasa Tadano, Yoshihide Yoshimoto, Kazuma Nakamura, and Ryotaro Arita	4. 巻 100
2. 論文標題 Formation of a two-dimensional single-component correlated electron system and band engineering in the nickelate superconductor NdNiO ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW B	6. 最初と最後の頁 205138(1-11)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.205138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masaki Mito, Takayuki Tajiri, Seiya Saisho, Hiroyuki Deguchi, Atsushi Kohno, Kazuma Nakamura	4. 巻 489
2. 論文標題 Anisotropic compression effects on nanocrystalline crystals of nickel oxide	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 165407(1-7)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.165407	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroki Hanate, Takumi Hasegawa, Satoshi Tsutsui, Kazuma Nakamura, Yoshihide Yoshimoto, Naohiro Kishigami, Sho Haneta, and Kazuyuki Matsuhira	4. 巻 89
2. 論文標題 Study of Phonon Dispersion of Iridium Oxide Ca ₅ Ir ₃ O ₁₂ with Strong Spin-Orbit Interaction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 053601(1-5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.7566/JPSJ.89.053601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroki Hanate, Kazuma Nakamura, Kazuyuki Matsuhira	4. 巻 498
2. 論文標題 Harmonic voltage response to AC current in the nonlinear conductivity of iridium oxide Ca ₅ Ir ₃ O ₁₂	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 166203(1-4)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.166203	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takumi Hasegawa, Wataru Yoshida, Kazuma Nakamura, Norio Ogita, and Kazuyuki Matsuhira	4. 巻 89
2. 論文標題 Raman Scattering Investigation of Structural Transition in Ca5Ir3O12	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 054602(1-11)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.7566/JPSJ.89.054602	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 美藤 正樹, 中村 和磨, 松本 要, 高野 義彦	4. 巻 29
2. 論文標題 銅酸化物超伝導体の一軸圧縮効果	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 高圧力の科学と技術	6. 最初と最後の頁 262-271
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.4131/jshpreview.29.262	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 CCMSハンズオン: RESPACK講習会
3. 学会等名 TIA “かけはし” 連携講座 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 第一原理多体摂動論ソフトウェアRESPACKの開発と公開
3. 学会等名 物性研究所パソコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 第一原理計算に基づく熱力学状態図作成
3. 学会等名 日本物理学第74回年次大会 (2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 CCMSハンズオン: RESPACK講習会
3. 学会等名 「TIA “かけはし” 連携講座」 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kazuma NAKAMURA
2. 発表標題 Search for new material structure using USPEX
3. 学会等名 7th Annual World Congress of Nano Science & Technology-2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 第一原理計算を用いた超伝導物性研究
3. 学会等名 応用物理学会 超伝導分科会 第53回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 (x)TAPPおよびpost-TAPPコードを用いた 超伝導パラメータ評価
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Kazuma Nakamura
2. 発表標題 RESPACK: Ab initio software for many-body perturbation calculation and effective-model derivation
3. 学会等名 International Conference on Frontiers of Correlated Electron Sciences (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 Ca5Ir3012の第一原理計算
3. 学会等名 新学術領域 J-Physics:多極子伝導系の物理 J-Physics 地域研究会 - 北九州 - (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村和磨
2. 発表標題 第一原理多体摂動論ソフトウェア RESPACKの開発と公開
3. 学会等名 "物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開」"(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

RESPACK: ab initio many body perturbation theory
<https://sites.google.com/view/kazuma7k6r>
RESPACKは第一原理多体摂動計算ソフトウェアである。2017/7/14に公開以来、2020/05/31までにダウンロード総数1793である。2020/1/13にバージョン3を公開した。

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----