



鉄系高温超伝導が生じるしくみを

スーパーコンピュータ「京」を用いて解明

— 電子密度のゆらぎと超伝導の出現が連動 —

1. 発表者： 三澤 貴宏（東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 助教）
今田 正俊（東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 教授）

2. 発表のポイント：

- ◆ 鉄系高温超伝導体の超伝導が、「電子密度のゆらぎ」の増大によって引き起こされるとい
う証拠を理論計算によって発見しました。
- ◆ スーパーコンピュータ「京」を駆使することで、初めて計算機の中で鉄系高温超伝導体
の超伝導を再現することに成功し、続いて超伝導が起きる仕組みも明らかにしました。
- ◆ この新しい超伝導発現機構を指針として、より高い転移温度をもつ超伝導体の探索には
ずみがつくと期待されます。

3. 発表概要：

鉄系超伝導体は 2008 年に東京工業大学の細野 秀雄教授のグループにより発見されて以来、この物質群に属する化合物が多数発見されています。物質が超伝導（注1）を示す温度（転移温度）が摂氏-220 度を上回る「高温超伝導体」を含むことから、この物質群で超伝導が起きる仕組みを明らかにすることで、より高い転移温度の超伝導体を作る指針になると考えられ、全世界で精力的な研究が行われています。それにも関わらず、超伝導が生じる仕組みは未だよく明らかにされていません。困難の一つの原因としては最近まで鉄系超伝導体のような複雑な化合物の理論模型を調べる有効な方法がなかったことが挙げられます。

東京大学 大学院工学系研究科 物理工学専攻の三澤 貴宏助教、今田 正俊教授はこの困難をスーパーコンピュータ「京」を活用して克服することに成功しました。鉄系超伝導体を第一原理計算（注2）によって理論解析することで、従来はあまり重要と思われていなかった様な電荷感受率（注3）と呼ばれる電子密度のゆらぎの増大が超伝導の原因であることを見出しました。

三澤助教らはまず、量子力学・統計力学の法則に従って、鉄系超伝導体の物質構造だけを入力として、実験結果と一致する性質を持つ超伝導状態を計算機の中で数値的に生み出すことに世界で初めて成功しました。さらに、実験では直接制御することが困難な物質中の電子間に働く相互作用をコンピュータの中で制御することで、超伝導を生じさせている主要な要素を突き止めました。その結果、電子の密度のゆらぎが増大するときに例外なく超伝導が生じるという証拠を得ました。これは長年の高温超伝導の仕組みを解明しようとする基礎研究の中で重要な意義を持つものです。また、この研究で得られた超伝導の仕組みをガイドラインにした物質を設計することで、超伝導体になる温度を上昇させる実験探索にはずみがつくと期待できます。

本研究成果は、英国の科学雑誌『Nature Communications』のオンライン版（12月22日付け：日本時間12月22日19:00）に掲載されました。

4. 発表内容：

① 研究の背景

物質の温度を下げたときに生じる超伝導現象（注1）は、その発見から半世紀以上にわたって極低温（摂氏 -240 度以下）でのみ起こる現象だと信じられてきました。この転移温度の低さが超伝導体の産業応用を阻んできた大きな原因の一つです。しかし、1986 年のベドノルツとミュラーによる銅酸化物高温超伝導体の発見によって状況は一変し、転移温度は飛躍的に上昇して現在では銅酸化物で最高転移温度摂氏約-113 度の超伝導体が得られています。この転移温度をさらに上昇させることで、冷却に要するエネルギーを減らし、超伝導体による損失のない電力輸送などへの産業応用が盛んになると考えられています。

そのなかで、2008 年に東京工業大学の細野 秀雄教授のグループが発見した鉄系高温超伝導体は銅酸化物と全く異なる系列の物質であったことから大きく注目を集めました。現在、銅酸化物高温超伝導と鉄系超伝導の共通点・相違点から高温超伝導が起きる仕組みを明らかにしようとする研究が全世界で精力的に行われています。

鉄系超伝導体の超伝導を引き起こす原因として電子の持つ磁気的なゆらぎや軌道のゆらぎとよばれるものが役割を果たしているという提案がされています。しかし、これまでの膨大な数の実験・理論研究にも関わらず、超伝導が起きる仕組みは十分な理解に至っていません。いずれの物質も物質中の電子間に働く相互作用が、超伝導が生じる上で重要な役割を果たしていると考えられていますが、この電子間の相互作用を定量的に評価して高い精度で解析する有効な理論手法が最近までなかったのが高温超伝導になる仕組みの解明を阻んでいる大きな原因でした。

② 成果の内容

三澤助教らは、まず固体に対する第一原理計算（注2、物質構造のみを入力とし、パラメータを含まない計算）の結果を用いることで、物質中の電子間の相互作用の大きさを評価して、典型的な鉄系超伝導体である LaFeAsO（La：ランタン、Fe：鉄、As：ヒ素、O：酸素）の理論模型を導きました。従来は直感で推測した値を用いることの多かった理論模型の相互作用の大きさを物質構造のみから決定することで、あいまいさのない計算を実行できるのがこの手法の大きな特徴です。

物質構造を忠実に表すこの模型に、多変数変分モンテカルロ法（注4）とよばれる高精度シミュレーション法を用いた大規模な数値計算を、スーパーコンピュータ「京」を用いて行い、鉄系超伝導に見られる超伝導と同じ特徴を持つ超伝導状態が確かに現れることを初めて示しました。鉄系化合物の超伝導は反強磁性（注5）とよばれるスピンの隣同士反平行に整列した磁性を持つ相から電子濃度を変えると得られますが、超伝導が生じる電子濃度や磁性相との関係を定量的に再現した（図1）だけでなく、計算結果は超伝導が持つ対称性という特徴も、正しいと考えられる実験結果を再現しました。その上で、物質中の電子間の相互作用の大きさを一つ一つ変化させて計算して、超伝導との因果関係を調べることで、超伝導が何を原因として生じているかを突き止めました。このように相互作用を制御することは、実験では実現するのが困難で、理論計算を行う大きな利点の一つです。その結果、超伝導の生じる原因として提案されている磁気的なゆらぎや軌道のゆらぎとよばれるものと超伝導の出現は対応しませんでした。一方、相互作用を変化させると反強磁性と呼ばれる磁性相への一次相転移（注6）が生じる電子濃度とそのようなすは大きく変化します。そしてどんな場合も、この一次相転移の近くで電子密度を不均一にしようとするゆらぎが増大し、これと一対一対応して超伝導が引き起こされる

ことを突き止め（図 1、図 2）、高温超伝導を引き起こす原因の証拠（smoking gun）を見つけました。

③ 今後の展望

本研究で得られた超伝導機構が他の鉄系超伝導体、さらには銅酸化物高温超伝導体でも普遍的であるのかどうかを、さらなる理論計算を行うことで明らかにすることが重要な課題として浮かび上がっています。超伝導が生じる仕組みの研究は基礎物理学の重要なテーマですが、転移温度の高い高温超伝導体が生じる仕組みは電子間の強い相互作用が引き起こしているため、その解明は現代物理学の難問のひとつです。本成果は現実的に可能な超伝導機構（仕組み）の基礎研究を加速すると期待できます。さらに強相関電子系（注 7）を第一原理の観点から解明する数値手法とその有効性の研究が今後さらに重要になってきます。それに加えて、機構の普遍性の検証をもとに、この機構を利用して物質を理論的に設計する指針を提示することでより高い転移温度をもつ超伝導体を実現し、冷却コストの少ない超伝導体実現と応用へ向けた研究が活発化すると期待できます。

本研究は、文部科学省の科学研究費補助金（No. 22104010, No. 22340090, No. 23740261）の助成を受け、HPCI 戦略プログラム（SPIRE）および 計算物質科学イニシアティブ（CMSI）のプロジェクトの一部として行われました。スーパーコンピュータによる計算には理化学研究所計算科学研究機構のスーパーコンピュータ「京」（課題番号: hp120043, hp120283, hp130007）が使われました。また、東京大学情報基盤センター、東京大学物性研究所のスーパーコンピュータも使われました。

5. 発表雑誌：

雑誌名：「Nature Communications」

URL: <http://www.nature.com/naturecommunications>

（オンライン版：12月22日出版）

論文タイトル：Superconductivity and its mechanism in an ab initio model for electron-doped LaFeAsO

著者： Takahiro Misawa* and Masatoshi Imada*

DOI 番号 10.1038/ncomm6738

6. 問い合わせ先：

東京大学大学院 工学系研究科 物理工学専攻

助教 三澤 貴宏（みさわ たかひろ）:

tel: 03-5841-6807, e-mail: misawa@ap.t.u-tokyo.ac.jp

教授 今田 正俊（いまだ まさとし）:

<報道担当>

東京大学 大学院工学系研究科 広報室

〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1

e-mail: kouhou@pr.t.u-tokyo.ac.jp

7. 用語解説：

(注1) **超伝導**：物質を冷やしていったとき、ある温度以下で電気抵抗がゼロになる現象。熱を発生することなく電流を流すことができ、かつその電流がいつまでも流れ続けることから、エネルギー損失のない電力輸送や貯蔵に使える可能性がある。超伝導体中では磁場が排除されるという完全反磁性という性質も知られ、このことから磁場中で磁場に反発して物体を浮上させる応用もリニアモーターカーで使われている。従来型超伝導は1911年にカメリン・オンネスにより発見され、その機構は1957年に解明されたが、この機構で生じる超伝導は絶対零度に近い低温に限られると考えられている。1986年に発見された銅酸化物や2008年に発見された鉄系超伝導体での超伝導のような高温超伝導はこの従来機構とは全く異なる原因で生じていると考えられ、原因究明の研究が世界的に精力的に進められていた。銅酸化物も鉄系超伝導体もいずれも2次元的な層が積み重なった構造をしており、超伝導が磁性相の近くに現れるという共通点があるが、銅酸化物では磁性相が絶縁体であり、超伝導クーパー対の対称性もこの鉄系超伝導体で現れるものと異なるなどのいくつかの違いがある。

(注2) **第一原理計算**：物質の構成元素の情報のみから、物質の示す性質を計算する方法。原子や電子間の相互作用や量子力学の基本法則と質量や電荷などの粒子（原子や電子）の性質のみを与えられたものとして認め、これ以外には実験結果から得られる値を用いず、また任意性のあるパラメータも導入せずに、多彩な物理現象の機構を統一的、演繹的に理解することをめざす計算である。実験に対する定量的な予言能力のある手法として注目されている。1964年にコーンとホーヘンベルクによって提唱された電子密度のみから物理量を計算する理論（密度汎関数法理論）が最もよく知られ、今回用いた第一原理計算手法の基礎でもある。望んだ性質を持つ物質を作ることを目指す物質設計には欠かすことのできない手法であるが、強相関電子系（注7）を物理学の基本法則（第一原理）のみから解明することは、半導体のような弱相関系と比べて格段に難しく、今世紀における挑戦的な課題として知られている。実際、従来の密度汎関数理論に基づく第一原理計算では電子相関の効果は十分に取り込まれていなかった。最近密度汎関数理論に基づいて大局的な電子構造を評価した上で、電子相関の効果を精密に取り入れた量子シミュレーションを行うことで、従来の第一原理計算では取り込むのが困難だった電子相関の効果を取り込むことができる手法が開発された。本研究ではこの手法を用いて第一原理的な計算を行っている。

(注3) **電荷感受率**：電子密度の変化のしやすさをあらわす物理量のこと。電子密度のゆらぎが大きくなると、電子密度は平均電子密度から局所的に大きくずれやすくなる。極端な場合には、電子密度が濃いところと薄いところに分離する。この現象を相分離とよぶ。この電子密度の疎密（相分離）の生じやすさが電子の間に働く引力を生み、超伝導の起源となることを本研究は示している。

(注4) **変分モンテカルロ法**：物質の状態を量子力学的に表現する波動関数を表すためにいくつかの変数（変分パラメータ）を導入して、最もエネルギーの低い状態になるようにその変数を最適化する方法。本研究では実験において十分低温に対応する計算を行うことで超伝導の安定性を調べた。この最もエネルギーの低い状態が絶対零度で実現することが統計力学から示されている。最適化の際に用いる物理量を計算するときに、モンテカルロ法と呼ばれる乱数を使用する統計サンプリング手法を用いていることから、この方法は変分モンテカルロ法と呼ばれている。近年の計算機の急激な進歩にともなって変分波動関数の自由度（変分パラメータの数）を大幅に増やすことが可能になり、非常に精度の高い計算が行えるようになっている。本研究では、世界的に見て、今までに行われた計算のなかで、最大規模の変分パラメータを導入した高精度の計算を行っている。今回の計算で

十分低温での鉄系超伝導体の相図（電子濃度の変化に対する状態の変化）を再現できることが示された。

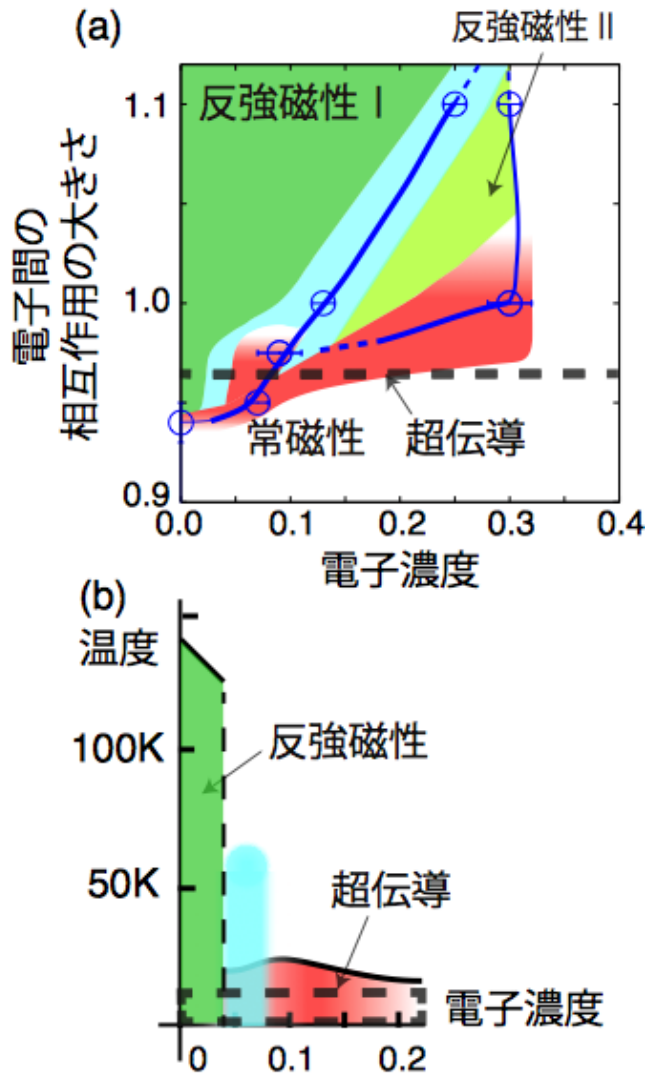
（注5）反強磁性：固体中の電子が持つ微小な磁石であるスピンの向きが逆（N極とS極の向きが逆）に整列した状態。鉄系超伝導体と銅酸化物高温超伝導体の多くの物質で、超伝導が生じる電子濃度の近くにこの反強磁性体が見ついている。

（注6）一次相転移：相の変化にともなって物理量が不連続に変化する転移のこと。一次相転移の一番身近な例は水を熱すると水蒸気になるような気体-液体相転移である。気体-液体相転移近傍では水の粒子数密度が不連続に変化する。この不連続な変化を反映して粒子密度のゆらぎ（注3参照）が一次相転移近傍で増大することがある。これと同様に、鉄系超伝導体では反強磁性の一次相転移の近くで電子密度のゆらぎが増大する。本研究では、その電子密度ゆらぎの増大が超伝導の発現と一対一対応していることが示された。

（注7）強相関電子系：電子間のクーロン相互作用の効果が強く表れる物質群のこと。銅酸化物、鉄系超伝導体はともに強弱の違いはあれ、この物質群に属する。

8. 添付資料：

図1：鉄系超伝導体 LaFeAsO の理論模型に対する相図

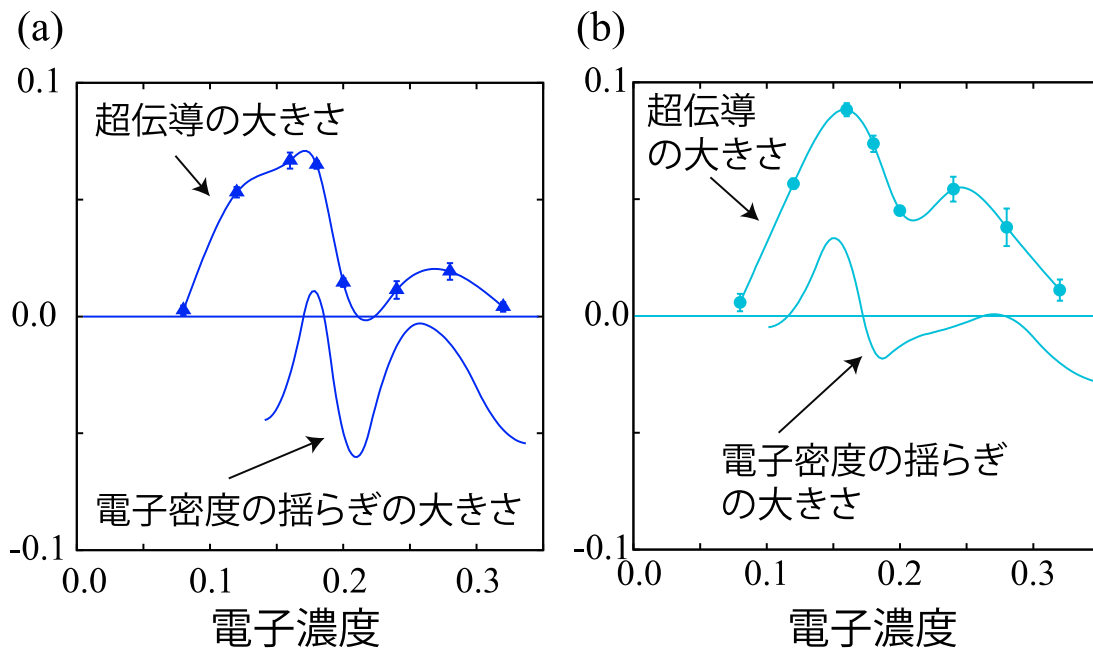


(a)鉄系超伝導体 LaFeAsO の計算から得られた相図（電子密度の変化）。縦軸に電子間の相互作用の大きさをとり、横軸に電子濃度（空間平均した電子密度）をとっています。縦軸の大きさは電子間に働く全ての相互作用を一様に変化させる倍率を表しています。青い実線が反強磁性の一次相転移が起きる位置を表しており、その近くで電子濃度が不均一になる相分離（図の水色の領域）が生じます。電子濃度が大きい側の一次相転移の近くでは相分離を覆い隠すように超伝導（赤の領域）が生じています。この対応は、一次相転移の近くで増大する電子濃度の空間的なゆらぎの増大が超伝導を引き起こしていることを示しています。なお超伝導が存在しているけれども、ほかの相との競合に勝てない、「隠れた超伝導相」が存在していますが、この図では示していません。たとえば水色の相分離領域はこの電子濃度を仮に実現できれば超伝導が存在することが図2から読み取れます。「隠れた超伝導相」も含めると、青い実線の周りに

必ず超伝導が広がっています(図 2 参照)。「隠れた超伝導相」をいかにより安定な超伝導に転換するかが今後の大きな課題として浮かび上がります。

(b)LaFeAsO に電子を加えた実験の相図の概要[H. Luetkens *et al.*, Nat. Mater. **8** 305, (2009) と G. Lang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104** 097001 (2010)を参考にした]。絶対零度のための理論計算で得た相図(a)の黒点線部分が領域が実験の十分低温(黒点線領域)での相図とよく対応します。

図 2: 超伝導と電子密度のゆらぎの相関関係



超伝導の大きさを表す量と電子密度のゆらぎの大きさ(正確には電荷感受率(電子密度感受率の逆数を-0.5倍したもの)を電子濃度の関数として図示したもの。電荷感受率が大きいということは電子密度のゆらぎが大きいことを意味しますが、図に表示した量は大きく負であればあるほど、密度のゆらぎは小さく、負からゼロに近づくにつれゆらぎが大きくなり、正になると系が不安定になるほどにゆらぎが増大し必ず密度の異なる2つの相に相分離することを示します。このゆらぎの増大と超伝導の大きさの傾向が対応していることがわかります。(ただし相分離してしまう場合はその電子濃度の領域は実際には実現できません。相分離領域の超伝導の大きさは仮に一樣な濃度を保った場合の結果を「隠れた超伝導」も含めて示しています。)左図は図1の(a)で相互作用の大きさが1の場合。この左図は電子間の相互作用が同一原子内の電子間にも、異なる原子内の電子間にも働いている場合ですが、右図は同一原子内の電子間相互作用はそのままにして、異なる原子の電子間相互作用のみを0に設定して行った計算結果です。この左図の超伝導の大きさが正の値を持っているところと、図1の相互作用の大きさが1のところの超伝導領域(赤色部分)が、電子濃度が0.1から0.2にかけて一致していません。この部分では超伝導相は存在しているけれども、超伝導でない相のほうのエネルギーが低く、超伝導相は準安定であること(これを「隠れた超伝導」とよんでいます)が一見ずれて見える理由です。この2つの場合に限らず、さまざまに相互作用を制御すると、電子密度のゆらぎが大きい電子濃度は大きく動きますが、その場合も例外なく対応して超伝導が生じることを発見し、超伝導機構の証拠が見つかりました。