

Title	三元水素化物高温超伝導体の情報科学的構造探索
Author(s)	宋, 鵬
Citation	
Issue Date	2023-09
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10119/18775">http://hdl.handle.net/10119/18775</a>
Rights	
Description	Supervisor: 前園 涼, 先端科学技術研究科, 博士

氏名	宋鵬		
学位の種類	博士 (情報科学)		
学位記番号	博情第 510 号		
学位授与年月日	令和 5 年 9 月 22 日		
論文題目	Data scientific structure search for ternary hydride high-temperature superconductors (三元水素化物高温超伝導体の情報科学的構造探索)		
論文審査委員	前園涼	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	大島義文	同	教授
	岡田将吾	同	准教授
	本郷研太	同	准教授
	小口多美夫	大阪大学	特任教授

## 論文の内容の要旨

Superconducting hydrides have attracted significant attention in recent years due to their potential for achieving high-temperature superconductivity under high-pressure conditions. The discovery of high-temperature superconductivity in hydrogen-rich materials, such as sulfur hydride (H<sub>3</sub>S) and phosphine (PH<sub>3</sub>), has spurred extensive research efforts to explore novel superconducting hydride materials with the aim of understanding the underlying mechanisms and optimizing their properties for practical applications. Ternary hydrides, comprising multiple metal elements and hydrogen, offer promising candidates for further investigation due to their complex compositions and the possibility of fine-tuning their electronic and structural properties. In this context, this thesis focuses on the investigation of ternary hydrides composed of lanthanum, yttrium, magnesium, scandium, and cerium to uncover new stable phases with enhanced superconducting transition temperatures.

In the La-Y-H system, we investigated their phase and structural stabilities under high pressure using a genetic algorithm and ab – initio calculations. Our study revealed that  $Pm\bar{3}m$ -LaYH<sub>12</sub> was unstable and identified new stable crystal structures, such as  $Cmmm$ -LaYH<sub>12</sub> and  $Cmmm$ -LaY<sub>3</sub>H<sub>24</sub>. The  $Cmmm$  phases exhibited a  $T_c$  of approximately 140 K due to their extremely high electron-phonon coupling constant, with an increased  $T_c$  in  $Cmmm$ -LaY<sub>3</sub>H<sub>24</sub> attributed to the chemical pressure of Y.

For the YMgH<sub>x</sub> system, the investigation probed the structural stabilities of high-pressure YMgH<sub>x</sub> phases and their superconductivities using an evolutionary-algorithm-based crystal search combined with first-principles calculations. The study identified several stable and metastable phases, with high- $T_c$  values ( $\geq 77$  K) predicted for H-richer phases, such as  $P4/mmm$ -YMgH<sub>8</sub> (124 K at 300 GPa),  $Cmmm$ -YMgH<sub>12</sub> (152 K at 250 GPa), and  $Fd\bar{3}m$ -YMgH<sub>12</sub> (190 K at 200 GPa). These phases feature clathrate structures composed of H<sub>14</sub>, H<sub>18</sub>, and H<sub>24</sub> cages.

The Mg<sub>x</sub>Sc<sub>y</sub>H<sub>z</sub> system was examined under high pressure ( $100 \leq P \leq 200$  GPa), resulting in the identification of four thermodynamically stable compounds in the hydrogen-middle range, including  $R\bar{3}m$ -MgScH<sub>6</sub>,  $C2/m$ -Mg<sub>2</sub>ScH<sub>10</sub>,  $Immm$ -MgSc<sub>2</sub>H<sub>9</sub>, and  $Pm\bar{3}m$ -Mg(ScH<sub>4</sub>)<sub>3</sub>. Among them,  $R\bar{3}m$ -MgScH<sub>6</sub> was predicted to exhibit the highest  $T_c$  (i.e., 41 K) at 100 GPa.

In the Y-Ce-H and La-Ce-H systems, the study employed the evolutionary-algorithm-based crystal structure prediction method and first-principles calculations to investigate stability and superconductivity under high pressure. Several stable phases were identified, with  $T_c$  values predicted using the Allen-Dynes-modified McMillan formula to be 122 K for  $R\bar{3}m$ -YCeH<sub>20</sub> at 300 GPa, 116 K for  $R\bar{3}m$ -LaCeH<sub>20</sub> at 250 GPa, and 173 K for  $P\bar{6}m2$ -YCeH<sub>18</sub> at 150 GPa. The pressure required to stabilize  $P\bar{6}m2$ -YCeH<sub>18</sub> can be reduced to 150 GPa, suggesting an accessible condition for its high-pressure synthesis.

This comprehensive study offers valuable insights into high-temperature superconducting materials and their potential applications. The identification of stable and metastable phases in these ternary hydride systems and the prediction of their superconducting transition temperatures enhance our understanding of these materials.

**Keywords:** First-principles calculation, Pressure effects, Structural properties, Hydride, Superconducting phase transition

### 論文審査の結果の要旨

高い転移温度をもった高温超伝導体は、電気伝導におけるエネルギーロスの究極的抑制を実現する舞台である。この理由から高温超伝導体の探索は社会的インパクトも大きく、古くから精力的に研究されている課題である。近年はデータ科学的探索が大きく取り入れられ、その予測に基づいて新規物質が実際に合成されるなど、マテリアルズインフォマティクスの代表的研究対象となっている。特に本研究が対象とした水素化物高温超伝導体は、物理機構に関する根本的な学説論争が少なく、純粋にデータ探索という側面に傾注して研究が大きく進展している。化合物の探索は、しかしながら、元素種が多様化することで容易に計算爆発を引き起こす。このため先行研究は、探索空間の小さい二元化合物にのみ限定して行われてきた。

本研究は、二元化合物を超えた多元化合物に対して、如何なる方略で物質探索を行うかについて挑戦を展開したものである。二元化合物探索で確立された手法を三件化合物に適用しても容易に計算爆発を引き起こし、物質探索を成功させることはできない。申請者はこれに対し、探索に用いる遺伝的探索アルゴリズムにおける目的関数の特性に注目し、探索対象の単位胞体積に急激な変化が生じないような探索線選択を行うという着想を得た。これにより目的関数は比較的滑らかに変動して探索の成功率を上げることができる。この方策により、申請者は次々と三元水素化物高温超伝導体の新規構造発見を成し遂げた。その結果は高く評価され、高インパクトな学術誌に筆頭原著論文として採録されている[下記いずれも筆頭原著、Q1 ジャーナル、うち Top10%、Top5%にそれぞれ 1 報; Mater. Today Phys. 28, 100873 (2022); J. Phys. Chem. C 126, 2747 (2022); Adv. Theory Simul. 5, 2100364 (2022); Chem. Mater. 33, 9501 (2021)]。

以上、本論文は社会的インパクトの大きい高温超伝導体の結晶構造探索にデータ科学的探索手法を適用し、申請者独自の着想によって新材料予見を次々と成功させた研究であり、最先端の大規模シミュレーションを駆使したシミュレーション科学の地平拡大に大きく貢献する新たな知見を提供した業績として学術的に貢献するところを認め、よって博士(情報科学)の学位論文として十分価値あるものと判断した。