

令和 3 年 6 月 24 日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17K05499

研究課題名（和文）QSGW法を基にした第一原理多体摂動理論によるフォノン物性の予測

研究課題名（英文）Prediction of the phonon-related physical phenomena based on the first-principles many-body perturbation theory in the QSGW method

研究代表者

小谷 岳生（KOTANI, Takao）

鳥取大学・工学研究科・教授

研究者番号：60283826

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）：半導体の特性を決める重要因子である移動度などを第一原理計算をもとにして汎用的に行える手法を、現状の方法よりはるかに信頼性の高い方法に高めるのが当初予定であった。しかし研究を進展させていくと、当初予定の計算手法における問題点が発覚した。そこで研究後半では、この方法のために開発してきた計算高速化手法や高解像度計算法を転用し、スピンゆらぎ計算などの方法に活用する研究を押し進め一定の成果を得た。とくにスピンゆらぎ計算では原子レベルでの磁性応答のシミュレーションを高度化するための基礎物理量を得る計算が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

当初計画のとおりには進まなかった。しかしながら、計算フォノン計算とQSGW法を組み合わせる際の問題点は明らかになり、将来的にこの方向での手法開発に再度チャレンジするときに役に立つ成果であると考えている。研究後半では、この際に開発した誘電関数計算の手法を転用して構築したスピンゆらぎ計算法や高速化したQSGW法、モデルハミルトニアン構成法を用いて成果を出した。とくに高解像度のスピンゆらぎ計算が可能となったがこれはマグネシウムの基礎をなすものであり将来性が期待される。またモデルハミルトニアン構成法はNi系超伝導体の理論解明に役立った。

研究成果の概要（英文）：Mobility is one of the important factor to determine the quality of semiconductors. Our original plan is to develop a new method to calculate such quantities base on our own quasiparticle self-consistent GW method. Thus the method should become more reliable than available methods now. However we found a problem of the original plan when we are developing the method. Thus we try to use numerical computation techniques developed for the method in other thesis. Along this line, we have developed a new method to calculate spin fluctuation. This should be very useful to give fundamental quantities to perform atomistic magnetic simulations.

研究分野：電子状態計算

キーワード：フォノン 誘電関数 スピン波 モデル化手法 QSGW法

1. 研究開始当初の背景

電子格子相互作用を扱う第一原理計算が F.Giustino 他 Phys.RevB76(2007)165108 を皮切りとして盛んに行われ計算技術の進展にともない多様な系への適用が可能となってきた。2016年には、複数のグループから GaAs の第一原理移動度計算が報告された。ただし、この方法では、GGA 計算の与える実験の 1/3 程度の電子有効質量を用いた計算になっており、その計算法の信頼性には疑問が残る。標準的手法の GGA 法ではバンドギャップとともに電子有効質量がうまく記述ができないためである。また、NiO などの遷移金属酸化物などにおける移動度の記述においては GGA によるバンド構造をもとにした計算はおよそ不可能である。もし第一原理計算により汎用的な移動度計算ができれば、バルクはもとより界面や表面の計算にも適用でき非常に重要な手法となりえる。

2. 研究の目的

電子格子系を扱う汎用的手法を確立するには対症療法の補正法でなく電子系の素励起を正しく記述する準粒子自己無撞着法 (QSGW 法) を基礎に据えた方法を構築すべきである。本研究の当初計画では、分極応答関数による格子振動・電子格子相互作用の評価法を構築し、QSGW 法と組み合わせた方法の構築を目指した。

しかし当初計画ではうまく行かないことが判明し、研究後半ではこの当初の目的のために開発した数値計算手法を誘電関数のバーテックス補正やスピンゆらぎ計算の方法に転用して結果を出すべきであると考えそれを目的とした。

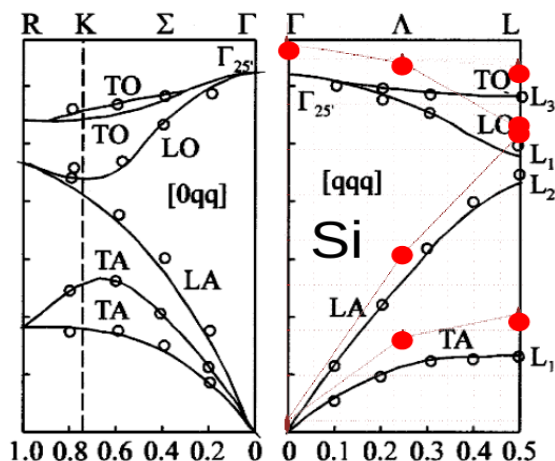
3. 研究の方法

当初研究目的については、原子核が移動する自由度を考慮した分極関数から電子密度の応答関数を求める必要がある。計算プログラムを作成しそれを得る部分を開発しフォノン計算の検証を行った。

また研究後半の目的については、それぞれの課題について、前半で作成したプログラムを適宜改良して計算を行った。

4. 研究成果

当初研究方法に従い、プログラムを作成し計算した結果、当初予定を修正して交換相関項の寄与を無視せずに取り入れれば C (ダイヤモンド) や Si ではフォノン分散がそれなりの精度で得られることがわかった。研究過程で Si 構造を安定化させるには、交換相関項が非常に重要な役割を果たしていることも理解できた。交換相関項なしでは、Si のような構造は不安定化するのである。右図の赤丸は Si のフォノン分散関係を既存研究 (実験の小さな○と理論計算がよく一致) に重ねたものである。赤丸の我々の計算には ~10% 程度以上の誤差がある。C での一致はもっと良好であるが、Ge では不一致はかなり大きくなる。これは実装した計算手法において問題があること意味している。



Si のフォノン分散の計算：(我々の計算結果を既存の結果の上に赤丸で示した。

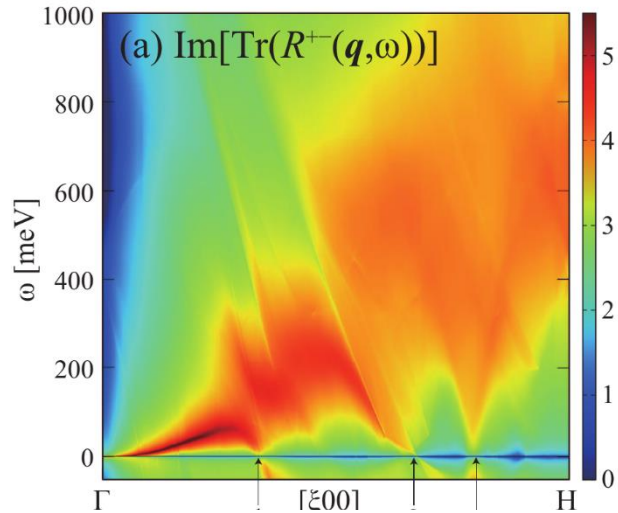
手法を吟味し直したが、結局、密度応答関数をより正確に取り扱う必要があることが判明した。実際、最適化有効化ポテンシャルにおける応答関数では、Puley 項と基底応答項を導入すべきことが示されており (M.Betzinger et al. Phys. RevB85, 24124(2011))、理論的な検討を行い、これらの項をフォノン計算にも導入すれば十分な数値計算精度を得ることができるだろうという結論に達した。しかしながら、この方向に進展させても現状のプログラム技術においてはかなり煩雑な手法になってしまう。また世界的に見て格子振動の研究手法がかなり進展し容易に取り扱えるものとなってきている。これらを考慮に入れると、QSGW 法によるバンド計算の結果をもうすこし単純な方法で既存計算法と組み合わせるか現在用いているバンド計算法における摂動法を考案して電子格子相互作用を取り入れていく手法を模索する必要があると考えるに至っ

た。しかし、それを構築していくことの困難さを考え、これらの計算技術を転用して結果を考えるほうがよいと考えるにいたった。

そこで、研究後半では、その転用により分極関数におけるバーテックス補正の評価、スピンゆらぎ、二次元ファンデルワールス系、超伝導物質などへの研究の展開を試み論文を出版した。

バーテックス補正の研究 (H Sakakibara, T Kotani, M Obata, T Oda, *Physical Review B* 101 (20), 205120) においては QSGW 法におけるバーテックス補正項の大きさについての数値的計算をスラブモデルの QSGW 計算を用いて行った。このバーテックス補正は交換相関項に対応するものである。QSGW 法においてはこのバーテックス補正効果はかなり大きいこと、それを取り入れれば精度のよい計算が可能になることが示された。このスラブモデルに電場をかけるときに用いる有効遮蔽媒質法の実装に関しては金沢大学の小幡・小田氏の協力を得た。また米国 AMES Lab の Ke Liqin 氏のグループと共同で二次元ファンデルワールス系への QSGW 法の適用を行った (Y Lee, T Kotani, L Ke *Physical Review B* 101 (24), 241409)。得た計算結果は実験結果をよく説明するものであった。同時に、よく使われる DFT+U 法の適用限界と問題点を明らかにするものでもある。これらの計算においては、本研究前半で構築した計算効率化の手法を有効に役立てることができた。

また、大阪大学の奥村・佐藤氏と共同でスピンゆらぎ計算の手法を構築した。基本的部分ではフォノン計算法との共通性が高い方法であり、前半部分で構築した手法を有効に活用することができた。とくに最近、フォノン分散を高解像度で計算する際に考案した手法を活用して、右図のような高解像度でのスピンゆらぎ計算を可能にすることができた。この手法により、原子レベルでのスピンダイナミクスを行うための情報も抽出することが可能であると考え研究を押し進めることを考えている。



Fe のスピンゆらぎスペクトル (LDA 計算)。低エネルギーにはスピン波励起が見える。複数のストーナー励起境界とは反発的な混成が起こっている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sakakibara Hirofumi, Kotani Takao	4. 巻 99
2. 論文標題 Model-mapped random phase approximation to evaluate superconductivity in the fluctuation exchange approximation from first principles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.195141	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 Okumura H., Sato K., Kotani T.	4. 巻 100
2. 論文標題 Spin-wave dispersion of 3d ferromagnets based on quasiparticle self-consistent GW calculations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.054419	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 Okumura Haruki, Sato Kazunori, Suzuki Katsuhiko, Kotani Takao	4. 巻 89
2. 論文標題 Electronic Structure and Spin-wave Dispersion of Cu ₂ MnAl, Ni ₂ MnSn, and Pd ₂ MnSn Based on Quasiparticle Self-consistent GW Calculations	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 034704 ~ 034704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.034704	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 Sakakibara Hirofumi, Kotani Takao, Obata Masao, Oda Tatsuki	4. 巻 101
2. 論文標題 Finite electric-field approach to evaluate the vertex correction for the screened Coulomb interaction in the quasiparticle self-consistent GW method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.205120	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 Lee Y., Kotani Takao, Ke Liqin	4. 巻 101
2. 論文標題 Role of nonlocality in exchange correlation for magnetic two-dimensional van der Waals materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.241409	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 該当する

1. 著者名 Sakakibara Hirofumi, Usui Hidetomo, Suzuki Katsuhiko, Kotani Takao, Aoki Hideo, Kuroki Kazuhiko	4. 巻 125
2. 論文標題 Model Construction and a Possibility of Cupratelike Pairing in a New d9 Nickelate Superconductor (Nd,Sr)NiO2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.077003	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 -

〔学会発表〕 計4件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Hirofumi Sakakibara, Takao Kotani, Masao Obata, and Tatsuki Oda
2. 発表標題 A finite electric-field approach to evaluate the vertex correction for the screened Coulomb interaction in the quasiparticle self-consistent GW method
3. 学会等名 Asian workshop (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小谷岳生
2. 発表標題 信頼性の高い独立粒子近似を与えるQSGW法とモデル化手法
3. 学会等名 物性研究所短期研究会 「量子多体計算と第一原理計算の新展開」 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小谷岳生、榊原寛史
2. 発表標題 ブリルアンゾーンでの周期性をみたく短縮平面波基底
3. 学会等名 日本物理学会2020秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小谷岳生
2. 発表標題 誘電関数法を用いたフォノンの第一原理計算法
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分担者	榊原 寛史 (SAKAKIBRA Hirofumi) (20734354)	鳥取大学・工学研究科・助教 (15101)	

	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
研究 協力者	佐藤 和則 (SATO Kazunori)	大阪大学	
研究 協力者	奥村 晴紀 (OKUMURA Haruki)	東京大学	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	小田 竜樹 (ODA Tatsuki)	金沢大学	
研究協力者	小幡 正雄 (OBATA Masao)	金沢大学	
研究協力者	黒木 和彦 (KUROKI Kazuhiko)	大阪大学	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関