

平成 22 年 5 月 10 日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2010

課題番号：19540399

研究課題名（和文） 拡張された制限つき探索理論を用いた新しいバンド計算手法の研究

研究課題名（英文） Development of a new scheme of energy-band calculation on the basis of the extended constrained-search theory

研究代表者 樋口 雅彦 (HIGUCHI MASAHIKO)

信州大学・理学部・准教授

研究者番号：10292202

研究代表者の専門分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：拡張された制限つき探索理論，対密度，電子相関，交換相関エネルギー汎関数，総和則，超伝導，有限温度，電流密度汎関数理論

1. 研究計画の概要

本研究では、われわれが開発した「拡張された制限つき探索理論」（ECS理論）を、強相関電子系など多様な系に適用できる形に発展・拡充させることが目的である。具体的には、

- (1) バンド理論による電子相関の描写範囲の拡大
⇒ 対密度を基本変数に選んだECS理論
- (2) 時間に依存した物理現象の予言のための理論構築
⇒ 動的事象、励起状態
- (3) 有限温度における物理量の予言のための理論構築
⇒ 超伝導の第一原理的扱い
- (4) 実際の物質群、特に強相関系に適用しその有効性も検証
⇒ beyond LDA (post LDA) を実現することである。

2. 研究の進捗状況

(1) 対密度を基本変数に選んだ ECS 理論

①電子相関の描写範囲の拡大を目指して、基本変数として対密度を選んだ ECS 理論を構築した。この理論では、探索範囲の制限があるものの、相関効果を明確に含んだ N 表示可能な対密度が得られる。その意味で、この理論は波動関数理論のハートレー・フォック近似に相当する「有効初期理論」(Physica B **387**, 117 (2007), Phys. Rev. B **78**, 125101 (2008))と見なせるものである。

②「有効初期理論」の有効性を確認するため

に、原子構造計算を実行した。その結果、相関エネルギーの約 20%を再現することがわかった。(Phys. Rev. B **78**, 125101 (2008), J. Phys. Condens. Matter **21**, 064206 (2009))。

③さらに「有効初期理論」を超え、本研究では新しい試みとして「素朴展開・対密度理論」を構築した(Phys. Rev. B 投稿中)。定式化のみならず、原子系に適用してその有効性を検証した(数値計算の実行)。「有効初期理論」を超えて相関を取り込むことは確認できたが、その一方で、運動エネルギー汎関数の近似形の限界が如実に現れることが判明した。

(2) ECS 理論における交換相関エネルギー汎関数の開発

オリジナルの密度汎関数理論の発展の歴史を見ればわかるように、われわれの ECS 理論の発展に不可欠でかつ第一の要素は「適用可能な交換相関エネルギー汎関数の開発」である。そのために本研究では、交換相関エネルギー汎関数が満たす総和則を導出し、それらを制限条件に交換相関エネルギー汎関数の近似形の開発を進めている。

これまでに ECS 理論の交換相関エネルギー汎関数が満たす総和則を電子座標のスケールリングと漸近接続の手法により発見した(Phys. Rev. B **75**, 195114 (2007), Phys. Rev. A **79**, 022113 (2009), Phys. Rev. A **81**, 042505 (2010))。これらのうち4つの総和則については、ECS 理論のみならず、密度汎関数理論のレベルでも新しいものである。

(3) 常磁性電流密度を基本変数に選んだ ECS 理論

常磁性電流密度を基本変数に選んだ ECS

理論は、電流が誘起された系の基底状態を記述するのに有用であるだけでなく、磁場下超伝導物質の基底状態を第一原理的に扱う理論を構築する第一段階としても重要である。

これまでに(2)で得られた関係式および研究期間以前に得ていた総和則を制限条件として用い、交換相関エネルギー汎関数の近似形として vorticity 展開近似式 (以下、VEA) を開発した(Phys. Rev. B **74**, 195122 (2006), Phys. Rev. B **75**, 159902(E) (2007))。さらに VEA の有効性を評価し、VEA は従来の局所密度近似よりも振る舞いの良い近似であることを確認した(Phys. Rev. B **75**, 195114 (2007), Phys. Rev. A. **79**, 022113 (2009))。

(4) ECS 理論の超伝導への適用

①有限温度における物理量を予言できる形へ ECS 理論を拡張した。さらに、超伝導現象に適用すべく、ECS 理論ベースのポゴリューボフ-ドジャン方程式も導出した。

②この新しいタイプの方程式でカギとなるのは、通常の DFT 同様に、交換相関ポテンシャルの近似形の開発である。これまでに、この近似形の開発に必要な交換相関エネルギー汎関数の総和則を導いた。それをもとに我々は、交換エネルギーの近似形を提案し、 S_n に適用した。BCS からのずれを補正する結果が得られた。相関エネルギーについても、我々はノーマル状態での近似形の開発には経験があり(Phys. Rev. A **81**, 042505 (2010))、これを応用すれば超伝導状態での相関エネルギーの近似形の開発は十分に可能である。

(5)動的 ECS 理論とその適用

これまでに時間に依存した任意の物理量を基本変数に取り得る形に ECS 理論を拡張した。基本的な理論的枠組みは開発したので、有効理論を構築するためにどのような物理量を基本変数に選ぶかという段階である。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している

(理由)

(1) バンド理論による電子相関の描写範囲の拡大に関しては、当初予定していた対密度を基本変数に選んだ ECS 理論(2.の(1)の①と②)は既に完了した。さらに続く発展理論も既に提案し、有効性の実証も始まっている(2.の(1)の③)。従って、本テーマについては「当初の計画以上に進展している」と言えよう。

(2) 時間に依存した物理現象の予言のための理論構築に関しては、理論的な整備はおおよそ完了した状況である。よって、「おおむね順調に進展している」と言えよう。

(3) 有限温度における物理量の予言のための理論構築に関しては、理論的な整備は完了し、具体的な数値計算(超伝導状態の S_n のテスト計算)も始まっている。よって、「おおむね順調に進展している」と言えよう。

(4) 実際の物質群への適用に関しては、孤立原子系への適用まで来ている。「やや遅れている」のは、周期系での理論の実証である。これは、孤立原子系といえども、全くオリジナルのプログラムコードを開発する必要があり、膨大な労力をそこに費やしてきたためである。

4. 今後の研究の推進方策

世界の趨勢を見たとき、ECS 理論の超伝導への適用を加速しなくてはならないと思う。超伝導の転移温度を、第一原理計算から精度良く見積もる例が海外では報告されるようになってきており、我々の理論がそれらを超えること実証する必要がある。カギとなるのは、上述したようにオリジナルの交換相関エネルギー汎関数の近似形である。

さらに、既に検討済みの常磁性電流密度を基本変数に選んだ ECS 理論(電流密度汎関数理論)を超伝導状態が扱える形式に拡張し、転移温度のみならず臨界磁場まで予言できる理論を開発したいと考えている。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 19 件)

① M. Higuchi and K. Higuchi, “Sum rules for the exchange-correlation energy functional of the extended constrained-search theory: application to checking the validity of the vorticity expansion approximation of the current-density functional theory”, Phys. Rev. A. **81**, 042505 (2010). 査読有

② K. Higuchi and M. Higuchi, “Kinetic energy contribution to the exchange-correlation energy functional of the extended-constrained search theory”, Phys. Rev. A. **79**, 022113 (2009). 査読有

③ M. Higuchi and K. Higuchi, “A pair density functional theory utilizing the noninteracting reference system: an effective initial theory”, Phys. Rev. B. **78** 125101 (2008). 査読有

[学会発表] (計 23 件 (うち招待講演 4 件))

① (招待講演) M. Higuchi and K. Higuchi, “Computational pair density functional theory”, The 2nd International Symposium and Workshop on Correlated Electrons in Matter, 2009/4/2, Gatlinburg, USA.

② (招待講演) K. Higuchi and M. Higuchi “Calculation of the ground-state pair density on the basis of the computational pair density functional theory”, International Workshop on Frontiers in Density Functional Theory, 2009/9/15, New York, USA.