

平成21年6月22日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2008

課題番号：19019013

研究課題名（和文） 強相関電子系のための第一原理計算手法の開発

研究課題名（英文） Development of first-principles methods for strongly-correlated electron systems

研究代表者 三宅 隆 (MIYAKE TAKASHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・計算科学研究部門・主任研究員

研究者番号：30332638

研究成果の概要：電子相関

標準的な第一原理電子状態計算法である密度汎関数法が不得手とする電子相関の強い系に対応する計算法の開発を目的として研究を行った。多体グリーン関数理論に基づいた GW 近似のプログラムを並列化して単位胞に 1 2 原子含む遷移金属酸化物 VO₂ へ適用した。また密度汎関数法から出発して最局在ワニエ関数と制限 RPA 法を組み合わせ有効モデルを導出する方法を開発し、鉄砒素系超伝導体の母物質などへ適用した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,600,000	0	1,600,000
2008 年度	1,700,000	0	1,700,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	0	3,300,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：第一原理計算、電子相関

1. 研究開始当初の背景

密度汎関数理論に局所密度近似 (LDA) を組み合わせた方法は、広範な物質群で成功を収めてきたが、同時にその不備も明らかになってきた。よく知られた半導体のバンドギャップを過小評価する問題に対しては、多体グリーン関数理論に基づいた GW 近似が一定の成果を挙げている。しかし電子相関の強い系に

対しては、通常行われている LDA を出発点とした GW 法では不十分であることも指摘されている。

2. 研究の目的

強相関電子系のための beyond LDA/ beyond GW の試みはいくつか考えられる。一つは、GW 近似の範囲内で出発点となる 1 体軌道を改善することが挙げられる。この方法を遷移金属

酸化物等に適用し、その妥当性を調べることを目的の一つとする。また LDA を出発点に格子模型を導出して、得られた模型を各種の多体論的手法で解く試みも有望な方法であると考えられる。本研究では、実用的な格子模型導出の方法の確立を目指す。

3. 研究の方法

GW 法に関しては Full-Potential LMTO 法による GW プログラムを並列化して遷移金属酸化物に応用する。出発点となる 1 体ハミルトニアンとして LDA 以外のものも試し、結果が改善するか検討する。

格子模型導出に関しては LDA によるバンド計算結果から出発して最局在させたワニエ関数の方法により局在軌道を構成して狭いヒルベルト空間に対する 1 体ハミルトニアンを導く。次に制限 RPA 法で有効電子間相互作用パラメタを算出する。

4. 研究成果

(1) VO₂ の GW 計算

ペロブスカイト型酸化物など複雑な結晶構造の GW 計算を行うためにプログラムを並列化・整備して VO₂ に適用した。その結果、自己エネルギーの周波数依存性が強く、通常の半導体で妥当な線形近似（自己エネルギーの周波数依存性を LDA の固有値の周りで線形にする近似）が破綻することがわかった。絶縁相は通常行っている密度汎関数法の解を出発点とした非自己無撞着計算では再現できず、自己エネルギー効果を反映して波動関数と 1 電子準位を更新する必要があることがわかった。また、LDA と cluster DMFT を組み合わせた解析も行った。絶縁相のスペクトル関数が静的な自己エネルギー補正を加えた準粒子バンド構造でよく再現できるのに対し、金属相は準粒子バンドで記述できないサテライト構造が顕著で、金属相の方が相関効

果が強く見えるという結果を得た。

(2) 有効パラメタ計算

LDA+U、LDA+DMFT による強相関係のバンド計算や格子模型を用いた理論解析において、ハバード U や交換相互作用 J は重要なパラメタである。これらを決定する方法として制限 RPA 法が考案されている。制限 RPA では、局在軌道からなるバンド間の遷移を排除して分極率を求め、基底によらない（制限付き）遮蔽相互作用 $W(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を定義する。次に局在軌道を導入して W の行列要素として U や J を求める。このため、異なるサイト間の相互作用や軌道の添字に関する非対角項を容易に計算できる。本研究では局在軌道として最局在ワニエ関数を用いた方法を開発した。方法の妥当性を確かめるために、LMTO-ASA が良い基底と考えられる 3d 遷移金属にこの方法を適用して、LMTO-ASA と最局在ワニエ関数で有効パラメタがよく一致する結果を得た（図 1）。

また、ワニエ関数の任意性を調べるために、最局在ワニエ関数を出発点としてユニタリー変換して U の値が最大になるようにワニエ関数を再構成する方法を考案した。3d 遷移金属に適用した結果、二つのワニエ関数で U の変化が 1 meV 以下であることがわかった。このことは、ワニエ関数の任意性は小さく、実用的なレベルでは問題にならないことを示唆している。

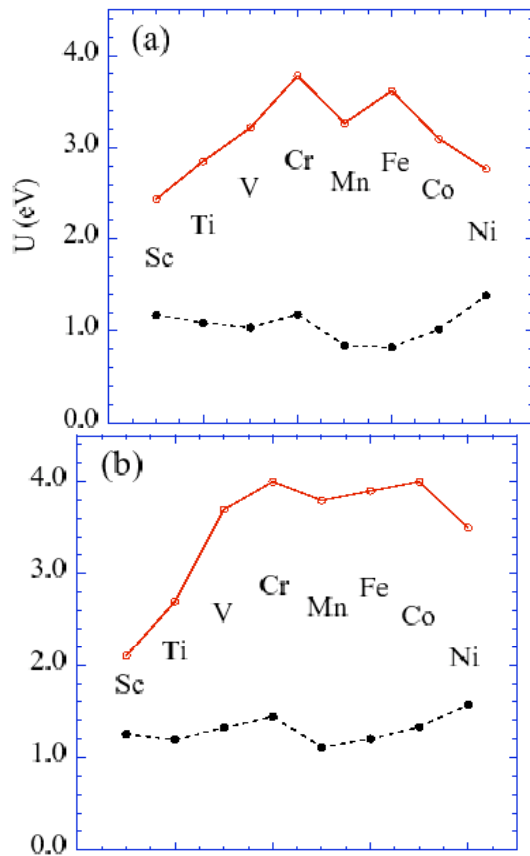


図 1. RPA および制限 RPA による 3d 遷移金属の遮蔽クーロン相互作用。(a) 最局在ワニエ関数と (b) LMTO-ASA による結果。

また 2008 年に発見された鉄砒素系の新超伝導体の母物質 LaFeAsO の有効パラメタ計算を行い、鉄 3d 電子のみ含む d モデルと砒素、酸素の p 軌道も含んだ dpp モデルの違いを議論した。

	v	U	J
d	15.99	2.92	0.43
dpp	20.31	4.83	0.61
$d-dpp$	20.31	3.69	0.58

表 1 : LaFeAsO の有効パラメタ。裸のクーロン相互作用 (v)、有効クーロン相互作用 (U) と有効交換相互作用 (J)。d, dpp はそれぞれ d モデルと dpp モデルでの値。d-dpp は d モデルの遮蔽相互作用と dpp モデルの最局在ワニエ

軌道から求めた結果。単位は eV。

5. 主な発表論文等

(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 9 件)

① “Effective Coulomb interactions of solids under pressure”, J. Tomczak, T. Miyake, R. Sakuma and F. Aryasetiawan, Phys. Rev. B (accepted) 査読有り

② “Downfolded Self-Energy of Many-Electron Systems”, F. Aryasetiawan, J.M. Tomczak, T. Miyake and R. Sakuma, Phys. Rev. Lett. **102**, 176402 (2009). (4 pages) 査読有り

③ “Quasiparticle band structure of vanadium dioxide”, R. Sakuma, T. Miyake and F. Aryasetiawan, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 064226 (2009). (4 pages) 査読有り

④ “d- and f-orbital correlations in the REFeAsO compounds”, T. Miyake, L. Pourovskii, V. Vildosola, S. Biermann and A. Georges, J. Phys. Soc. Jpn. **77** Suppl. C 99-102 (2008) 査読有り

⑤ “First-principles Study of Correlation Effects in VO2”, R. Sakuma, T. Miyake and F. Aryasetiawan, Phys. Rev. B **78**, 075106 (2008). (9 pages) 査読有り

⑥ “A new crystalline phase of four-fold coordinated silicon and germanium”, Y. Fujimoto, T. Koretsune, S. Saito, T. Miyake and A. Oshiyama, New J. Phys. **10**, 083001 (2008). (8 pages) 査読有り

⑦ “Effective bandstructure in the insulating phase versus strong dynamical correlations in metallic VO2”.

Jan M. Tomczak, Ferdi Aryasetiawan, and Silke Biermann. Phys. Rev. B **78**, 115103 (2008). (6 pages) 査読有り

⑧ “Generalized Hedin’s Equations for Quantum Many-Body Systems with Spin-Dependent Interactions”, F. Aryasetiawan and S. Biermann, Phys. Rev. Lett. vol **100**, 116402 (2008). (4 pages) 査読有り

⑨ “Screened Coulomb interaction in the maximally localized Wannier basis”, T. Miyake and F. Aryasetiawan, Phys. Rev. B vol **77**, pp.085122 (2008). (9 pages) 査読有り

[学会発表] (計 12 件)

① 「第一原理ダウンフォールディング法に基づく遷移金属酸化物界面 LaAlO₃/SrTiO₃の研究」, 平山 元昭, 三宅 隆, 今田 正俊, 日本物理学会, 第64回年次大会, 立教大学, 2009年3月30日.

② 「第一原理 GW 法に基づいた LaFeAsO の電子構造」, 三宅 隆, 有田亮太郎, 日本物理学会, 第64回年次大会, 立教大学, 2009年3月28日.

③ “Effective Coulomb Interactions under pressure - Realistic many-body models for MnO” Jan M. Tomczak, and Takashi Miyake, and Ferdi Aryasetiawan, AIST-Riken Joint Workshop on “Emergent Phenomena of Correlated Materials”, Okinawa, Mar. 4-7, 2009.

④ “First-principles GW study of LaFeAsO: Electronic structure and correlation effects”, T. Miyake and R. Arita, International Workshop on Iron Related high-T_c Superconductors (IRiSes2009), Tokyo, 2009年1月25日.

⑤ 「シリコンとゲルマニウムの四配位新物

質」, 藤本 義隆, 是常 隆, 三宅 隆, 齋藤 晋, 押山 淳, 日本物理学会 2008年 秋季大会, 岩手大学, 2008年9月23日

⑥ “Quasiparticle Band Structure of Vanadium Dioxide”, R. Sakuma, T. Miyake and F. Aryasetiawan, International Conference on Quantum Simulations and Design 2008, Tokyo, 2008年6月2日.

⑦ 「VO₂の第一原理計算」, 佐久間 怜, 三宅 隆, F. Aryasetiawan, 日本物理学会 第63回年次大会, 近畿大学, 2008年3月24日

⑧ “All-electron GW calculation of vanadium dioxide”, R. Sakuma, T. Miyake and F. Aryasetiawan, the March Meeting of the American Physical Society, New Orleans, March 13, 2008

⑨ “Wannier function approach to many-body problems”, T. Miyake, the 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (ASIAN10), Higashi-Hiroshima, 2007年10月29日.

⑩ 「材料の光吸収、バンドギャップを正確に計算する」, 三宅 隆, 計算科学シンポジウムー計算科学はイノベーションに寄与できるかー, 東京(丸の内), 2007年12月12日.

⑪ 「固体の光吸収スペクトルの第一原理計算」, 三宅 隆, P. Zhang, M. L. Cohen and S. G. Louie, 日本物理学会, 第62回年次大会, 北海道大学, 2007年9月21日.

⑫ “Wannier function approach to electronic excitation spectra”, T. Miyake, ISSP International Symposium on “Foundations and Applications of the Density Functional Theory”, Kashiwa, 2007年8月3日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三宅 隆 (MIYAKE TAKASHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・計算科学

研究部門・主任研究員

研究者番号：30332638

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

ARYASETIAWAN Ferdi

独立行政法人産業技術総合研究所・計算科学

研究部門・招聘研究員

研究者番号：90356387