

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340102

研究課題名(和文) トゥルーDMFTの開発 モット転移の第一原理計算

研究課題名(英文) Development of true-DMFT -first principles calculation of Mott transition-

研究代表者

赤井 久純 (Akai, Hisazumi)

東京大学・物性研究所・特任教授

研究者番号：70124873

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,600,000円、(間接経費) 1,380,000円

研究成果の概要(和文)：調整可能なパラメータを含まない第一原理に基づいて遷移金属化合物の電子状態を計算し、これらの物質が金属であるか非金属であるかを議論することを目的として、手法および計算機コードの開発を行った。第一段階としてクーロン積分を厳密に計算した最低次の既約自己エネルギーを用いて動的平均場近似を行うことを可能にするソルバーを開発し、第一原理電子状態計算を行うためのKKRグリーン関数法の計算機コードにそれを組み込んだ。これを磁性遷移金属に適用して、その妥当性を調べ、より高度な近似に対する方向性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：For the purpose of discussing the electronic structure of transition metal compounds, in particular their metallicity, from the first-principles, we have developed a scheme that combines the dynamical mean-field theory (DMFT) with the KKR-Green's function method. As a possible first step, we have implemented the lowest order proper self-energy for the Coulombic interaction to the scheme and developed a computer code for it. The method is completely free from adjustable parameters, such as Hubbard U, which have been normally used in so-called first-principles DMFT so far. Using this scheme we have examined the feasibility of the method by applying it to magnetic transition metals and given an outlook for possible further improvements.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：動的平均場近似 第一原理電子状態計算 KKRグリーン関数法 モット転移

1. 研究開始当初の背景

1970年代の終わりから本格化した局所密度近似 (LDA) およびその素朴な拡張である一般化勾配近似 (GGA) にもとづく第一原理は予想外の成功を収め、今では、凝縮系の微視的理論の標準手法となっている。しかし、LDA (以降 LDA およびその拡張を LDA と総称する) は電子間相互作用と運動エネルギーが拮抗するいわゆる強相関系において、系統的に誤った結果を与える。すなわち、金属領域が実際よりはるかに広い領域に広がって実現してしまう (図1において金属領域と絶縁領域の境界の違いをLDAの場合と現実の場合とで比較している)。LDAが常に相関効果を過大評価し常に金属的な遮蔽を与えるからである。さらに、LDAはモット転移に対する正しい物理像を与えることができない。電子間相互作用が強くなるとともに金属状態からバンド絶縁体に (他の自由度と結合しない限り) 連続的に転移するだけである (図1において白線で示した状態密度曲線はモット転移前後での状態密度曲線の変化を、LDAの場合と現実の場合とで比較している)。

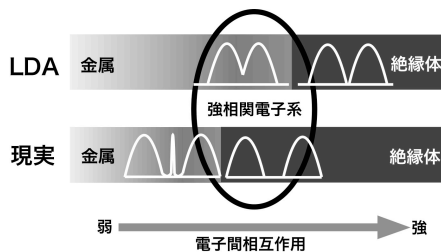


図1

このような強相関系の問題に関して、ここ数年、第一原理計算にモデル計算のアプローチを取り入れようとする研究が精力的になされてきた。その結果、従来、モデル計算によって用いられてきた動的平均場近似 (DMFT: dynamical mean-field theory) がある程度有効であることが明らかになり、DMFTと第一原理計算を組み合わせる試みがなされるようになってきた。しかし、このようなアプローチには大きな難点がある。DMFTでは有効媒質中においた不純物問題をシングルサイトの範囲で可能な限り正確に解く必要がある。どの程度正確に取り扱うかが、正しい物理像を与えるか否かを決めている。これまでのアプローチではこの時点で問題を十分単純なモデルにマップする。これによって、モデル計算において開発された様々な手法を用いて問題を解くことが可能になる。しかし、そのようなアプローチはモデルの宿命として、任意パラメータを含んだ理論とならざるを得ない。それ以外の部分ではおおむね第一原理といえるのであるが、実際に多体問題を解く部分は第一原理ではなく、そのために、このアプローチは物質の個別性の起源を明らかにしたり、未知の物質の性質を予言したりする能力に欠けている。

このような点を解決し、現在取り扱いが難しいとされている、強相関系の問題を、予言能力をもった理論によって取り扱う手法を開発することは物性理論の最重要な課題の一つと考えられてきた。

2. 研究の目的

本研究ではパラメータとしてのハバードUを含まない第一原理DMFT (true DMFT) を開発し、モット転移近傍にある遷移金属カルコゲナイドの電子状態を議論し、理論の枠内でこれらの物質の金属、非金属を決定し、実験と比較する。このような手法を開発することによって、強相関系においても予言能力のある第一原理電子状態計算が可能にすることが目標である。

3. 研究の方法

シングルサイトの多体問題ソルバーとして、量子モンテカルロ、厳密対角化、摂動展開、数値繰込み群の方法等が提案されている。これらはいずれもアンダーソン模型タイプのシングルサイト有効ハミルトニアンに対して適用することを意図した方法であり、第一原理計算に対して直接適用できない。これらにかわる単純で現実的な方法として第一原理摂動展開がある。対称アンダーソン模型の場合には摂動計算が強結合極限に正しくつながることが示されており、一般の場合にも低次摂動計算は物理的に間違った結果を与えないと信じられている。この観点から、本研究では摂動計算を第一原理に基づいて行う方向で定式化を進める。

ハートリー・フォックレベルを除いた最低次の既約自己エネルギーは相互作用に関して2次の項である。これをKKRグリーン関数法によって求めた無摂動グリーン関数を用いて書き下すことは形式的には容易である。しかし、このような自己エネルギーは非局所ポテンシャルの形になり、これを第一原理計算で扱うことは困難である。これを局所化するために最適化有効ポテンシャル法 (OEP) を用いる。このステップで多体摂動論から密度汎関数法に移ったことになる。これによって、自己エネルギーはエネルギーに依存する局所ポテンシャルの形になる。あとは通常のKKR-CPA法で開発してきた手法を用いて素直に問題を解いていくことができる。

4. 研究成果

第一原理電子状態手法であるKKRグリーン関数法に、ハバードUを用いずにDMFTを組み込むことによって、パラメータを用いずにモット転移近傍の電子物性を記述することを最終的な目標に、第一段階としてクーロン積分を厳密に計算した最低次の既約自己エネルギーを用いたシングルサイトソルバーを開発し、それをKKRグリーン関数法に組み込んだ。

これを用いて計算された結果の例を図2に

示す。最低次の自己エネルギーであるために結果はハートリー・フォックレベルを超えないため、LDAによる結果等と比べて交換分裂が極端に大きくなっているが、これは正直なやり方ではRPAのダイアグラムを無限次まで取り入れないと改善することが難しい。

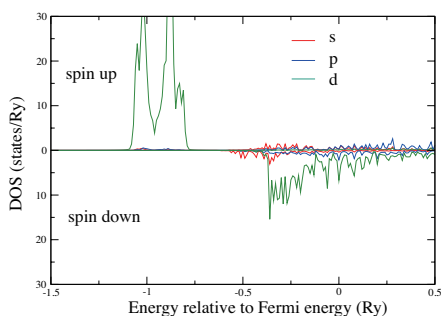


図2. 最低次の既約自己エネルギーを用いたFeのDMFT計算の結果

この点を考慮して、やや人工的ではあるが、自己エネルギーを60%に減らした計算の結果を図3に示す。

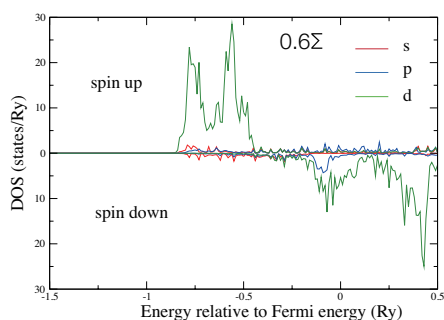


図3. 自己エネルギーを60%に減らした場合のFeのDMFT計算の結果

LDAによる結果と比較してやはり交換分裂はかなり大きいですが、その点を除いて、ほぼ正しくDMFTによる計算が動いているらしいことは、これらの結果を例えば厳密ハートリー・フォックレベルの最適化有効ポテンシャルの計算結果と比較して確認することができる。図4に最適化有効ポテンシャルによる厳密ハートリー・フォック計算の結果を示す。

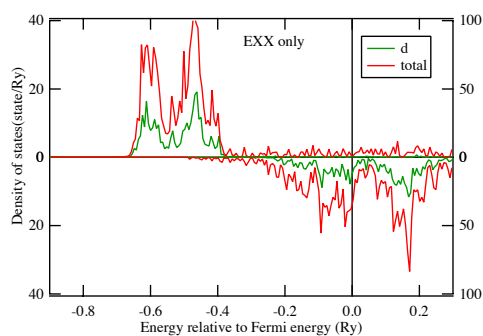


図4. 最適化有効ポテンシャルによる厳密ハートリー・フォック計算の結果

この結果はDMFT計算で自己エネルギーを人工的に60%に減らした結果と良く一致している。60%に減らさなければ良い対応が得られなかった理由として、最適化有効ポテンシャルの方法では、マフィンティンポテンシャルの外側で、ポテンシャルがLDAによる計算と一致するように境界条件を定めているということを挙げるができる。これによって結果として遮蔽効果を組み込んでしまった可能性が高い。

今後はここで得られた手法とコードを発展させて高次の既約自己エネルギーを組み込み、モット転移付近の遷移金属酸化物の計算を進めていく。

## 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 4 件)

- ① H. Akai, Basic and Applications of Mössbauer Spectrometry and the Electronic structure of Matters, RADIOISOTOPES, 査読有, 63, 163–174, 2014
- ② S. Iwasaki, T. Fukazawa, M. Ogura and H. Akai, First-principles calculations of  $\text{YMn}_2$ , J. Phys. Soc. Jpn Supplement, 査読有, 81, SB032 1–4, 2013, DOI:<http://dx.doi.org/10.1143/JPSJS.81.SB.SB032>.
- ③ N. H. Long, M. Ogura and H. Akai, Effects of spin-wave excitations in half-metallic materials, Phys. Rev. B, 査読有, 85, 224437 1–6, 2012, DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.224437>.
- ④ M. Ogura, H. Akai, and J. Kanamori, Enhancement of Magnetism of Fe By Cr and V, J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, 80, 2011, 104711 1–6, DOI:<http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.80.104711>.

[学会発表] (計 19 件)

- ① 赤井久純, 小倉昌子,  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$  の電子状態と磁気異方性, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 27 日, 東海大学
- ② H. Akai and M. Ogura, Electronic structure and magnetic anisotropy of  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$  (口頭発表), APS March Meeting, 3–7 March 2014. Denver, U.S.A.
- ③ S. Doi and H. Akai, Electronic structure calculation of permanent magnets using the KKR Green's function method (ポスター), APS March Meeting, 3–7 March 2014. Denver, U.S.A.
- ④ H. Akai and M. Ogura, Computational Materials Design of Permanent

- Magnets (招待講演), Kansai International Symposium on Nanoscience and Nanotechnology, 3–4 Feb. 2014, Osaka.
- ⑤ H. Akai and M. Ogura, A new formalism for Keldysh Green's functions in the KKR method (招待講演), Computation meets Experiment: KKR Greens functions for calculations of spectroscopic, transport and magnetic properties, 8–15 July, 2013, Warwick, UK.
- ⑥ H. Akai and M. Ogura, Designing permanent magnets from first-principles, Emergent Quantum Phases in Condensed Matter (招待講演), 3–21 June, 2013, Kashiwa, Japan.
- ⑦ 小倉昌子, 赤井久純, 金森順次郎, V による Fe の磁性の増大, 日本金属学会 2013 年春季大会, 2013 年 3 月 27 日–29 日, 東京理科大
- ⑧ 赤井久純, 小倉昌子, 永久磁石の電子論に向けて, 日本金属学会 2013 年春季大会(招待講演), 2013 年 3 月 27 日–29 日, 東京理科大
- ⑨ M. Ogura and H. Akai, First-principles calculation of the magnetic and transport properties of  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ , (招待講演), The 2nd Osaka University and University of Groningen Collaboration Symposium, 26–28 Nov. 2012, Osaka.
- ⑩ M. Ogura, N. H. Long and H. Akai, First-principles calculation of transport properties of half-metallic systems, (招待講演), Core-to-Core Groningen Workshop 2012, 18–21 Nov. 2012, Groningen, The Netherlands.
- ⑪ S. Doi and H. Akai, Development of first-principles electronic structure calculation code for large super cell systems by using screened KKR method, Conference on Computational Physics (CCP2012), 14–18 Oct. 2012, Kobe.
- ⑫ M. Ogura and H. Akai, Non-equilibrium Green's function method in the Korrington-Kohn-Rostoker method, International Symposium on Computics: Quantum Simulation and Design, 11–13 Oct. 2012, Osaka.
- ⑬ S. Doi and H. Akai, Development of first-principles electronic structure calculation code for large super cell systems by using screened KKR method, International Symposium on Computics: Quantum Simulation and Design, 11–13 Oct. 2012, Osaka.
- ⑭ 小倉昌子, 赤井久純, KKR 法による非平衡グリーン関数法の開発, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日–21 日, 横浜国大
- ⑮ 土居抄太郎, 赤井久純, Screened KKR 法による大規模スーパーセルの電子状態計算, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日–21 日, 広島大
- ⑯ H. Akai, Transport properties of heterostructures (招待講演), Quantum Simulations and Design, September 27 – 29, 2011, Dresden, Germany.
- ⑰ H. Akai, A pseudo-SIC implementation in the KKR code and applications, SIC workshop (招待講演), September 19 – 21, 2011, Chester, England.
- ⑱ H. Akai and M. Ogura, Theory of Hyperfine Interactions–Reality of First-Principles Approach (基調講演), International Conference of the Applications of the Moessbauer Effect September 19 – 21, 2011, Kobe, Japan.
- ⑲ H. Akai, Total energy calculation within EXX+RPA, Workshop on KKR and Related Greens Function Methods (招待講演), July 8–10, 2011, Halle, Germany.
- [図書] (計 2 件)
- ① 赤井久純, バンド理論, 物性物理学ハンドブック, 朝倉書店, 2012 年, pp16-26.
- ② 赤井久純, 白井光雲他, シュプリンガー・ジャパン, 密度汎関数法の発展 —マテリアルデザインへの応用—, 2011 年, 1–371.
- [その他]  
ホームページ等  
[http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/organization/labs/akai\\_group.html](http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/organization/labs/akai_group.html)  
<http://kkp.phys.sci.osaka-u.ac.jp>
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
赤井 久純 (AKAI, Hisazumi)  
東京大学・物性研究所・特任教授  
研究者番号: 70124873
- (2) 研究分担者  
小倉 昌子 (OGURA, Masako)  
大阪大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号: 30397640