

今田 正俊

東京大学大学院工学系研究科・教授

高精度多体多階層物質シミュレーション

## §1. 研究実施の概要

本研究プロジェクトでは、実際にはクーロン相互作用の効果の大きな現実物質(強相関電子物質)の物性を予測し、現象のメカニズムを解明する上で、汎用性が高く実用に耐える高精度計算手法 MACE (Multiscale Ab initio method for Correlated Electrons) を開発応用することをめざしている。密度汎関数法の局所密度近似など、従来の第一原理計算手法は、強相関電子系に対して多くの困難を抱えている。特に強い電子相関のために絶縁体化するモット絶縁体では、絶縁体を金属と予測するなど、定性的にも誤った結果を与えることが広く知られている。この困難を克服するために、私たちは3段階手法によるアルゴリズム MACE を提唱し、このプロジェクトを推進してきた。3段階手法の開発実装および応用は、当初の計画通り、また一部は計画以上に順調に進んでいる。研究期間の前半では MACE (3段階手法) の各要素、すなわち大域的電子状態計算と GW 計算、ダウンフォールディング法、低エネルギーソルバーについてそれぞれ個別の改良と、各要素の接続による統合的応用を試行し、研究期間の後半で要素を統合して広範な現実物質へ大規模に応用するという大局的な戦略を設定して進めてきた。

今年度の主な成果は以下の通りである。

まず方法論の改良では、第2段階で低次元的な異方性の大きな系の低次元的な有効モデルを導く方法を確立した。さらに次世代スーパーコンピュータでの利用を目指した、コードの並列化、高度化を推進し、10000 並列以上でも 50%以上の並列加速率が得られる見通しができ本格的な大規模応用の道が開かれた。

一方、3段階手法 MACE の総合的応用もいくつかの物質群で進み、動的平均場法によって鉄系超伝導体の有効モデルを解いた結果、鉄系超伝導体の異なる物質群の物性の多様性の起源が、有効電子間相互作用の違いに帰着することを明らかにした。また、BEDT-TTF 型有機伝導体の有効モデルを低エネルギーソルバーで解くことによって、現実物質でのモット転移(金属絶縁体転

移)がパラメタについて 10%程度の誤差以内で定量的に説明できることを明らかにした。

## §2. 研究実施体制

### (1)「東京大学」グループ

① 研究分担グループ長: 今田 正俊 (東京大学大学院工学系研究科、教授)

#### ② 研究項目

1. ダウンフォールディング法の開発、確立
2. 格子低エネルギーソルバーの整備
3. 新奇超伝導体、有機導体および界面に対する 3 段階法応用の展開

### (2)「Ecole Polytechnique」グループ

① 研究分担グループ長: Antoine Georges (Ecole Polytechnique、教授)

#### ② 研究項目

1. 連続時間アルゴリズムによる不純物ソルバーの改良
2. GW+DMFT 法の開発

### (3)「産業技術総合研究所」グループ

① 研究分担グループ長: 三宅隆 (産業技術総合研究所、主任研究員)

#### ② 研究項目

1. 遷移金属酸化物の GW 計算
2. GW+DMFT 法の開発
3. ダウンフォールディング法の精密化と応用

## §3. 研究実施内容

研究目的: クーロン相互作用の効果の大きな現実物質の物性を予測し、現象のメカニズムを解明する上で、汎用性が高く実用に耐える高精度計算手法 **MACE** を開発することをめざしている。私たちの提唱する 3 段階手法 **MACE** ではまず第一段階で現実物質の大局的な電子状態を密度汎関数法によって求める。引き続いて第 2 段階でフェルミエネルギーから離れた高エネルギー自由度を消去して、ダウンフォールディングの手法で低エネルギー自由度の有効模型を導出する。第 3 段階で有効模型を精度の高い計算手法を開発して解く。この手法を現実の物質科学で課題となっている物質群に適用しながら、強相関電子系の物性予測を可能にする汎用的かつ高精度で強力な手法の開発を目指している。

研究方法: 平成 22 年度は昨年度に引き続き、3 段階手法を融合した方法をさらに高度化し、興

味深いいくつかの物質群に対して、3 段階手法を実際に適用する研究を展開した。さらに次世代スーパーコンピュータの利用に備え、第 2 段階の制限 RPA 法コードおよび、第 3 段階の多変数変分モンテカルロ法コードの並列化を進めた。以下に平成22年度の研究の総合的な展開の要約を述べる。

## 方法論の開発

### 第1および第2段階に関わる要素開発

密度汎関数法による電子状態計算から出発し、低エネルギー有効模型を導くまでがこの第 1、第 2 段階の範囲である。密度汎関数法による計算を実装するには、基底を定めなければならない。このプロジェクトでは局在基底である局在マフィンティン (LMTO) 基底を産総研グループで採用し、東大グループでは平面波基底を採用し、同じ問題を独立に解いて、基底に拠らない結果が得られるかどうかを相互検証しながら開発と応用を進めている。

#### [次元縮約法の確立][3]

第2段階で低次元的な異方性の大きな系の低次元的な有効模型を導く方法を確立した。これは通常のダウンフォールディング法がバンドの縮約を行うのに対して、次元縮約とよぶべき方法である。次元縮約によって、理論模型として広範に研究されている低次元理論模型を第一原理的に導出する道が開け、第一原理的な「低次元物理学」の分野を切り開くことになる。実際にこの手法は鉄系超伝導体の 2 次元有効模型の導出に応用され、後述のように低エネルギーソルバーでの解へとつながった。

#### [スピン軌道相互作用系への拡張]

トポロジカル絶縁体やスピンホール効果などスピン軌道相互作用に起因した物理現象が広く注目を集めている。これらの物質群を扱うため、スピン軌道相互作用を考慮した GW プログラムを開発し、簡単なバルク物質でテスト計算を行った。またスピン軌道相互作用系の強相関効果を調べるため LDA+DMFT 法を拡張した。Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> への適用を行っている。

#### [周波数に依存した電子間相互作用の取り扱い]

厳密なダウンフォールディング法によれば、消去した高エネルギー自由度の影響を繰り込んだ遮蔽相互作用 (ハバード U) は周波数に依存する。周波数に依存した U をもつ低エネルギー有効模型の解析手法を開発し、モデル計算と第一原理計算で検証を進めている。モデル計算においては、厳密な量子モンテカルロ法と効率のよい近似手法の比較検討を行い、近似の有効性を確かめた。現実物質への応用では SrVO<sub>3</sub> の他に鉄系超伝導の計算を開始した。

## 並列高度化の推進

次世代スーパーコンピュータの利用に備え、第 2 段階の制限 RPA 法コード(cRPA)および、第 3 段階の多変数変分モンテカルロ法コード(mVMC)の並列化を進めている。現在 mVMC コードについては 1000 コアで並列加速率が線形完全並列加速率に対して 60%程度まで達している。これ以上の並列化に対しても、モンテカルロ計算の並列化が必要であり、可能であるから 10000 並列

程度まで 60%程度の加速率は既に達成されていると推定できる。また cRPA の並列化についても必要なバンド間並列について 80%程度の加速率は既に達成されており、100%の加速率が保証されている波数点並列と組み合わせることにより、既に 10,000 から 100,000 並列程度でも同様の 80%程度以上の並列化は達成されていると推定できる。この点については 2011 年 1 月以降も物性研スーパーコンピュータおよび京を用いて改良と実証を重ねる。

## 応用

一方、3 段階手法 MACE を総合的に組み合わせながらの、総合的応用もいくつかの物質群で進んだ。

### [鉄系超伝導](全グループ)[5, 8, 9, 11, 13, 14, 15, 16, 21]

2008 年 2 月に日本で発見され、臨界温度が 50 度を超える鉄系超伝導体のバンド構造を第一原理計算によって解明するとともに、昨年度までに世界に先駆けて 3 段階手法を直接適用することによって、この超伝導体の有効理論モデルを導出し提案していた。鉄系超伝導体に属する異なる物質群では、物質によって鉄とアニオン層の間の距離が異なる。距離の増加とともに共有結合性の強い化合物からイオン結合性の強い化合物へと変化することによって、有効電子間相互作用が大きく変化することが、この有効モデルの導出によってわかっていた。

今年度は実際に有効相互作用が大きいと判定された化合物 FeSe について、動的平均場法によって有効モデルを解いた結果、電子相関が大きいときに典型的にみられる下部ハバードバンドが励起スペクトルに見られること、また既にある光電子分光のデータの中の同定されていなかったピークがこの下部ハバードバンドに相当し、FeSe での顕著な電子相関の効果が実証されていることを明らかにした。また FeSe は金属であるが、軌道によって非フェルミ液体となる、軌道選択型非フェルミ液体が実現しているという興味深い結果が得られ、実験検証を促している。

また有効モデルを多変数変分モンテカルロ法で解くことによって鉄系超伝導体の異なる物質群の物性の多様性の起源が、実際にこの電子間相互作用の変化に求められることを明らかにした。鉄系超伝導体は超伝導相の近傍の母物質が反強磁性秩序を示すことが多い。しかしこの秩序の磁気秩序モーメントは物質群によって大きく異なり、磁気秩序のない化合物から、モーメントが  $2 \mu_B$  以上に亘るものまで多様であり、その原因が謎となっていた。この多様さが有効電子間相互作用の大きさの違いによって定量的にも 10%以内の精度で説明できること、LaFeAsO では実際に今までの第一原理計算で説明のできなかった小さな磁気モーメントが説明できることを明らかにした。

### [有機導体( $\kappa$ -ET 塩)](東大グループ)

BEDT-TTF 型有機伝導体は単位格子に原子が 100 以上もある複雑な系であるが、この系に対しても 3 段階手法を適用し、昨年度までに有効理論モデルを導出することに成功していた。引き続き今年度は有効モデルを低エネルギーソルバーで解くことによって、モット転移(金属絶縁体転移)と金属および反強磁性絶縁体相の相図を求め、現実物質での転移がパラメタについて 10%程度の誤差以内で定量的に説明できることを明らかにした。

## §4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

#### ●論文詳細情報

1. Y. Yamaji and M. Imada, “Composite-Fermion Theory for Pseudogap, Fermi Arc, Hole Pocket, and Non-Fermi Liquid of Underdoped Cuprate Superconductors”, *Phys. Rev. Lett.* **106** (2011) 016404(1-4). (DOI:10.1103/PhysRevLett.106.016404)
2. H. Shinaoka, M. Imada, “Theory of Electron Transport near Anderson-Mott Transitions”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 113703(1-4). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.113703)
3. K. Nakamura, Y. Yoshimoto, Y. Nohara, M. Imada, “Ab initio Low-Dimensional Physics Opened Up by Dimensional Downfolding: Application to LaFeAsO”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 123708(1-4). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.123708)
4. S. Sakai, Y. Motome, M. Imada, “Doped high-Tc cuprate superconductors elucidated in the light of zeros and poles of electronic Green's function”, *Phys. Rev. B* **82** (2010) 134505(1-16). (DOI:10.1103/PhysRevB.82.134505)
5. M. Aichhorn, S. Biermann, T. Miyake, A. Georges, M. Imada, “Theoretical evidence for strong correlations and incoherent metallic state in FeSe”, *Phys. Rev. B* **82** (2010) 064504(1-5). (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.064504)
6. H. Shinaoka and M. Imada, “Electronic and Magnetic Properties of Metallic Phases under Coexisting Short-Range Interaction and Diagonal Disorder”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 094711(1-3). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.094711)
7. M. Hirayama, and M. Imada, “Systematic Control of Doped Carrier Density without Disorder at Interface of Oxide Heterostructures”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 034704(1-7). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.034704)
8. T. Miyake, K. Nakamura, R. Arita, and M. Imada, “Comparison of Ab initio Low-Energy Models for LaFePO, LaFeAsO, BaFe2As2, LiFeAs, FeSe and FeTe: Electron Correlation and Covalency”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **79** (2010) 044705(1-20). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.044705)
9. T. Misawa, K. Nakamura, and M. Imada, “Magnetic Properties of {¥it Ab initio} Model for Iron-Based Superconductors LaFeAsO”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80** (2011) 023704 (1-4). (DOI: 10.1143/JPSJ.80.023704)
10. Jan Kunes, Ryotaro Arita, Philipp Wissgott, Alessandro Toschi, Hiroaki Ikeda and Karsten Held, “Wien2wannier: from linearized augmented plane waves to maximally localized Wannier functions”, *Comp. Phys. Commun.* **181** 1888-1895 (2010). (DOI:10.1016/j.cpc.2010.08.005)
11. Hiroaki Ikeda, Ryotaro Arita and Jan Kunes, “Doping dependence of spin

- fluctuations and electron correlations in iron pnictides”, Phys. Rev. B **82** 024508-1-6 (2010). (DOI:10.1103/PhysRevB.82.024508)
12. Hirofumi Sakakibara, Hidetomo Usui, Kazuhiko Kuroki, Ryotaro Arita and Hideo Aoki, “Two orbital model explains why the single-layer Hg cuprate have higher superconducting transition temperature than the La cuprate”, Phys. Rev. Lett. **105** 057003-1-4 (2010). (DOI:10.1103/PhysRevLett.105.057003)
13. Philipp Hansmann, Ryotaro Arita, Alessandro Toschi, Shiro Sakai, Giorgio Sangiovanni and Karsten Held, “Dichotomy between large local and small ordered magnetic moment in Iron-based superconductors”, Phys. Rev. Lett. **104** 197002-1-4 (2010). (DOI:10.1103/PhysRevLett.104.197002)
14. Hiroaki Ikeda, Ryotaro Arita, and Jan Kunes, “Phase diagram and Gap anisotropy in iron-pnictide superconductors”, Phys. Rev. B **81** 054502-1-15 (2010). (DOI:10.1103/PhysRevB.81.054502)
15. Despina Louca, Kazumasa Horigane, Anna Llobet, Ryotaro Arita, Sungdae Ji, Naoyuki Katayama, Shun Konbu, Kazuma Nakamura, Tae-Yeong Koo, Peng Tong, and Kazuyoshi Yamada, “Local atomic structure of superconducting FeSe<sub>1-x</sub>Te<sub>x</sub>”, Physical Review B **81**, 134524 (1-8) (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.134524)
16. Takashi Miyake, Taichi Kosugi, Shoji Ishibashi and Kiyoyuki Terakura, “Electronic Structure of Novel Superconductor Ca<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>”, J. Phys. Soc. Japan **79**, 123713 (2010). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.123713)
17. Jan M. Tomczak, K. Haule, T. Miyake, A. Georges and G. Kotliar, “Thermopower of correlated semiconductors: application to FeAs<sub>2</sub> and FeSb<sub>2</sub>”, Phys. Rev. **82**, 085104 (2010). (*13 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.085104)
18. K. Umemoto, R.M. Wentzcovitch, S. Saito and T. Miyake, “Body-centered tetragonal C4: A viable sp<sup>3</sup> carbon allotrope”, Phys. Rev. Lett. **104**, 125504 (2010). (*4 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.125504)
19. K. Karlsson, F. Aryasetiawan, O. Jepsen, “Method for calculating the electronic structure of correlated materials from a truly first-principles LDA plus U scheme”, Phys. Rev. B **81**, 245113 (2010). (*5 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.245113)
20. Jernej Mravlje, Markus Aichhorn, Takashi Miyake, Kristjan Haule, Gabriel Kotliar, Antoine Georges, “The coherence-incoherence crossover and the mass-renormalization puzzles in Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>”, Phys. Rev. Lett. **106**, 096401 (2010). (*5 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.096401).
21. V. Brouet, F. Rullier-Albenque, M. Marsi, B. Mansart, M. Aichhorn, S. Biermann, J. Faure, L. Perfetti, A. Taleb-Ibrahimi, P. Le Fevre, F. Bertran, A. Forget, D. Colson, “Significant reduction of electronic correlations upon isovalent Ru substitution of BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>”, Phys. Rev.Lett.**105**, 087001 (2010) (*4 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.087001)
22. Luciano Ortenzi, Silke Biermann, Ole Krogh Andersen, I. I. Mazin, and Lilia Boeri,

“Competition between electron-phonon coupling and spin fluctuations in superconducting hole-doped CuBiSO”, Phys. Rev. B **83**, 100505 (2011) (*4 pages*) (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.100505)