

「マルチスケール・マルチフィジックス現象の統合シミュレーション」
平成 19 年度採択研究代表者

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を開発することをめざしている。このために、3 段階手法によるアルゴリズムを提唱し、開発実装を進めている。平成 19 年度は 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のうち、それぞれに改良、吟味を要するものの個別要素の検討に重点を置き、予定通りの成果を得て、次年度からの本格展開に備えている。主な成果は以下の通りである。第 2 段階のダウンフォールディング法の候補をいくつか検討し、今後の展開には制限 RPA 法を用いることが最も適しているという結論を得た。第 1、第 2 段階の確立のために遷移金属酸化物のようなやや複雑な構造の物質に対して GW 法を適用できるようプログラム開発を行なった。第 3 段階のソルバー候補としてガウス基底モンテカルロ法、変分モンテカルロ法、動的平均場法 (DMFT) の改良、適用範囲拡張を行なった。全段階にわたって現実物質に応用するためのテストケースとして VO_2 、 SrVO_3 、ET 有機伝導体の基底状態や GaAs の励起状態への 3 段階手法の適用を進めた。

2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1) に対応する)

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従来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とで、強相関電子系の物性予測を可能にする手法の開発応用を進めている。

研究方法：平成19年度は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のうち、それぞれに改良、吟味を要するものの個別の検討に重点を置き、まず各グループに分かれて要素開発を進めた。また、研究課題、今後の共同研究戦略を練るために、東京大学、エコールポリテクニク、産業技術総合研究所の3グループの研究参加者が東京でワークショップを持ち、今後の研究の進め方を詳細に議論した。また、同時にいくつかの実験グループのリーダーを招いて実験研究の課題について話を聞き、実験と緊密に連携した将来の応用への準備を進めた。これらの予備開発と戦略討論によって、今後の課題が浮き彫りとなっており、平成20年度からの本格研究展開への十分な下準備が行なえたと結論できる。また、一部の手法開発と有効性の検証は既に成果に結びついてきている。以下に3段階手法の個別の方法開発と予備的応用の成果を具体的に述べる。

第1および第2段階に関わる要素開発

遷移金属酸化物のGW計算

本プロジェクトのターゲットである遷移金属酸化物や有機導体は複雑な構造をもち大域的電子構造計算の計算量が大きい。特にLDAよりも計算量が大きいGW法ではこの問題は深刻である。本年度はFull-Potential LMTO法のGWプログラムをMPIにより並列化して単位胞に20原子程度含む遷移金属酸化物を扱えるようにした。このプログラムを用いてバナジウム酸化物(VO₂)の単斜相のGW計算を実行した。この相は実験では絶縁体であるが、LDA計算ではa_{1g}バンドとeg π バンドが重なりを持ち金属になる。GW計算では自己エネルギー効果で両者が分裂することがわかった。単純化した自己無撞着GW計算は、遮蔽効果と準粒子バンド構造を自己無撞着に決めることが重要であることを示唆している。汎用的な自己無撞着GW法の開発は課題として残った。これとペロブスカイト型酸化物などの興味深い物質への応用に次年度以降取り組む。

スピンの依存した相互作用する系のHedin方程式とGW近似 [4]

d電子系やf電子系では、スピン軌道相互作用が低エネルギーの電子物性に重要な役割を担うことが多い。このようにスピンの依存した相互作用をもつ問題にHedinの方程式を拡張し、これに対応するスピン依存GW近似を提案した。

制限RPA法によるダウンフォールディング法[3]

3段階手法の第2段階における最大の問題は、低エネルギー有効模型のパラメタ、特に電子間相互作用パラメタを大域的電子構造計算から決定する方法の確立である。その一般的な方法として、われわれは以前に制限RPA法を提案した。この方法では有効電子間相互作用 $W(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を \mathbf{r} と \mathbf{r}' の関数として定義し、局在基底に関する行列要素として有効相互作用パラメタを計算する。そのため、有効相互作用パラメタUのみならず交換相互作用Jや異なるサイト間のクーロン相互作用も簡単に求めることができる。本年度はFull-Potential LMTO法のLDA-GWプログラムに制限RPA法を実装し、3d遷移金属に適用した。局在基底には最局在ワニエ関数を用いた。また最局

在ワニエ関数をユニタリ変換してハバードU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、同じく3d遷移金属に適用した。その結果、Uを最大にするワニエ関数と最局在ワニエ関数の差は極めて小さく、Uの値にして1meV以下であることがわかった。これらの結果から最局在ワニエ関数と制限RPA法を組み合わせた方法が有効であることが確かめられたので、次年度以降、遷移金属酸化物など本プロジェクトのターゲット物質に応用していく。

第3段階に関わる要素開発（低エネルギー有効モデルのソルバーの開発）

3グループは今までも経路積分繰り込み群法、ガウス基底モンテカルロ法、動的平均場法およびその拡張法を開発してその適用範囲を拡大し、いくつかの遷移金属酸化物に対して応用して成功を収めてきた。このプロジェクトでの本格応用に備えて、新たな手法の開発や既に開発した手法の改良を進めた。

ガウス基底モンテカルロ法の開発[2]

本プロジェクトの研究で、低エネルギーソルバーの候補として、ガウス基底型の演算子で密度演算子を展開する手法に基づく量子モンテカルロ法の定式化と改良に取り組んだ。これをもとにハバードモデルの基底状態を吟味し、超伝導相の可能性を検討し、否定的な結果を得た。さらにサイト間クーロン相互作用を持つ有効モデルに対して、この手法が使えるよう開発と実装を進めた。

変分モンテカルロ法の改良

変分モンテカルロ法を大規模に改良し、有効モデルのソルバーとして実装できるかどうかの吟味検討を進めた。変分モンテカルロ法の研究は、今までもスレータ行列にグッツヴィラー因子やジャストロ因子のような相関因子を作用させた変分波動関数を用いて計算する手法が、強相関モデルに対して試みられ、一定の成功を収めてきた。しかしバイアスのかからない経路積分繰り込み群法やガウス基底モンテカルロ法の結果との食い違いが問題となっていた。私たちは系のサイズにスケールして増大するような非常に多くの変分パラメータを一体波動関数部分と相関因子の両方に対して導入して、変分関数の持つバイアスをできる限り取り除き、上記のバイアスのかからない方法と、定量的にも一致の良い方法を開発することに成功した。変分モンテカルロ法は比較的大きな系が扱えること、波動関数の形がより直接的に求められ、物理的考察を行いやすいなどの特徴がある。今後低エネルギーソルバーの一つとして実装することによって、威力を発揮すると考えている。

全段階の融合と現実物質への応用への予備研究

3段階手法による励起状態の研究手法の開発 [5]

今まで、ダウンフォールディング法の開発は低エネルギー有効モデルでの基底状態の研究および一体励起スペクトルの研究が主であった。しかし光学伝導度のような二体励起を含むより一般の励起状態の研究は基底状態の解明と同程度に重要で意義が高い。今回私たちは励起状態の扱いに耐えるダウンフォールディング法を開発することを目的に、GaAsを例にとって励起子効果のある系での光学伝導度を再現できる有効モデルが導出できるかどうかを吟味した。光学伝導度を再現するためには有効モデルでのサイト間クーロン相互作用を

高い精度で求める必要があるが、得られた結果は満足すべきものであった。今後制限された RPA 法を用い、ダウンフォールディング法によって求められた有効モデルを、光学伝導度のような励起スペクトルの計算に用いる準備が整った。

自己無撞着 LDA+DMFT 計算 [1]

相関物質の電子構造への動的平均場理論の簡便な応用を行った。相関効果によって生じた電荷分布の変化をコーン・シャム方程式に反映させる自己無撞着な LDA+DMFT 法を開発し、酸化セリウムやセリウムの γ - α 転移に適用した。

3. 研究実施体制

(1)「今田」グループ

- ① 研究分担グループ長:今田 正俊 (東京大学 教授)
- ② 研究項目
 1. 励起状態を含むダウンフォールディング法
 2. 格子低エネルギーソルバーの整備
 3. 有機導体に対するダウンフォールディング法への着手

(2)「Antoine GEORGES」グループ

- ① 研究分担グループ長: Antoine GEORGES (Centre de Physique Théorique, Ecole Polytechnique and CNRS Senior Researcher)
- 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)「三宅」グループ

- ① 研究分担グループ長:三宅 隆 (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)
- ② 研究項目
 1. 制限 RPA 法によるダウンフォールディングと有効モデルパラメタの評価
 2. 遷移金属酸化物の GW 計算
 3. GW+DMFT 法の開発

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- [1] L.V. Pourovskii, B. Amadon, S. Biermann, A. Georges, “Self-consistency over the charge density in dynamical mean-field theory: A linear muffin-tin implementation and some physical implications”, *Phys. Rev. B* **76**, 235101 (2007)
- [2] T. Aimi and M. Imada, "Does Simple Two-Dimensional Hubbard Model Account for High- T_c Superconductivity in Copper Oxides?" *J. Phys. Soc. Jpn.* **76** (2007) 113708
- [3] T. Miyake and F. Aryasetiawan, “Screened Coulomb interaction in the maximally localized Wannier basis”, *Phys. Rev. B* **77**, 085122 (2008).
- [4] F. Aryasetiawan, S. Biermann, “Generalized Hedin's Equations for Quantum Many-Body Systems with Spin-Dependent Interactions” *Phys. Rev. Lett.* **100**, 116402 (2008)
- [5] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, R. Arita, S. Tsuneyuki and M. Imada, “Optical absorption study by ab-initio downfolding approach: Application to GaAs” *Phys. Rev. B* in press.