

「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

H23 年度 実績報告
----------------

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. 研究実施体制

### (1)「東京大学」グループ

- ① 研究代表者: 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確立・応用
  2. 格子低エネルギーソルバーの高度化
  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 主たる共同研究者: Antoine Georges (Ecole Polytechnique、教授)
- ② 研究項目
  1. Improvement of impurity solver using the continuous-time algorithm
  2. Development of GW+DMFT

### (3)「産業技術総合研究所」グループ

- ① 主たる共同研究者: 三宅 隆 (独立行政法人産業技術総合研究所主任研究員)
- ② 研究項目
  1. 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

## §2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)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 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1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モデルを導出する。第3段階で有効モデル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 23 年度は昨年度に引き続き、方法論の更なる深化を行いつつ、多様な物質群に対して、MACE を実際に適用する研究を展開した。さらに京の試験利用により、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高度化を進めた。

以下に平成 23 年度の研究の総合的な展開の要約を述べる。

3 段階手法 MACE を総合的に組み合わせながらの、総合的応用が多くの物質群で進み、本手法は汎用的かつ有用な方法としての地歩を固めた。

[鉄系超伝導]

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し、電子相関の強い FeSe では非フェルミ液体的な性質が見られることがわかっており、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、特に秩序磁気モーメントの多様性が、実際にこの電子間相互作用の変化に求められることが昨年度までに明らかとなっていた。今年度は LaFeAsO だけでなく、LaFePO、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>、FeTe の第一原理有効モデルを 2 次元縮約まで含めて求め、これを多変数変分モンテカルロ法で解いた。その結果実験値とよく一致する秩序磁気モーメントが得られ、この多様性が電子相関の違いに起因することが最終的に確立した。さらにキャリアドーピング効果についても調べ、鉄系超伝導体群が Fe3d 軌道に電子が 5 個占めている d<sub>5</sub> 状態(鉄系超伝導体の母物質にとって 100%のホールドーピングに対応)に形成される巨大なモット絶縁体の浸み出し効果のもとにあることを明らかにした。これは電子相関効果の重要性を示す結果である。[20]

ペロフスカイト型ブロック層を含む Ca<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>Fe<sub>2</sub>P<sub>2</sub> および Ca<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> のバンド計算を実行し、ニクトゲンの高さとフェルミ面の数、形状の相関を明らかにした。構造が同じ場合 P と As の原子種の違いは電子構造に大きな影響を与えないことがわかった。[19]

#### [有機導体(dmit 塩、 $\kappa$ -ET 塩)]

有機伝導体である dmit 塩に対して 3 段階手法を適用し、有効理論模型を導出した。dmit 塩は ET 塩以上に単位格子あたりの原子数が多く、制限 RPA によるダウンフォールディング計算は極めて大規模なものである。スピン液体的な性質を示す dmit 塩に対して 1 バンド模型と 3 バンド模型を両方導出した。

$\kappa$ -ET 塩に対する有効模型を多変数変分モンテカルロ法で解き、モット転移の様相、反強磁性と電荷秩序の競合について明らかにし、実験結果との整合性を立証した。[15]

#### [周波数に依存した相互作用系の DMFT 計算]

第一原理電子構造計算と動的平均場理論 (DMFT) の融合手法を発展させ、周波数に依存したハバード U をもつ系を取り扱えるようにした。昨年度より開始した SrVO<sub>3</sub> と鉄系超伝導体 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> に対する計算を進め、遮蔽の動的効果により電子励起スペクトルの低エネルギー部分への繰り込み効果が強められること、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> は非フェルミ液体領域に位置することを見つけた。[21]

#### [スピン軌道相互作用系の物理]

Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>、Ba<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> に対してスピン軌道相互作用と電子相関の相乗作用によって磁気秩序が生じてはじめて絶縁化するスレータ絶縁体であることを明らかにした。また絶縁化する前の常磁性相においても電子相関のために強い繰り込み効果が見られ、単純なスレータ絶縁体ではないことも明らかにした。[14]

また密度汎関数法プログラムを整備して金(111)表面のラッシュバ効果の計算を実行し、膜厚依存性を調べた。磁性の問題への展開を見据えてスピンの方向を制御する機能を開発し、結晶磁気異方性を計算する準備をすすめている。また、多体効果を議論するため、スピン軌道相互作用を考慮した GW 計算のプログラムを開発し、III-V 属半導体へ適用した。[13]

#### [芳香族超伝導体]

ピセン結晶にカリウムをドーブすると超伝導になることが発見され、初の芳香族超伝導体として注目を集めている。その後、コロネン、フェナントレンでも超伝導が観測され、研究に広がりを見せている。われわれは、世界に先駆けてピセン結晶のバンド計算を行い、昨年度発表した。今年度は様々なカリウムのドーブ量、位置に対するバンド構造を系統的に調べた。カリウムは層間より層内の方が安定であること、リジッドバンド描像が妥当ではないことがわかった。またコロネン結晶のバンド計算も実行し、ピセンとの類似性と相違点を議論した。[8, 9]

#### [並列高度化の推進]

京の試験利用により、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)の並列化を進めた。現在 mVMC コードについては 12288 ノードでの並列実証試験を終えている。更なる高度化と並列化により 24 年度の本格利用に備えた。また cRPA の並列化が進み 4000 ノード程度でのピーク性能比で 10%を超えている。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### ●論文詳細情報

1. Youhei Yamaji and Masatoshi Imada, "Mott physics on helical edges of two-dimensional topological insulators", *Phys. Rev. B*, 83, 205122(1-5), 2011 (DOI:10.1103/PhysRevB.83.205122)
2. Youhei Yamaji and Masatoshi Imada, "Composite fermion theory for pseudogap phenomena and superconductivity in underdoped cuprate superconductors", *Phys. Rev. B*, 83, 214522(1-25), 2011 (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.214522)
3. 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, 016404(1-4), 2011 (DOI:10.1103/PhysRevLett.106.016404)
4. Takahiro Misawa, Kazuma Nakamura, Masatoshi Imada, "Magnetic Properties of Ab initio Model for Iron-Based Superconductors LaFeAsO", *J. Phys. Soc. Jpn.*, 80, 023704(1-4), 2011 (DOI: 10.1143/JPSJ.80.023704)
5. Moyuru Kurita, Youhei Yamaji, and Masatoshi Imada, "Topological Insulators from Spontaneous Symmetry Breaking Induced by Electron Correlation on Pyrochlore Lattices", *J. Phys. Soc. Jpn.*, 80, No.4, 044708(1-7), 2011 (DOI: 10.1143/JPSJ.80.044708)
6. Yuto Ito, Youhei Yamaji, and Masatoshi Imada, "Stability of Unconventional Superconductivity on Surfaces of Topological Insulators", *J. Phys. Soc. Jpn.*, 80, 063704(1-4), 2011 (DOI: 10.1143/JPSJ.80.063704)
7. Kazuma Nakamura, Ryotaro Arita, and Hiroaki Ikeda, "First-principles calculation of transition-metal impurities in LaFeAsO", *Phys. Rev. B*, 83, 144512(1-9), 2011 (DOI:10.1103/PhysRevB.83.144512)
8. Taichi Kosugi, Takashi Miyake, Shoji Ishibashi, Ryotaro Arita, and Hideo Aoki, "Ab initio electronic structure of solid coronene: Differences from and commonalities to picene", *Physical Review B*, 84, 020507(R) (1-4), 2011. (DOI:10.1103/PhysRevB.84.020507)
9. Taichi Kosugi, Takashi Miyake, Shoji Ishibashi, Ryotaro Arita, and Hideo Aoki, "First-principles structural optimization and electronic structure of the superconductor picene for various potassium doping levels", *Physical Review B*, 84, 214506(1-8), 2011 (DOI:10.1103/PhysRevB.84.214506)
10. Shun Konbu, Kazuma Nakamura, Hiroaki Ikeda, and Ryotaro Arita, "Fermi-Surface Evolution by Transition-Metal Substitution in the Iron-based Superconductor

- LaFeAsO", J. Phys. Soc. Jpn., 80, 123701(1-4), 2011 (DOI: 10.1143/JPSJ.80.123701)
11. C. Martins, L. Vaugier, M. Aichhorn, S. Biermann, "Reduced effective spin-orbital degeneracy and spin-orbital ordering in paramagnetic transition metal oxides: Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> versus Sr<sub>2</sub>RhO<sub>4</sub>", Phys. Rev. Lett., 107, 266404, 2011.  
DOI:10.1103/PhysRevLett.107.266404
  12. R. Sakuma, C. Friedrich, T. Miyake, S. Blugel and F. Aryasetiasan, "GW calculations with spin-orbit coupling: application to Hg chalcogenides", Phys. Rev. B, 84, 085144 (*10 pages*), 2011. DOI:10.1103/PhysRevB.84.085144
  13. Taichi Kosugi, Takashi Miyake and Shoji Ishibashi, "Slab Thickness Dependence of Rashba Splitting on Au (111) surface: First-principles and Model Analyses", J. Phys. Soc. Jpn., **80**, 074713 (*7 pages*), 2011. DOI: 10.1143/JPSJ.80.074713
  14. R. Arita, J. Kuneš, A.V. Kozhevnikov, A.G. Eguiluz, M. Imada, "Ab initio Studies on the Interplay between Spin-Orbit Interaction and Coulomb Correlation in Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> and Ba<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>", Phys. Rev. Lett., 108, 086403(1-5), 2012 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.86403)
  15. Hiroshi Shinaoka, Takahiro Misawa, Kazuma Nakamura, Masatoshi Imada, "Mott Transition and Phase Diagram of κ-(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(NCS)<sub>2</sub> Studied by Two-Dimensional Model Derived from Ab initio Method", J. Phys. Soc. Jpn., 81, No.3, 034701(1-15), 2012 (DOI: 10.1143/JPSJ.81.034701)
  16. Shun Konbu, Kazuma Nakamura, Hiroaki Ikeda, and Ryotaro Arita, "Effects of transition-metal substitution in the iron-based superconductor LaFeAsO: Momentum- and real-space analysis from first principles", Solid State Communications, 152, pp. 728-734, 2012 (DOI:10.1016/j.ssc.2011.12.048)
  17. F. Aryasetiawan, R. Sakuma, and K. Karlsson, "GW approximation with self-screening correction", Phys. Rev. B, 85, 035106 (*8 pages*), 2012. DOI:10.1103/PhysRevB.85.035106
  18. M. Casula, A. Rubtsov, S. Biermann, "Dynamical screening effects in correlated materials: plasmon satellites and spectral weight transfers from a Green's function ansatz to extended dynamical mean field theory", Phys. Rev. B, 85, 035115, 2012.  
DOI:10.1103/PhysRevB.85.035115
  19. Taichi Kosugi, Takashi Miyake, and Shoji Ishibashi, "First-principles Electronic Structure of Superconductor Ca<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>Fe<sub>2</sub>P<sub>2</sub>: Comparison with LaFePO and Ca<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>", J. Phys. Soc. Jpn., 81, 014701 (*7 pages*), 2012. DOI: 10.1143/JPSJ.81.014701
  20. Takahiro Misawa, Kazuma Nakamura, and Masatoshi Imada, "Ab initio Evidence for Strong Correlation Associated with Mott Proximity in Iron-based Superconductors", Physical Review Letters (in press)
  21. Philipp Werner, Michele Casula, Takashi Miyake, Ferdi Aryasetiawan, Andrew J. Millis, and Silke Biermann, "Satellites and large doping- and temperature-

dependence of electronic properties in hole-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ", Nature Phys. (in press)