

「相関電子系の新しい大規模計算アルゴリズム」

東京大学物性研究所 今田正俊

## 1. 研究概要

### 研究のねらい

新物質探索や次世代のエレクトロニクス開発の展望を切り開くために、多様な物質の示す物性を第一原理から理解することを可能にするシミュレーション技術の開発の需要は大きい。このプロジェクトでは経路積分繰り込み群法を技術の核とし、電子相関効果が重要でない周辺部では従来の密度汎関数法を組み合わせ、シームレスに複雑な系のハイブリッド型大規模計算が可能になるような手法とシミュレーション技術を開発実用化することを狙う。

### 構想と見通し

このプロジェクトでは強相関効果をバイアスのかからない形で考慮する数値計算アルゴリズムを開発応用するとともに現実物質の第一原理電子状態計算に組み込める形に持ってゆくことを目標としている。このために経路積分繰り込み群計算と、密度汎関数法の計算をそれぞれルーチン化して行なえるような計算コードを整備する。

この目標を実現したときにおこなう具体的な計算の手続きの例を表わすと以下のようなステップで構成されている。

- (1) 密度汎関数計算およびGW近似により、遷移金属酸化物や有機化合物のバンド計算を行なうとともに、電子相関の強いバンドの遮蔽された動的クーロン相互作用の大きさを求める。
- (2) 電子相関の強いバンドについて、GW近似から求めたクーロン相互作用をもとに、有効理論モデルを構成する。
- (3) この有効ハミルトニアンに対して、経路積分繰り込み群法、および相関射影法による計算を行ない、ゆらぎの効果を正確に取り込む。磁気相関、電荷相関、超伝導相関その他の物理量が計算できる。

この計算プロセスを実現できれば、電子相関の強い系で、時間的空間的ゆらぎの効果も含めた精度の高い計算手法がはじめて実現することになる。

## 2. 研究実施内容

特にプロジェクト最終年度である今年度の研究項目は以下の通りである。

### [1] 遷移金属化合物の電子状態の解明

$\text{Sr}_2\text{VO}_4$ について応用計算の結果を公表し、詳細な結果を報告する。

$\text{YVO}_3$ の電子状態についての経路積分繰り込み群計算を開始し、金属絶縁体転移、磁気転移や相図の評価を行なう。強相関系としての特徴を解明する。その他のバナジウム、チタン化合物についての経路積分繰り込み群計算を開始する。

- [2] 相関射影法等を用いながら、理論模型の性質の解明を通じて、量子モット転移の性格を解明する。
- [3] GW法による遮蔽された動的クーロン相互作用の評価  
有機化合物の例について定量的な評価に着手する。
- [4] 低エネルギー有効理論模型の導出  
上記物質について模型の導出とその基礎付けを確立する。
- [5] 強相関電子系の大規模計算アルゴリズムとして、密度汎関数法と経路積分繰り込み群法を組み合わせた現在の方法を汎用的な手法として確立する。

GW法およびLDA法を用いて定式化された、低エネルギー有効模型を導く定式化をもとに、 $\text{Sr}_2\text{VO}_4$ の $\text{YVO}_3$ などの遷移金属酸化物の有効模型を導き、経路積分繰り込み群計算を行なって物性の解明を進めた。また、相関射影法を用いてモット転移における異常性に現れる、一体相関の異常と二粒子相関の異常の関係を明らかにする研究を進めた。また、進展の状況に応じて国際会議の招待講演などで研究成果を発信した。

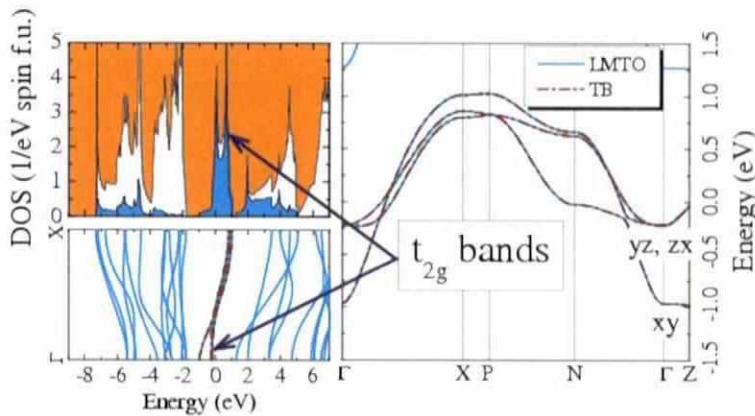


図1：  
左図：LDAによる電子状態密度(上)とその分散(上図の青い部分が3d電子の寄与。白い部分がその他の電子の寄与。金属を予測する。  
右図：LMTOによるバンド分散とdownfoldして求められた少数バンドの分散

ストロンチウム・バナジウム酸化物( $\text{Sr}_2\text{VO}_4$ )はLMTO局所密度近似では図1のように良い金属、ハートレーフォック近似では強磁性絶縁体が予測されるが、実際の物性は金属絶縁体転移に極めて近い反強磁性的な絶縁体であり、いずれの予測とも合致せず、電子間相互作用の効果と強い量子ゆらぎの効果が顕著である。このことからこの物質は強相関電子系の電子状態計算の精度を試すベンチマークとなる物質であることがわかる。我々の方法を適用した結果は、図2のように $\text{Sr}_2\text{VO}_4$ が反強磁性絶縁体と金属の相境界の近傍にあることを示しており、現実の物性と大変良い一致を示し、さらに今回、実験的には解明されていないスピン、軌道秩序についても図3のように予測が可能になった。このように、密度汎関数法と経路積分繰り込み群法を組み合わせた新たなアルゴリズムは、強い電子間相互作用の効果の大きな強相関電子系に有効な電子状態計算手法であることが実証されたと判断できる。

さらに $\text{YVO}_3$ や $\text{LaVO}_3$ の電子状態の計算も開始し、従来の電子状態計算でギャップの大きさが正しく求められなかったのに対して、実験結果との定量的な比較に耐える精度の高い計算手法であることを実証しつつある。

この計算手法は電子相関の大きな物質群のための精度の高い電子状態計算法として汎用性が確立された。今後この手法を用いて、従来の手法では困難の大きかった、強相関電子系の電子状態の解明のための研究を幅広く展開してゆく。

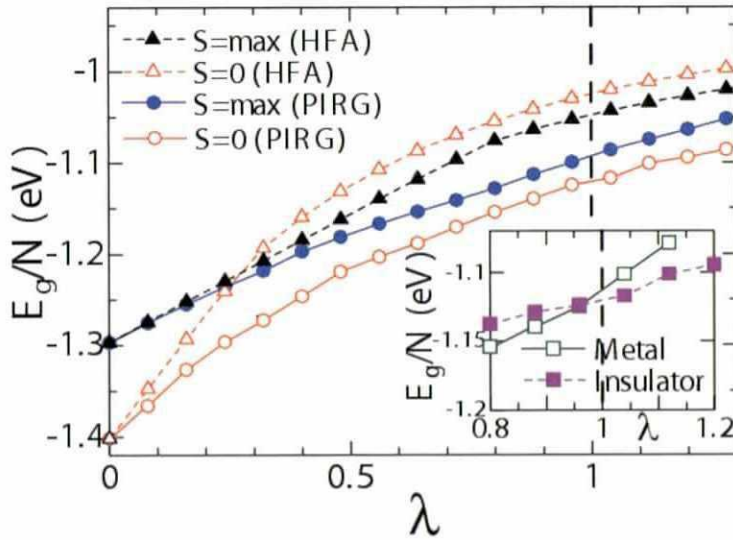


図2：  
相互作用パラメタ $\lambda$ を変えたときの基底エネルギー。(HFAはハートレーフォック近似、PIRGは今回の計算の経路積分繰り込み群法による結果)  $S=0$ は反強磁性状態、 $S=\max$ は強磁性状態を表す。PIRGによる真の基底状態が $\lambda=1$ で金属への転移点に近い反強磁性絶縁体であることがわかる。inset：経路積分繰り込み群法での金属状態と絶縁体状態のエネルギーの比較

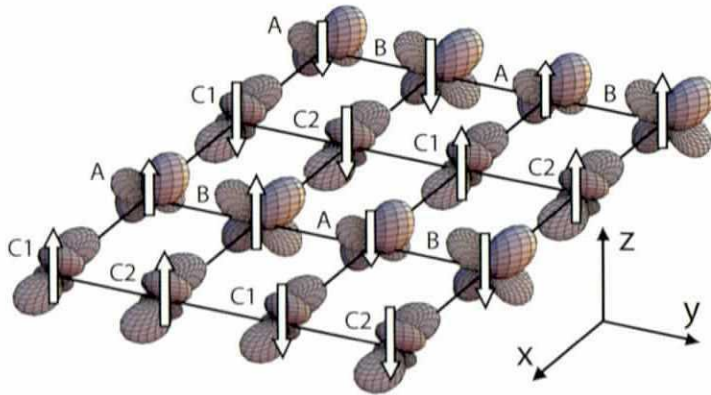


図3：  
現実的な相互作用パラメタ $\lambda=1$ のときに予測されるスピンと軌道の秩序構造

### 3. 主な研究成果

#### (1) 論文発表

1. M. Imada, S. Onoda, T. Mizusaki, and S. Watanabe,  
“Tools for Studying Quantum Emergence near Phase Transitions”  
the International Conference in Highlights in Condensed Matter Physics in Salerno, Italy 9-11, May 2003, eds. A. Avella, R. Citro, C. Noce, and M. Salerno, AIP Conference Proceedings Volume 695 (Melville, New York, 2003), pp75.
2. M. Imada, T. Mizusaki, and S. Watanabe,  
“Path-Integral Renormalization Group Method”  
The Monte Carlo Method in the Physical Sciences Celebrating the 50th Anniversary of the Metropolis Algorithm, Los Alamos, New Mexico 9-11 June 2003, eds. J.E. Gubernatis, AIP Conference Proceedings Volume 690 (Melville, New York, 2003), pp.207-217.
3. T. Mizusaki, and M. Imada,  
“Quantum-Number Projection in the Path-Integral Renormalization Group Method”  
Phys. Rev. B 69, 125110 (2004).
4. M. Imada,  
“Quantum Mott Transition and Multi-Furcating Criticality”  
J. Phys. Soc. Jpn. 73, 1851 (2004).
5. S. Watanabe, and M. Imada

- “Precise Determination of Phase Diagram for Two-Dimensional Hubbard Model with Filling- and Bandwidth-Control Mott Transitions: Grand-Canonical Path-Integral Renormalization Group Approach”  
J. Phys. Soc. Jpn. 73, 1251 (2004).
6. F. Aryasetiawan, M. Imada, A. Georges, G. Kotliar, S. Biermann, A. I. Lichtenstein  
“Frequency-dependent local interactions and low-energy effective models from electronic structure calculations”  
Phys. Rev. B70, 195104 (2004)
7. I.V. Solovyev and M. Imada  
“Screening of Coulomb interactions in transition metals”  
Phys. Rev. B71 045103 (2005)
8. M. Imada  
“Universality classes of metal-insulator transitions in strongly correlated electron systems and mechanism of high-temperature superconductivity”  
Phys. Rev. B 72 075113 (2005).
9. K. Hanasaki and M. Imada  
“Charge Ordered Insulator without Magnetic Order Studied by Correlator Projection Method”  
J. Phys. Soc. Jpn. 74, 2769 (2005).
10. Y. Imai, I. Solovyev, and M. Imada  
“Electronic structure of strongly correlated systems emerging from combining path-integral renormalization group with the density-functional approach”  
Phys. Rev. Lett. 95 176405 (2005).

(2) 口頭発表

1. M. Imada,  
Correlator Projectio Theory,  
International Conference on Highlights in Condensed Matter Physics, Salerno, Italy,  
May 9-11, 2003.
2. M. Imada,  
Path-Integral Renormalization Group Method,  
International Conference on the Monte Carlo Method in the Physical Sciences Celebrating  
the 50th Anniversary of the Metropolis Algorithm, Los Alamos, USA, June 9-11, 2003.
3. M. Imada,  
Numerical Tools and Outcome for Competing Orders in Strongly Correlated,  
International Symposium on Competing Phases in Novel Condensed-Matter Systems,  
Wurzberg, Germany, July 9-11, 2003.
4. 今田正俊、強相関電子系のウィグナー結晶、電荷秩序  
日本物理学会2004年春季大会シンポジウム(領域12)「クーロン系の構造形成：電子から高分子まで」 2004年3月 九州大学
5. M. Imada,  
Competing Phases and Optical Properties  
4th International Conference on Low Energy Electrodynamics in Solids  
(LEES 04), July 18-23, 2004, Kloster Banz, Germany

6. M. Imada,  
Density Fluctuation and Superconductivity near Mott Criticality  
German-Japanese Symposium, Competing Phases in Novel Condensed-Matter Systems  
August 1-5, 2004, Lauterbad, Germany
7. 今田正俊、強相関電子系の第一原理シミュレーション手法の開発と電子状態予測  
日本物理学会2004年秋季大会シンポジウム（領域4）「計算機ナノマテリアルデザイン・量子シミュレーション手法の開発と応用」2004年9月 青森大学
8. M. Imada,  
Electronic structure calculation with new tools for realistic correlated electron systems  
Second International Workshop on Ordering Phenomena in Transition Metal Oxides  
September 26-29, 2004, Wildbad Kreuth, Germany
9. M. Imada,  
First-principles method for strongly correlated electrons: PIRG+CLDA-GW  
NAREGI Workshop on Electronic Transport, Excitation and Correlation in Nanoscale,  
October 4-6, 2004, Sapporo
10. M. Imada,  
Theory of Electron Differentiation Revealed by Photoemission Experiments  
International Workshop on Strong Correlations and ARPES: Recent Progress in Theory and Experiment, April 4-8, 2005, Dresden, Germany