

現実的な電子構造を考慮した強相関電子系の研究

Analysis of Strongly Correlated Electron Systems with Realistic Electronic Structure

プロジェクト代表者：今井 剛樹 (理学部物理学科・助手)
Yoshiki Imai (Department of Physics, Research Associate)

電子ガス等への解析に大きな成功を収めてきた密度汎関数法に基づく局所密度近似は、高温超伝導や近藤効果の舞台である遷移金属酸化物および希土類化合物などに代表される強相関電子系に対しては定性的にさえ正しい結果を与えないことがしばしば報告されている。このような電子相関の強い系では、低エネルギー領域での多体効果が物性に大きな影響を与えていることが認識されてきている。そのためハバード模型等の簡単な格子フェルミオン模型を用いた解析により多体効果の影響に対する定性的な理解が進んだ一方で、現実的な物質と比較して模型が極めて簡略化されているため定量的な物性評価が困難であった。

このような背景のもと、本研究では密度汎関数法に基づく手法および多体電子論的手法のそれぞれの長所を取り入れた手法を用いることにより、強相関電子系の定量的な解析を電子レベルのミクロスコピックな観点から試みた。ここでは局所密度近似等の第一原理的手法を用いてバンド構造およびクーロン相互作用を導出して現実的な物質を反映した低エネルギー有効模型を構築し、それをさらに多体電子論的手法を用いて解析した。得られた結果は実験結果を再現するものであり、現実物質を記述する有効模型の構築に一定の成果を収めたと考えている。以下、その具体的な成果について述べる。

1. 遷移金属化合物に対する物性評価手法の構築

論文題名: Electronic Structure of Strongly Correlated Systems Emerging from Combining Path-Integral Renormalization Group with Density Functional Approach

掲載紙: Physical Review Letters **95** (2005) 176405

著者: Y. Imai, I. V. Solov'yev and M. Imada

遷移金属化合物 Sr_2VO_4 は実験結果では非常に小さなエネルギーギャップをもつ反強磁性絶縁体であることが報告されている一方、局所密度近似 (LDA) では常磁性金属、またハートリーフォック近似 (HFA) では強磁性絶縁体を予測し、実験と理論の不一致がこれまで見られていた。

本研究では密度汎関数法および経路積分くりこみ群法を用いて遷移金属化合物を念頭においた強相関電子系の理論的解析手法の開発を試み、上記の Sr_2VO_4 の物性評価を行うことにより本手法の有効性の確認を行った。まず、第一原理的な手法である LDA を用いて詳細なバンド構造を決定し、LDA+U 法や GW 近似を用いてクーロン相互作用の見積り、さらにその高エネルギー領域からのバンド分散への影響を考慮することにより第一原理的に有効格子フェルミオン模型を構築した。さらに多

体効果の極めて重要な低エネルギー領域を、多体効果の揺らぎをより正確に取り込める経路積分くりこみ群法 (PIRG) で評価した。その結果、HFA で欠落していた多体効果の揺らぎによって Sr_2VO_4 は反強磁性状態が基底状態となり、また金属 - 絶縁体転移の近傍にあることを示した。

図1はクーロン相互作用の強さの比を変化させたときの反強磁性および強磁性状態の HFA と PIRG の全エネルギーを表している。(Sr_2VO_4 の現実的なクーロン相互作用の強さを基準 ($\lambda = 1$) としている。) 反強磁性状態の HFA で得た基底状態と PIRG の基底状態のエネルギーの差は強磁性状態の差に比べてかなり大きく、反強磁性状態を扱う上では揺らぎの効果が特に重要であることを示している。また挿入図は反強磁性絶縁体状態と金属相の各エネルギーを表したものである。そこでは現実物質のクーロン相互作用の強さ $\lambda = 1$ よりわずかに小さな λ (~ 0.95) で金属 - 絶縁体転移を起こしており、 Sr_2VO_4 は金属状態に非常に近接した反強磁性絶縁体であることを表している。さらに本手法を用いて、 Sr_2VO_4 では図2のような極めて複雑なスピン - 軌道秩序構造が実現していることを予言した。

従来の手法とは異なり、今回得られた結果は実験結果と矛盾しないものであり、本研究で開発した密度汎関数法と経路積分くりこみ群法をハイブリッドした解析手法の有効性を強く表していると考えている。

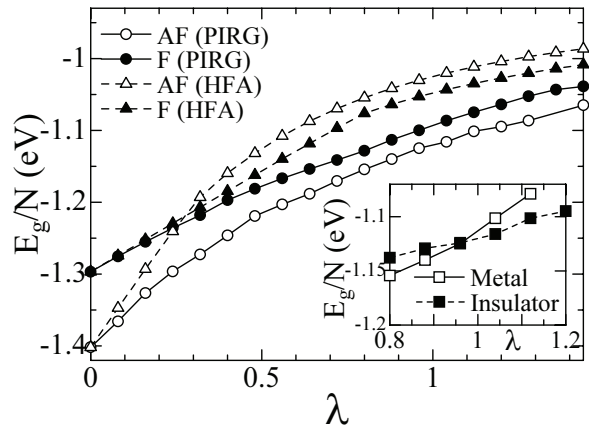


図1: Sr_2VO_4 の反強磁性 (AF) および強磁性 (F) 状態の全エネルギーの相互作用による変化。挿入図は金属および反強磁性絶縁体の全エネルギー。

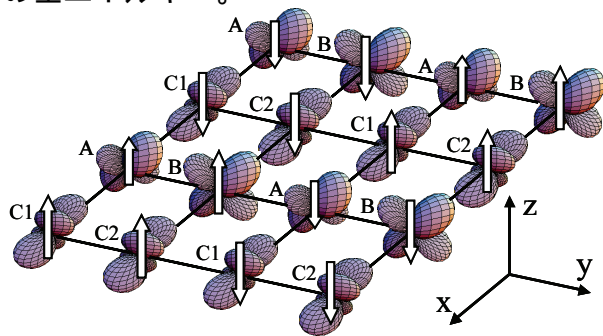


図2: Sr_2VO_4 で予測されるスピン - 軌道秩序構造。矢印はスピンを表す。

2. 充填スクッテルダイト化合物 $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ の異常温度 - 磁場相図の解析

論文題名: Anomalous Metal-Insulator Transition in Filled Skutterudite $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$

掲載紙: Journal of the Physical Society of Japan 75 (2006) 033706

著者: Y. Imai, K. Sakurazawa and T. Saso

希土類化合物の一群である充填スクッテルダイト化合物 $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ は極低温でスピン密度波 (SDW) 相が出現し、その金属 - SDW 相境界が磁場印加とともに高温側にシフトしていくことが報告されており、その起源について関心が寄せられている。

本研究ではスクッテルダイト化合物 $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ について第一原理計算を参照して有効格子フェルミオン模型を構築し、さらに低エネルギーの多体効果に対して乱雑位相近似を用いて解析することにより、その異常な相図の起源の解明を試みた。その結果フェルミ面のネスティングが良く、かつその近傍の状態密度の磁場による変化が極めて大きいとき、電子相関効果が磁場印加に伴い高温側にシフトするような相境界をもつ磁気秩序を出現させることを明らかにした。図3は今回の理論計算によって得られた $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ の温度 - 磁場相図であり、理論と実験（挿入図）が非常に良い一致を示していることが見て取れる。また磁気秩序構造の秩序ベクトル等も実験と一致しており、希土類化合物に対する解析手法として、このような有効ハミルトニアン構築方法が適切である可能性を示した。

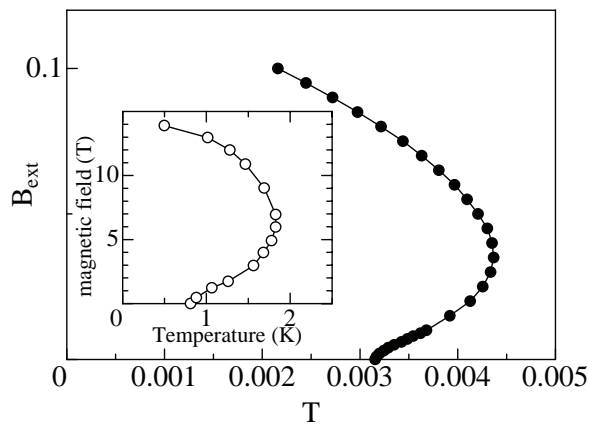


図 3: 金属 - SDW 相図。横軸は温度、縦軸は磁場を表す。挿入図は実験結果。