

希土類系における QSGW を用いた多重項励起の第一原理解析

The first-principles analysis for multiplet excitation of a rare-earth system using QSGW

阪大工¹, 阪大 CSRN², 鳥取大工³, 鈴木 雄大¹, 小谷 岳生^{2,3}, 佐藤 和則^{1,2}

Osaka Univ.¹, CSRN-Osaka², Tottori Univ.³, Katsuhiko Suzuki¹, Takao Kotani^{2,3}, Kazunori Sato^{1,2}

E-mail: E-mail: k-suzuki@mat.eng.osaka-u.ac.jp

希土類元素の局在 f 軌道の振る舞いは発光特性や磁性の性質を理解する上で重要な要素である。 f 軌道は原子に局在しているため、電子相関の効果を正確に考慮することが重要である。しかし一般的に使われている LDA/GGA 相関汎関数を用いた第一原理計算では電子相関の効果の取り扱いが不十分で有るより正確な電子相関の効果を取り扱う必要がある。また、多重項励起は集団励起であるため、局在描像に基づいた多体のモデルハミルトニアンを用いた解析が行われている[1]。第一原理計算を用いた物質探索を希土類化合物で行うためには、より正確な電子相関の効果を取り込みモデルハミルトニアンのパラメータを第一原理的に決定する必要がある。

本研究では第一原理計算からモデルハミルトニアンのパラメータを決定し、物質中の希土類 f 軌道の励起について議論する[2]。第一原理計算で f 軌道を取り扱う場合、オンサイト相互作用をパラメータとして電子相関を補完する LDA+ U 法がしばしば用いられる。本件研究では、この U を第一原理計算の枠組みの中で決定可能な Quasi-particle self-consistent GW (QSGW)法[3]を用い、QSGW のバンド構造を参照し、モデルハミルトニアンのパラメータを決定した。具体的には、QSGW で得られた f 軌道の準位が、モデルハミルトニアンに平均場近似を適用した結果を再現すると仮定して、QSGW の固有値との差が最小になるようにパラメータを決定した。これを用いて、物質毎のパラメータの違いを取り込んだ多重項励起を解析する。

この手法を 3 価の希土類自由イオンに適用して、多重項励起を求めた結果を図 1 に示す。このように自由希土類イオンにおける励起を第一原理計算の枠組み内で再現することを示した。発表ではこの手法を用いて物質中の希土類イオンの多重項励起について議論する。

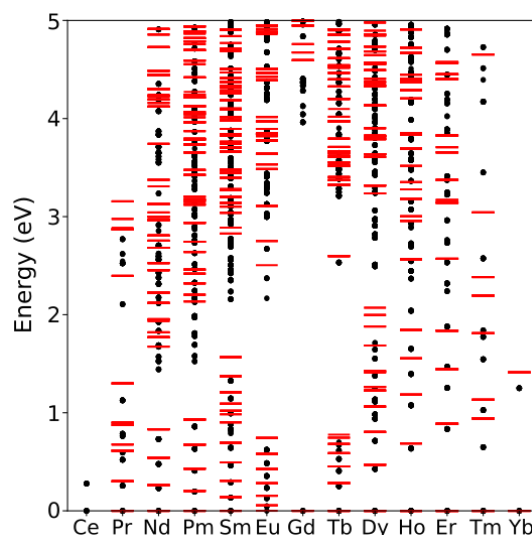


図 1 本研究手法で得られた多重項励起(赤線)と先行研究[1]の励起(黒点)との比較

Reference

- [1] G. Racah: Phys. Rev. 76 (1949) 1352.
- [2] K. Suzuki, T. Kotani, and K. Sato: Phys. Rev. Research 5 (2023) 03111.
- [3] T. Kotani, and M. van Schilfgaarde: Phys. Rev. B 76 (2007) 165106.