

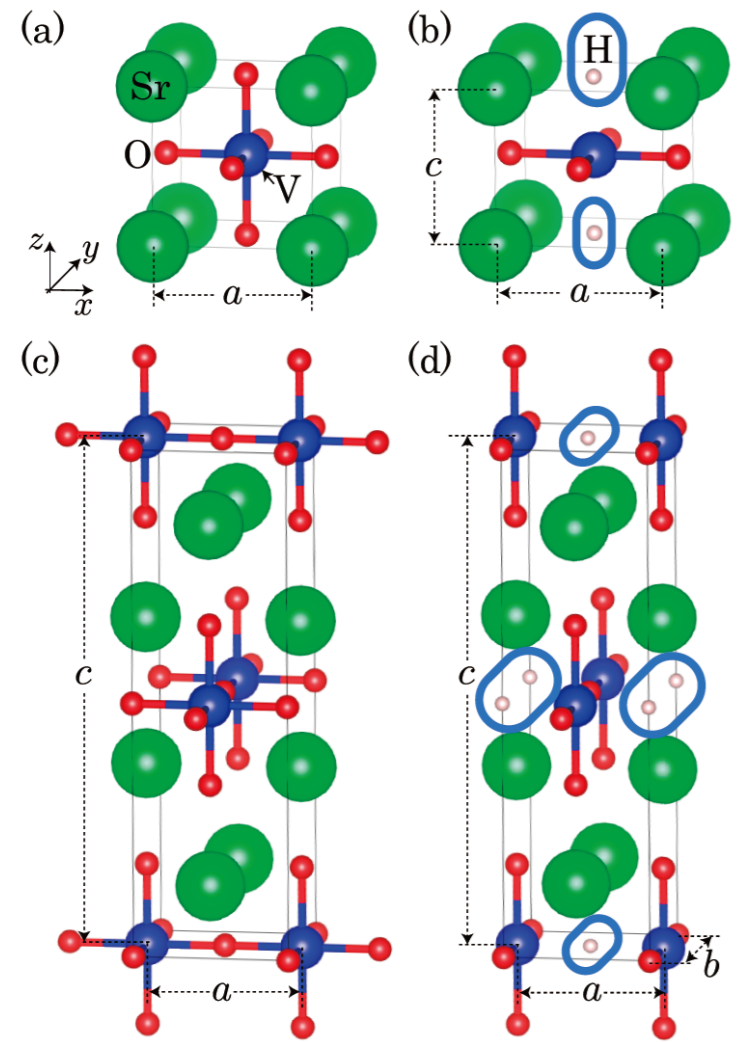
EX18709 (大阪大学推薦課題)

越智 正之 (大阪大学 理学研究科)

複合アニオンに起因した多軌道性と低次元性からうまれる
強相関電子物性の研究



Introduction



本研究の対象物質: 層状バナジウム酸水素化物 $Sr_{n+1}V_nO_{2n+1}H_n$ ($n = 1, \infty$)

特徴:

- (1) 水素によるバナジウム t_{2g} 軌道間の結合の断裂 (s 軌道の対称性) \rightarrow 電子状態の低次元化
- (2) バナジウムのまわりが酸素と水素で囲まれており、低対称な環境 (結晶場) \rightarrow 反強磁性モット絶縁体へ
- (3) 圧力誘起の金属絶縁体転移 (cf. T. Yamamoto *et al.*, Nat. Commun. **8**, 1217 (2017).)
- (4) 水素の秩序配列 (左図参照) (cf. F. D. Romero *et al.*, Angew. Chem. Int. Ed. **53**, 7556 (2014); J. Bang *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **136**, 7221 (2014).)

これまでの強相関効果の研究: 主に遷移金属酸化物
遷移金属酸水素化物 = 強相関物性の新しい場?

本研究ではその電子状態の基礎的な知見を得るために、
第一原理計算によってその有効モデルの構築を行った

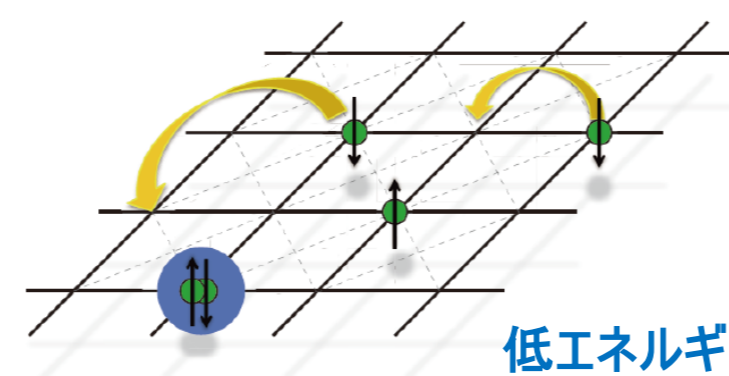
Method

Step 1: 密度汎関数理論に基づくバンド計算 \rightarrow Step 2: 模型自由度としてWannier関数の抽出 \rightarrow Step 3: constrained RPA法による有効相互作用の評価

- Quantum ESPRESSO package
- PBE-GGA汎関数
- Optimized norm-conserving Vanderbilt pseudopotential (taken from PseudoDojo), Sr-4s4pとV-3s3pはvalenceに含む
- Plane-wave cutoff energy: 150 Ry
- k -mesh: 12x12x12 for $n = \infty$, 10x10x10 for $n = 1$
- Gaussian smearing width = 0.02 Ry
- 実験の結晶構造を利用

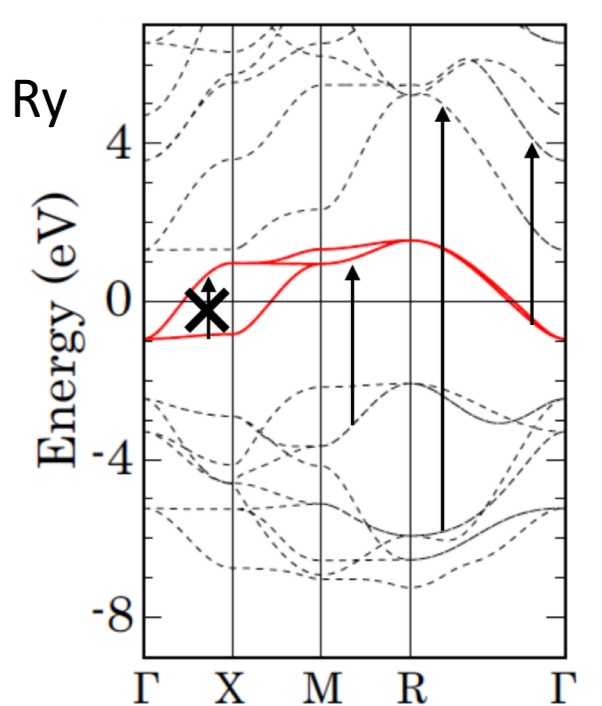
- RESPACK code (developed by K. Nakamura *et al.*)
- Wannier関数: t_{2g} 模型 = V- t_{2g} , d 模型 = V- d
- Maximally localized Wannier function

- RESPACK code
- Cutoff energy (誘電関数) = 40 Ry
- No. of bands = 200 for $n = \infty$, 400 for $n = 1$



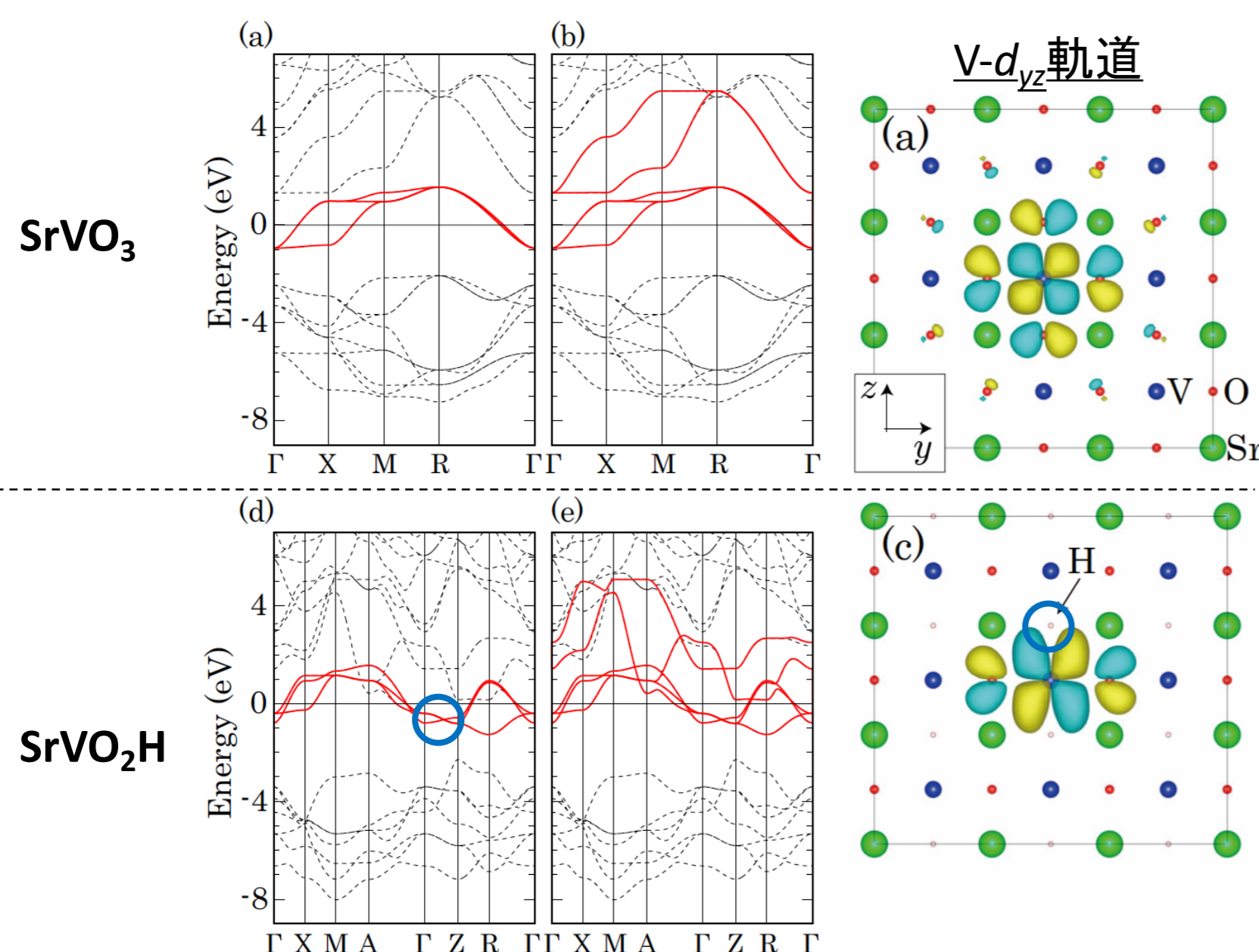
この有効モデルにおける相互作用を
摂動的な手法を用いて評価

*この部分にスパコンを利用



Results M. Ochi and K. Kuroki, Phys. Rev. B **99**, 155143 (2019).

バンド構造: SrVO₂Hでは Γ -Z line (水素のある方向) への分散は小さい。
= 水素による結合断裂。ワニエ関数もその特徴を持つ。
またSrVO₂Hでは t_{2g} バンドと e_g バンドが強くentangleしている。



得られたモデルパラメータ (t_{2g} 模型)

	t_x	t_y	t_z	Δ	$U_{t_{2g}}^{scr}$	$U_{t_{2g}}^{bare}$
SrVO ₃	d_{xy}	-0.26	-0.26	-0.03	3.42	15.78
SrVO ₂ H	d_{xy}	-0.25	-0.25	-0.04	3.00	16.04
	d_{yz}	0.01	-0.42	0.10	-0.45	2.60

青丸は左から順に「結合断裂による移動積分の減少」「水素による $d_{xz/yz}$ 軌道の安定化 (Δ : 相対的な onsite energy)」「 e_g バンドの entanglement による遮蔽効果の増強 \rightarrow 相互作用パラメータの減少」を意味している。

得られたモデルパラメータ (d 模型)

	t_x	t_y	t_z	Δ	U_d^{scr}	U_d^{bare}
SrVO ₃	d_{xy}	-0.26	-0.26	-0.02	3.43	15.85
	$d_{x^2-y^2}$	-0.51	-0.51	0.00	2.76	3.57
	$d_{3z^2-r^2}$	-0.17	-0.17	-0.67	2.76	3.57
SrVO ₂ H	d_{xy}	-0.25	-0.25	-0.04	3.97	16.06
	d_{yz}	0.01	-0.42	0.10	-0.44	3.75
	$d_{x^2-y^2}$	-0.44	-0.44	0.01	2.49	4.04
	$d_{3z^2-r^2}$	-0.09	-0.09	0.88	1.52	3.26

こちらでは水素の存在によってO-pバンドのエネルギーが低下し、
それによって遮蔽効果が減少 \rightarrow 相互作用パラメータが増加している。

Summary

- (1) 第一原理計算に基づき、バナジウム酸水素化物の低エネルギー有効モデルを構築した
- (2) 水素によって t_{2g} 軌道間の結合の断裂や結晶場の変化が生じていることを確かめた
- (3) 有効相互作用の強さは、模型自由度に依存した振る舞いを示すことを明らかにした

t_{2g} 模型: 結晶場の効果で e_g バンドとの entanglement が強化され、遮蔽効果が強い \rightarrow 有効相互作用が小さい

d 模型: 水素によってO-pバンドのエネルギーが下がることで、そこからの遮蔽効果が弱まる \rightarrow 有効相互作用が大きい