

強誘電体の第一原理計算の精度の基準の提案 及び 応力歪による分極増加の改定

Proposal of Criteria of Accuracy of *Ab Initio* Calculations of Ferroelectrics and Revision of Strain-Enhanced Spontaneous Polarizations

九大理 〇渡部 行男

Kyushu Univ. 〇Yukio Watanabe

E-mail: watanabe@phys.kyushu-u.ac.jp

強誘電体の第一原理計算での新現象の予測には、現在以上に信頼性を高める必要があると思える。ここで、強誘電体の第一原理計算は、そのままでは、絶対零度の特性だが、通常、その精度判定は、室温特性との比較で行われている。しかし、エピ膜等の強い応力歪等、温度効果を凌駕する現象では、誤差相殺が破れ、従来の基準で精度を判定すると、正確な計算ができないと思える。このため、絶対零度の特性が実験で得られない場合でも、これを得る方法を提案する[1]。ここで、GL 理論は、熱力学的実験の「記述」であり、指定した対称性下での任意の温度での実験的特性を高精度に与えることに注目した(図 1)。絶対零度で室温の対称性が存在しない BaTiO₃ について、GL 理論による絶対零度・無応力下の特性と、種々の交換相関関数による第一原理計算の特性を比較した(図 2)。すると、強誘電体によく合うといわれる交換相関関数 Wu-Cohen やそれに近い LDA 等より、PBEsol や HSEsol 等が高精度になる。さらに、応力効果では、PBEsol や HSEsol は、LDA より遥かに大きな分極増加を予測し実験に近づく(図 3)。また、歪大で温度効果より歪の方が分極に影響することが読み取れる。この例のように、強誘電体の従来の第一原理計算は、歪による変形を過小評価しているように思えるので、歪による体積変化を求めると、一般に密度汎関数法の交換相関関数を用いると、強誘電体の剛性を過小評価している可能性が示唆された。

[1] Y. Watanabe, *J. Chem. Phys.* 148, 194702 (2018).

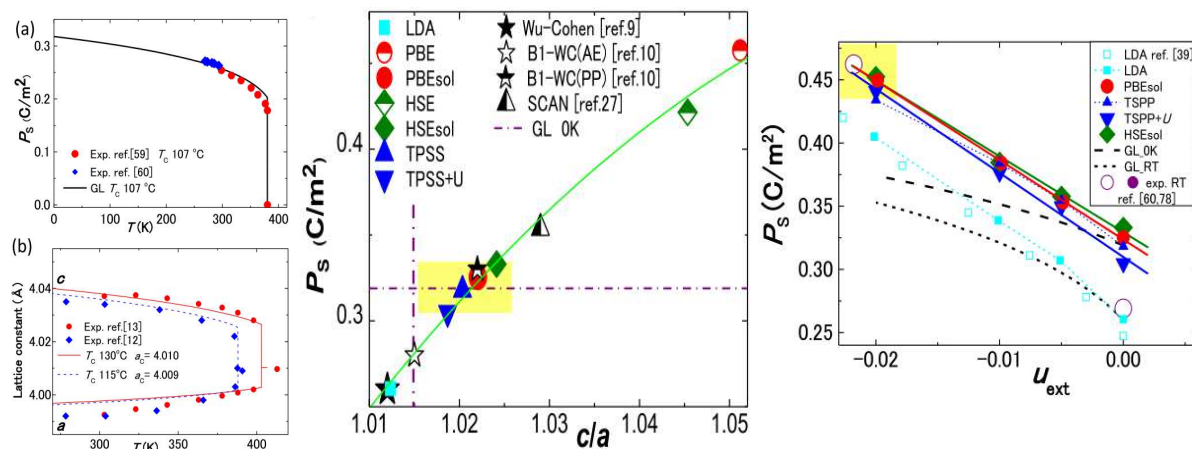


図 1 GL 理論による
(a)分極と(b)格子
の温度依存性

図 2 GL 理論による 0K 物性と
種々の交換相関関数によ
特性の比較

図 3 種々の交換相関関数と GL
理論による分極の歪依存性