

OpenMXハンズオン: 応用計算編

- バンドにおけるスピン分裂の解析
- k 空間でのスピントキスチャの解析
- ベリー曲率の計算
- トポロジカル不変量の計算
 - Chern数の計算
 - Z_2 数の計算

石井史之

金沢大学ナノマテリアル研究所

CCMSハンズオン OpenMX講習会 2022年2月22日

例題ファイルのコピー

homeのopenmx3.9の下へ移動し、
cp /home/hands-on/openmx2022/work_is .
とコピーする
cd work_is

ls *.sh
.. 10個のシェルスクリプト
ls *.dat
.. 6個の入力ファイル
ls *.in*
.. 4個の標準入力ファイル

後処理計算

入力ファイルで

`HS.fileout on`

とする。後処理計算において, Kohn-Shamハミルトニアン行列, 重なり行列, 密度行列を利用する。これによりバイナリ形式のデータが「`System.Name.scfout`」に格納される。これを読み込んで**k空間でのスピントクスチャの解析,**
ベリー曲率, トポロジカル不変量の計算をおこなう。

今日の応用計算

後処理
プログラム

① kSpin

② calB

③ Z2FH

- ・バンドにおけるスピン分裂の解析
- ・k空間でのスピントキスチャの解析
- ・ベリー曲率の計算
- ・トポロジカル不変量の計算
 - ・Chern数の計算
 - ・ Z_2 数の計算

ノンコリニアDFTの計算が必要のため、キーワード「scf.SpinPolarization」を以下のように設定。

scf.SpinPolarization

NC

① kSpin

- ・バンドにおけるスピン分裂の解析
- ・波数(k)空間でのスピントキスチャの解析

例題:

Au(111)表面モデル

この例題ではスピン軌道相互作用を考慮するため、

`scf.SpinOrbit.Coupling` `on`

とする。

参考文献

kSpinを用いた計算結果の発表を行う際には、以下の文献を引用して頂けると幸いです。

- H. Kotaka, F. Ishii, and M. Saito, Jpn. J. Appl. Phys. **52**, 035204 (2013).
- N. Yamaguchi and F. Ishii, Appl. Phys. Express **10**, 123003(2017).

スピン分裂

$$H\psi = E\psi \quad \text{ハミルトニアン}H、\text{固有値}E、\text{波動関数}\psi$$

時間反転対称性

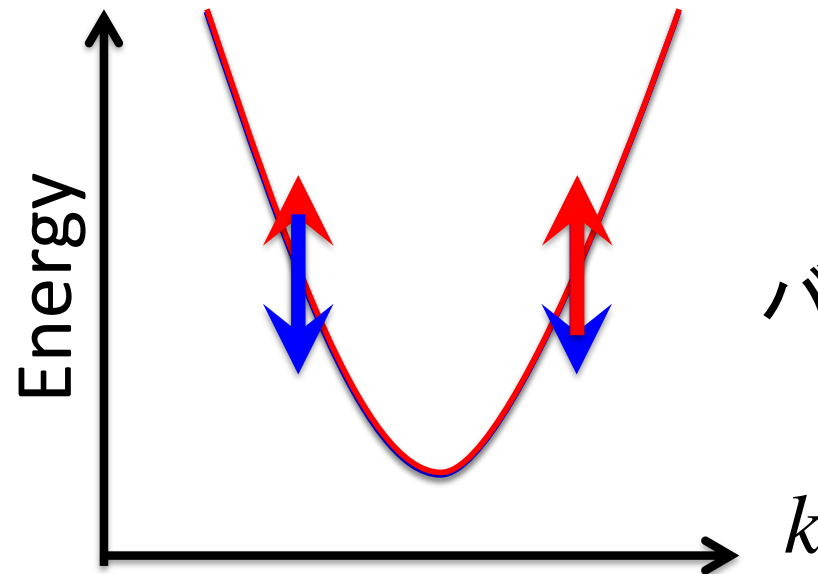
$$E(k, \uparrow) = E(-k, \downarrow)$$

空間反転対称性

$$E(k, \uparrow) = E(-k, \uparrow)$$



$$E(k, \uparrow) = E(k, \downarrow)$$



バンド縮退

スピン分裂

時間反転対称性

$$E(k, \uparrow) = E(-k, \downarrow)$$

~~空間反転対称性~~

~~$$E(k, \uparrow) = E(-k, \uparrow)$$~~



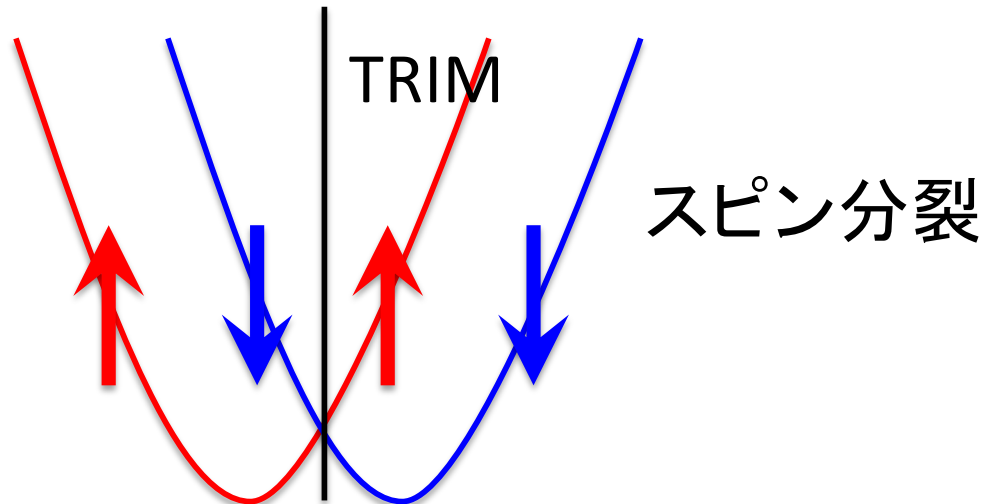
$$E(k, \uparrow) = E(k, \downarrow)$$

時間反転不変なk点(TRIM)のみ
(s.t. $-k+G=k$)



$$E(k, \uparrow) \neq E(k, \downarrow)$$

それ以外のk点



波数空間でのスピン密度行列*

$$P_{\sigma\sigma'}(\mathbf{k}, \mu) = \left\langle \psi_{\sigma\mu}^{(\mathbf{k})} \left| \psi_{\sigma'\mu}^{(\mathbf{k})} \right\rangle = \left(c_{\sigma}^{(\mathbf{k})\dagger} S^{(\mathbf{k})} c_{\sigma'}^{(\mathbf{k})} \right)_{\mu\mu}$$

\mathbf{k} : a wave vector

μ : states (band indices)

σ : spin indices ($\sigma = \alpha, \beta$)

$\left| \psi_{\sigma\mu}^{(\mathbf{k})} \right\rangle$: Bloch states

c_{σ} : LCPAO expansion coefficients

$S^{(\mathbf{k})}$: The overlap matrix

* H. Kotaka, F. Ishii, and M. Saito,
Jpn. J. Appl. Phys. **52**, 035204 (2013).

$$\begin{pmatrix} P_{\alpha\alpha}(\mathbf{k}, \mu) & P_{\alpha\beta}(\mathbf{k}, \mu) \\ P_{\beta\alpha}(\mathbf{k}, \mu) & P_{\beta\beta}(\mathbf{k}, \mu) \end{pmatrix}$$

Eigenvalue problems
for the Kohn-Sham equation

$$H_{\sigma}^{(\mathbf{k})} c_{\sigma}^{(\mathbf{k})} = S^{(\mathbf{k})} c_{\sigma}^{(\mathbf{k})} \varepsilon_{\sigma}^{(\mathbf{k})}$$

$H_{\sigma}^{(\mathbf{k})}$: The Hamiltonian

$\varepsilon_{\sigma}^{(\mathbf{k})}$: Energy eigenvalues

スピン密度行列の軌道分解

$$M_{\sigma\sigma',ia}(\mathbf{k},\mu) = \sum_{jb} c_{\sigma\mu,ia}^{(\mathbf{k})*} S_{iajb}^{(\mathbf{k})} c_{\sigma'\mu,jb}^{(\mathbf{k})},$$

where

$$P_{\sigma\sigma'}(\mathbf{k},\mu) = \sum_{ia} M_{\sigma\sigma',ia}(\mathbf{k},\mu).$$

\mathbf{k} : a wave vector

μ : states (band indices)

σ : spin indices

i, j : site indices

ia, jb : PAO indices

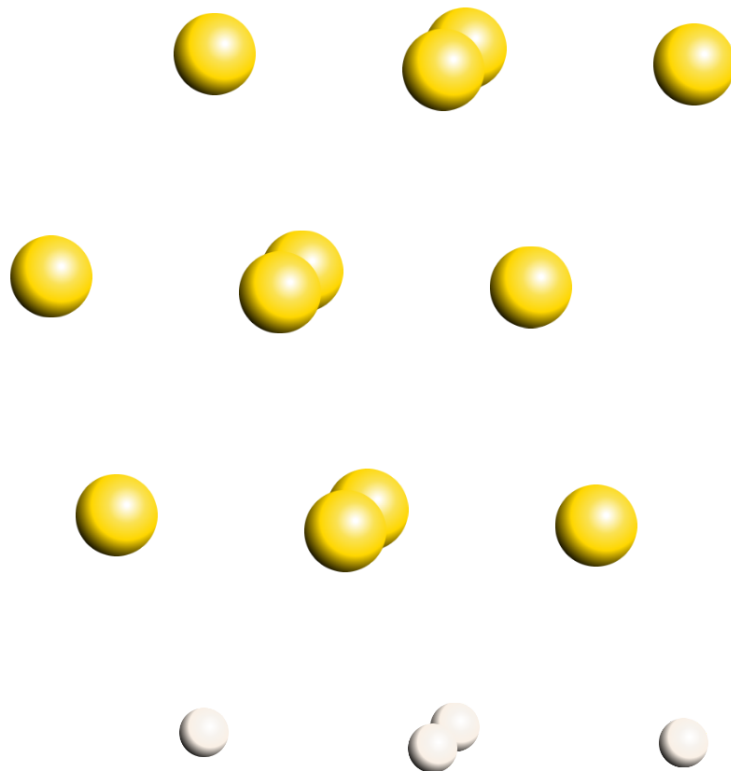
$\left| \psi_{\sigma\mu}^{(\mathbf{k})} \right\rangle$: Bloch states

c_{σ} : LCPAO expansion coefficients

$S^{(\mathbf{k})}$: The overlap matrix

kSpinの応用例: Au111表面モデル

Au111Surface_BD.dat



SCF計算

```
qsub job_Au111scf.sh
```

計算終了後、

```
ls Au111Surface.scfout
```

として

```
Au111Surface.scfout
```

と表示されれば、

kSpinの計算が可能。

Reset Supercell × × Atoms Bonds Bond Color Number Symbol
BGC Atom Size Bond Thickness Bond Factor Cells Axes Perspective Structure
Dynamics Net Charge Spin Force Velocity Rot on x Rot on y Rot on z
Save Examples
[OpenMX website](http://www.openmx-square.org/) Rotate: click+drag Zoom: scroll Translate: ctrl+click+drag Note: click the middle button for Safari

<http://www.openmx-square.org/viewer/>

① kSpin

「kSpin」にはk空間スピン密度行列を計算する4つの方法があり、キーワード「Calc.Type」で指定する。

このチュートリアルでは

- Calc.Type BandDispersion バンド分散の計算
- Calc.Type GridCalc k空間の格子点での計算

の2つについて説明する。

Calc.Type BandDispersion バンド分散の計算

openmxの場合と同様に計算するk点の区間を指定

```
Band.Nkpath          2
<Band.kpath
 135  0.0  0.500000  0.000000  0.0  0.000000  0.000000  M  G
 135  0.0  0.000000  0.000000  0.0 -0.500000  0.000000  G -M
Band.kpath>
```

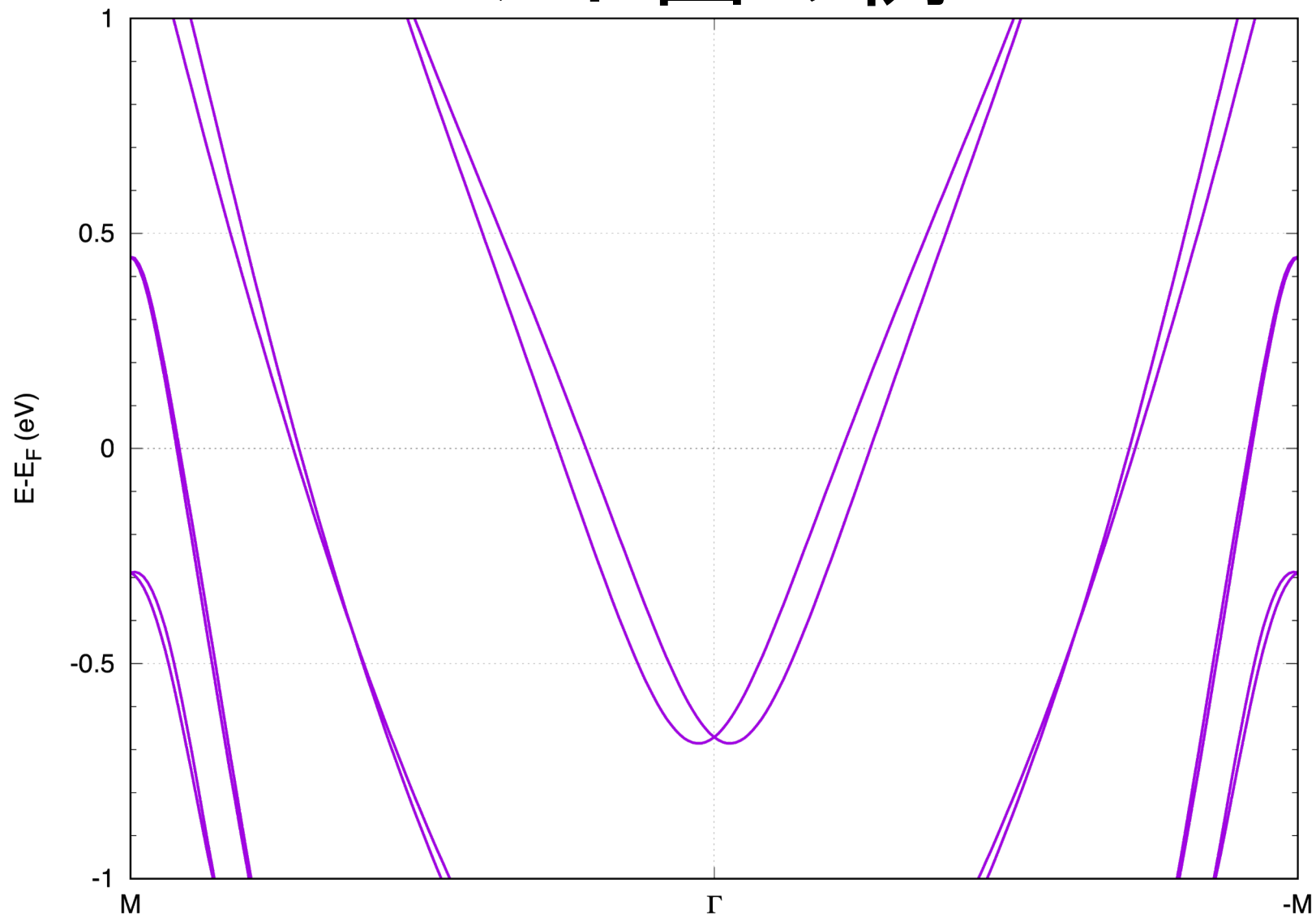
エネルギーの範囲を指定

Energy.Range -1.0 1.0

```
qsub jobBD.sh
```

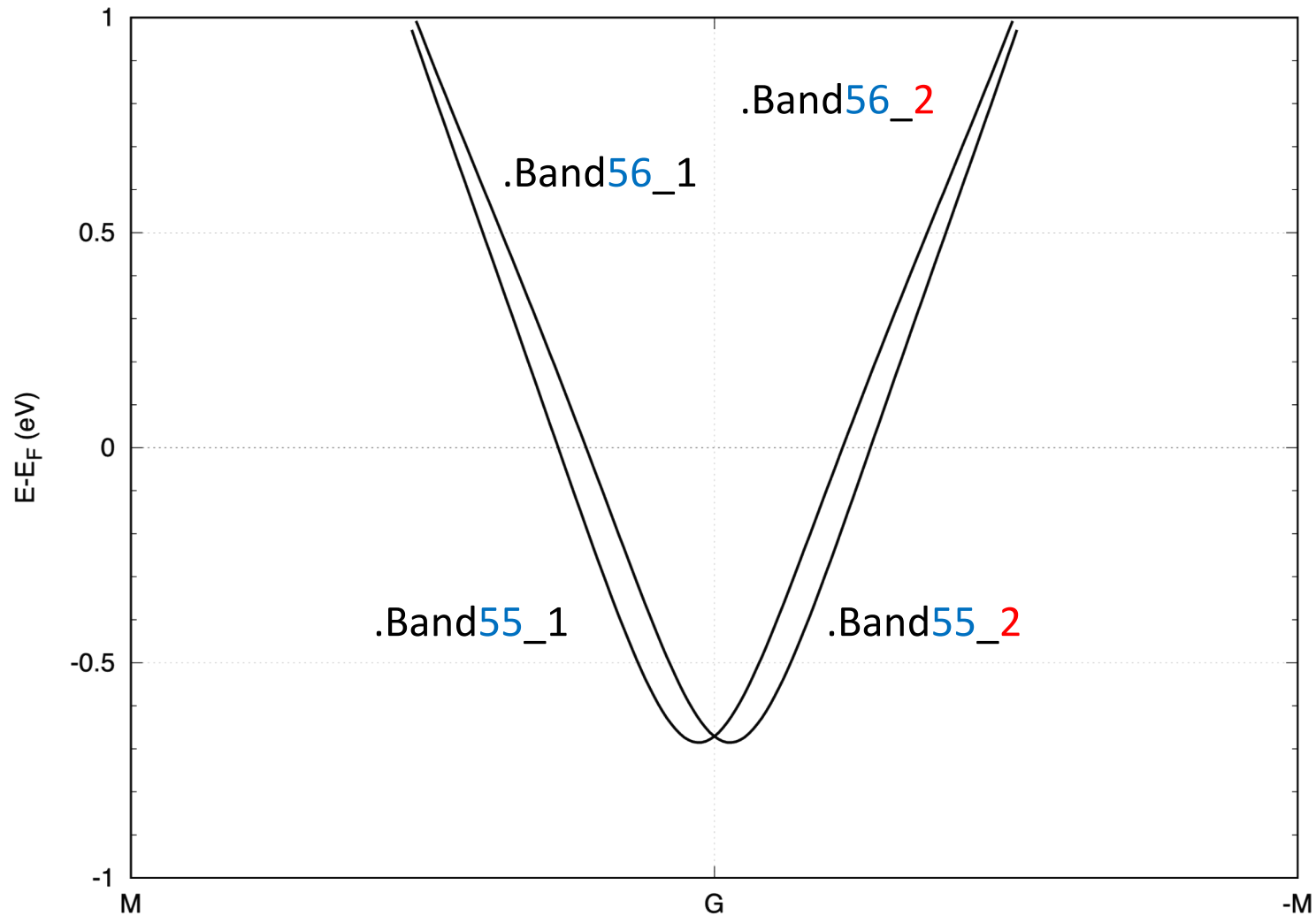
```
gnuplot Au111Surface_BD.plotexample
```

バンド図の例



バンド指数, 区間毎にプロットすることも可能です。

バンド図の例



ファイル名の意味: Au111Surface_BD.Band56_1

バンド指数, 区間毎にプロットすることも可能です。

スピン密度行列の分解

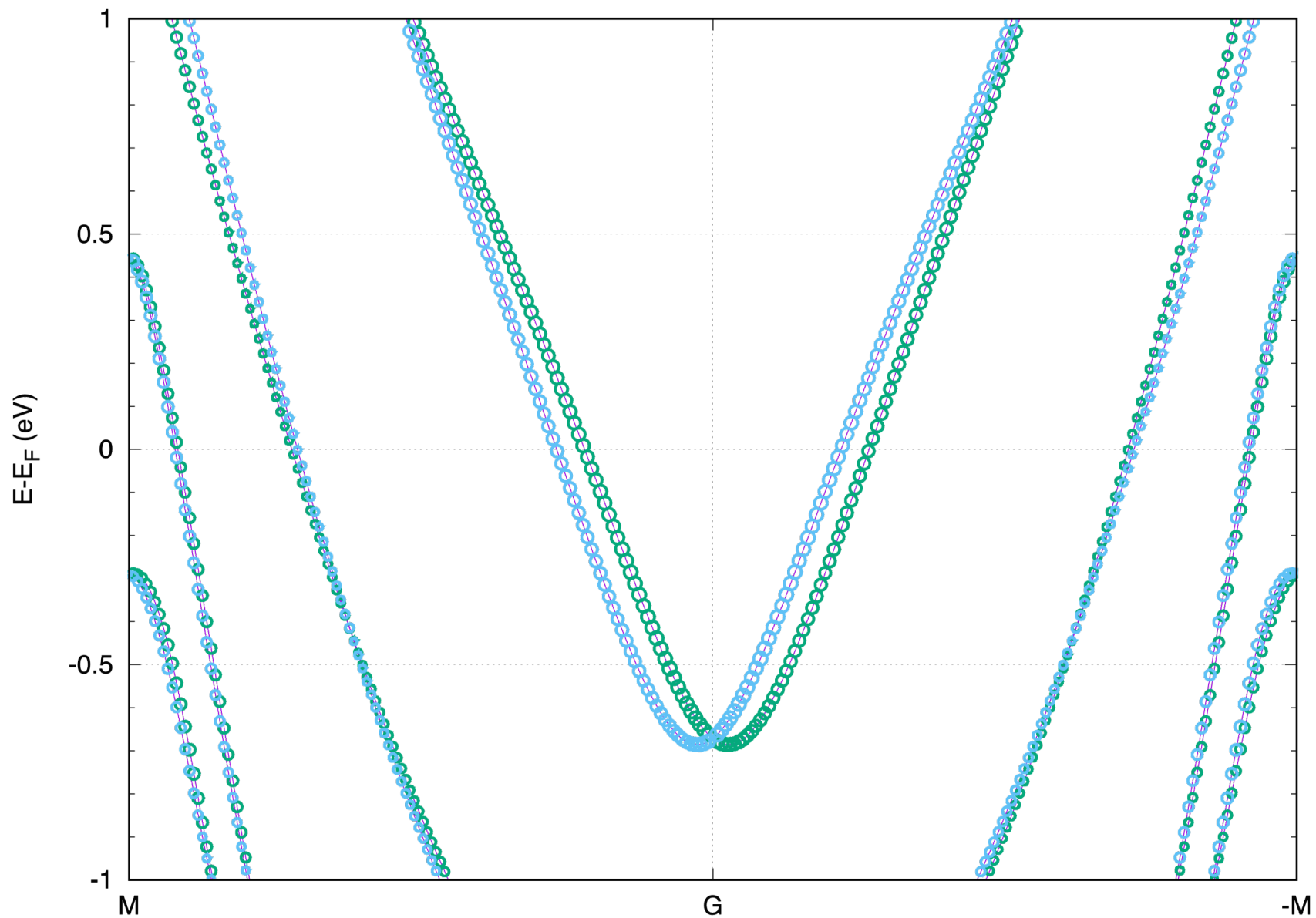
kSpinの後処理プログラム、MulPCalcを利用
(並列計算は不要)

```
Filename.atomMulP Au111Surface_BD.AMulPBand # default: default
Filename.xyzdata Au111Surface_BD_MC # default: default
Num.of.Extract.Atom 3 # default: 1
Extract.Atom 1 2 3 # default: 1 2 ... (Num.of.Extract.Atom)
```

を入力ファイルに追記してMulPCalcを実行。
(今日はAu111Surface_BD.datに追記した
Au111Surface_BD_MC.datを使って計算。)

```
MulPCalc ./Au111Surface_BD_MC.dat
gnuplot Au111Surface_BD_MC.plotexample
```

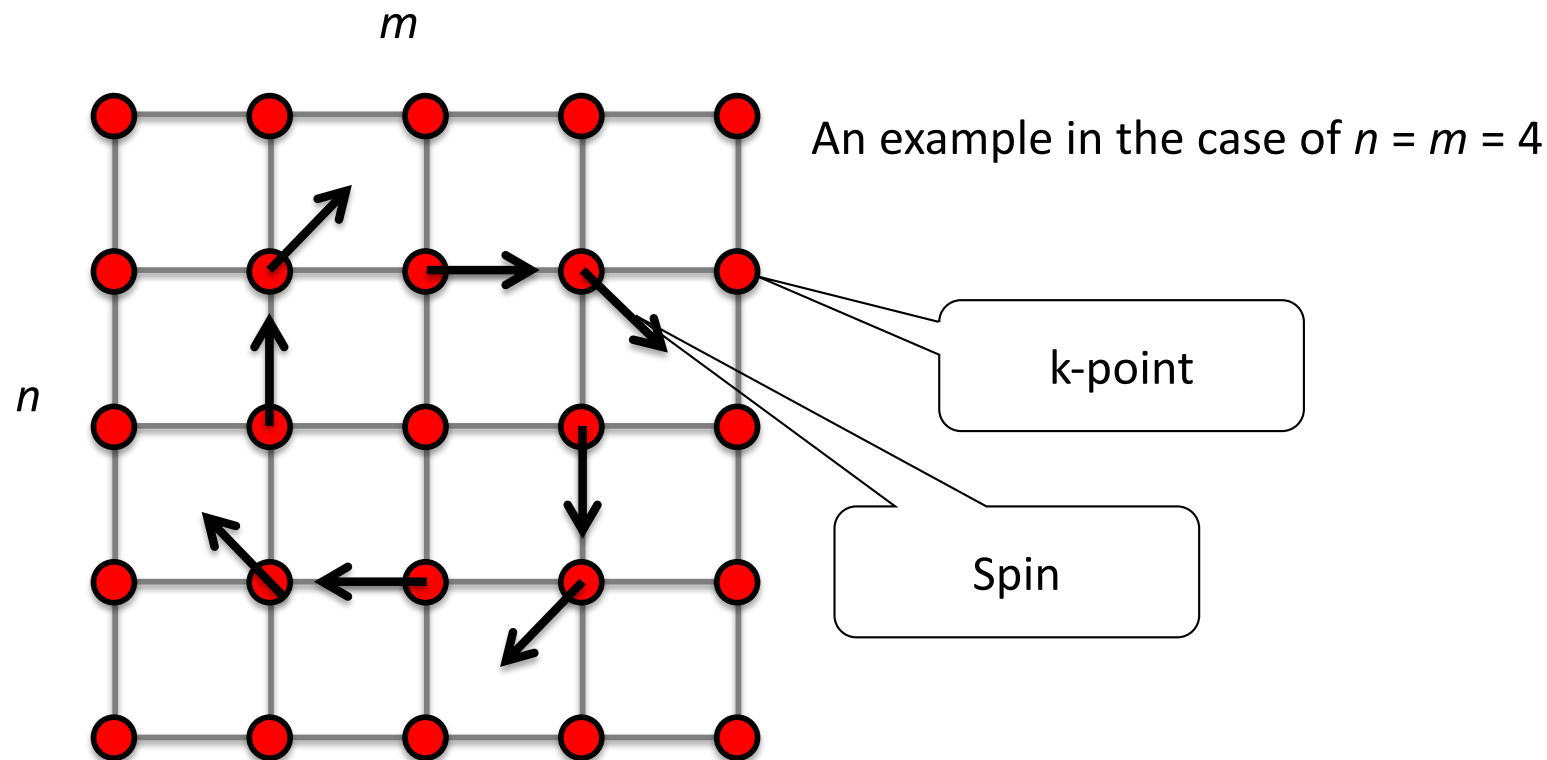

バンド図のスピンの解析



Calc.Type GridCalc

k空間のスピンド分布計算

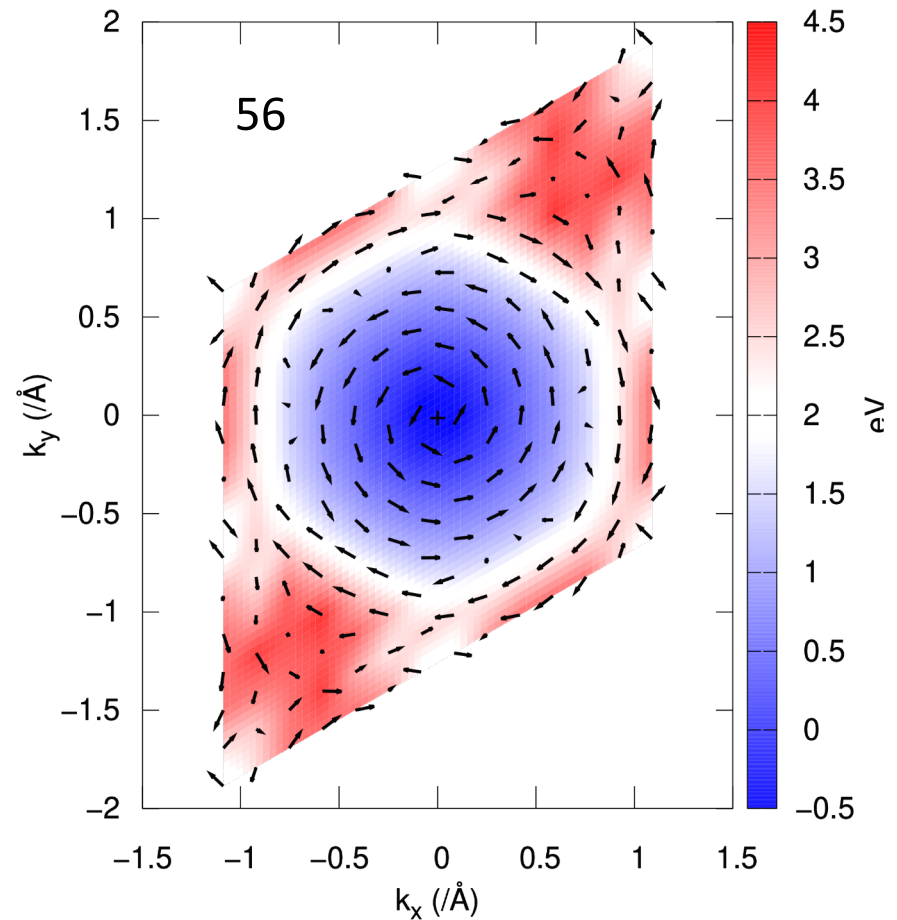
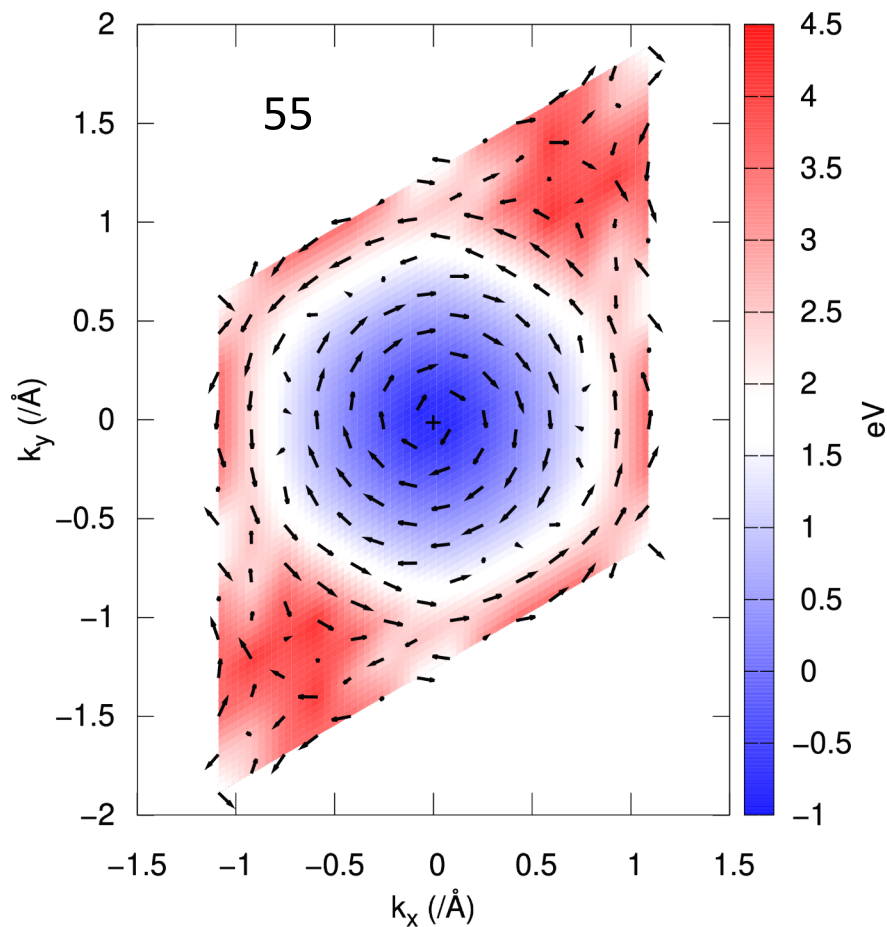
1. Set an n by m k-point grid in a user-specified two-dimensional reciprocal space.
2. Solve eigenvalue problems at each k-point.
3. Calculate the k-space spin density matrices at each k-point.



k空間でのスピン分布計算: GridCalc

```
qsub jobGC_scf.sh  
gnuplot Au111Surface_GC.plotexample_55  
gnuplot Au111Surface_GC.plotexample_56
```

水素を付けた側から見ている
電場方向がAuから水素の方向で考える
て右ねじの法則に磁場
(電子スピンは磁場と反対方向を向く)
でエネルギー低い方が右まわり



② calB

- ベリー曲率の計算
- トポロジカル不変量の計算
 - Chern数の計算

例題:

グラフェンのベリー曲率

カゴメ格子のベリー曲率, Chern数

参考文献

calBを用いた計算結果の発表を行う際には、以下の文献を引用して頂けると幸いです。

- Y. P. Mizuta and F. Ishii, Sci. Rep., 6, 28076(2016).
- H. Sawahata, N. Yamaguchi, H. Kotaka, and F. Ishii, Jpn. J. Appl. Phys. 57, 030309 (2018).
- Y.P. Mizuta, H. Sawahata, and F. Ishii, Phys. Rev. B, 98, 205125 (2018).

固体の電子状態計算手法におけるベリ一位相理論の進展

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \underbrace{u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})}_{\text{周期関数}}$$

: 結晶運動量 \mathbf{k} をもつ Bloch 波動関数,
 \mathbf{k} 空間での波動関数の構造が電子の振る舞いを決める

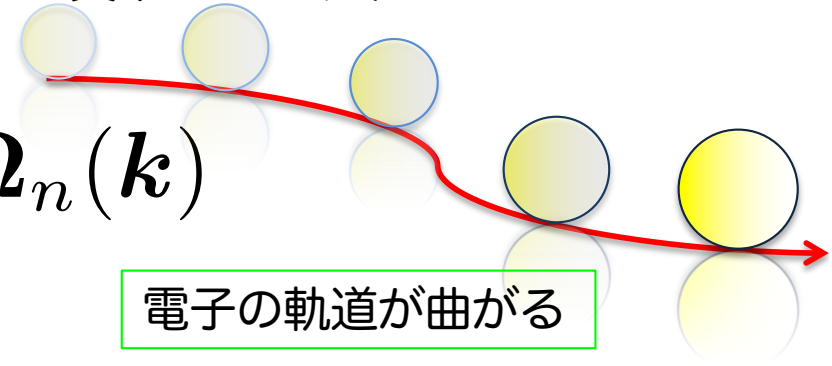
$$\mathbf{A}_n(\mathbf{k}) = i \langle u_{n\mathbf{k}} | \nabla_{\mathbf{k}} | u_{n\mathbf{k}} \rangle \quad \text{ベリ一位相} \rightarrow \text{電気分極}$$

ベリ一位相: $\phi_z = \int_0^{G_z} A_z(\mathbf{k}) dk_z$

仮想的なベクトルポテンシャルと磁場に対応

$$\boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k}) = \nabla_{\mathbf{k}} \times \mathbf{A}_n(\mathbf{k}) \quad \text{ベリ一位曲率} \rightarrow \text{異常ホール効果}$$

$$\mathbf{v}_n(\mathbf{k}) = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon_n(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}} - \frac{e}{\hbar} \mathbf{E} \times \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k})$$



電子の軌道が曲がる

過去30年で大きく進展

- **Electric polarization** in insulators, RMP, 66,899(1994)
- **Anomalous Hall effect** and related issues, RMP, 82,1539(2010), 82,1959(2010)
- **Topological insulators**, RMP, 82, 3045(2010)
- **Weyl and Dirac semimetals**, RMP, 90, 015001(2018)

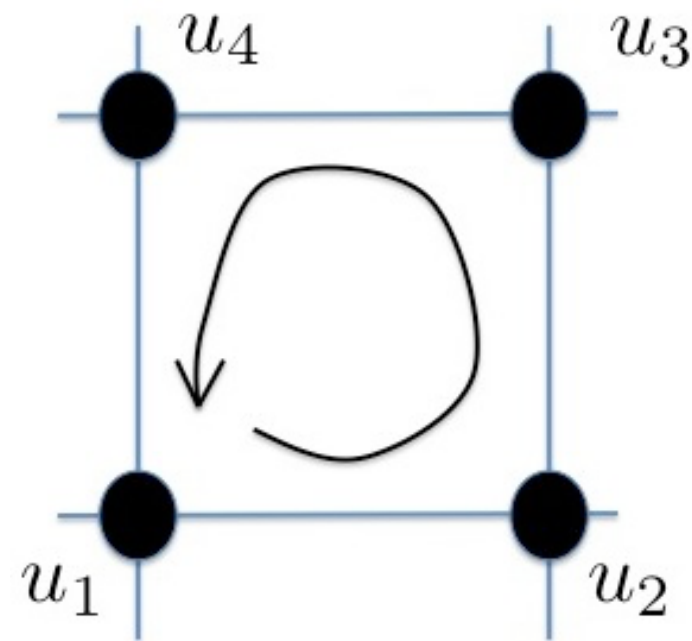
Fukui-Hatsugai-Suzuki法による計算

$$\begin{aligned}\Omega(\mathbf{k}) &= (\nabla \times \mathbf{A})_z \\ &= A_{k_y}(\mathbf{k} + \Delta k_x) - A_{k_y}(\mathbf{k}) - (A_{k_x}(\mathbf{k} + \Delta k_y) - A_{k_x}(\mathbf{k}))\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\mathbf{A}_\mu(\mathbf{k}) &= \text{Im} \log U_\mu(\mathbf{k}) \\ U_\mu(\mathbf{k}) &= \langle u(\mathbf{k}) | u(\mathbf{k} + \Delta\mu) \rangle\end{aligned}$$

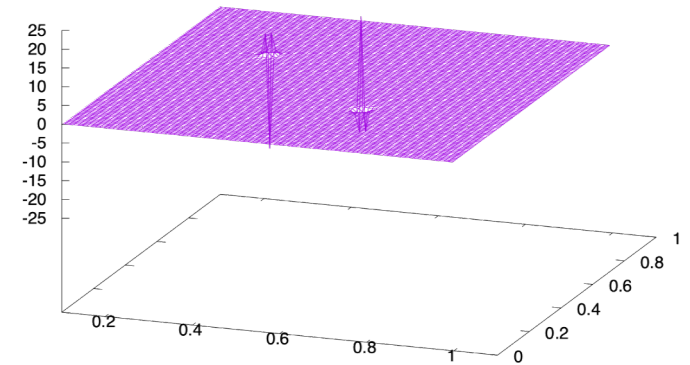
$$U_{ab} = N^{-1} \det \langle u_a | u_b \rangle$$

$$\begin{aligned}\Omega(\mathbf{k}) &= \text{Im} \log U_{12} U_{23} U_{34} U_{41} \\ C &= \sum_{\text{BZ}} \Omega(\mathbf{k})\end{aligned}$$



Graphene

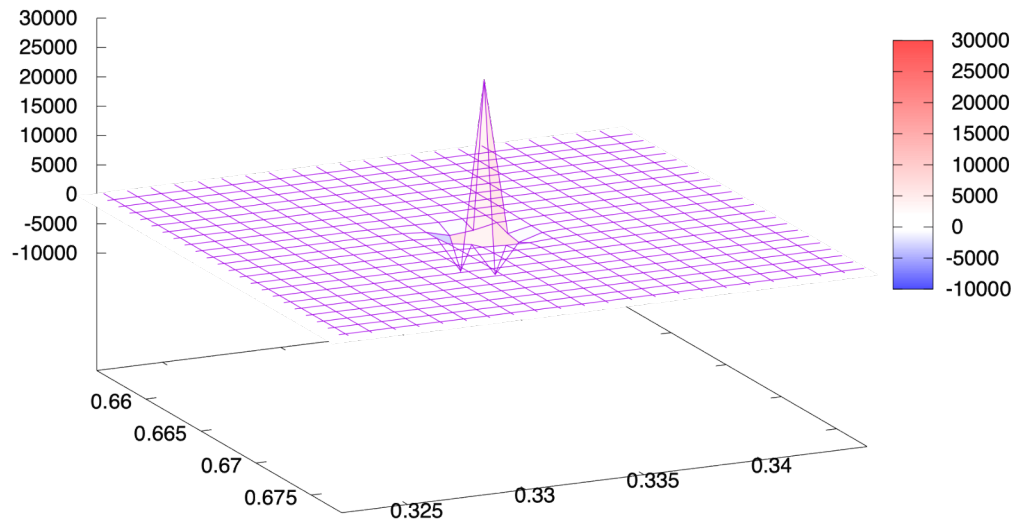
```
qsub job_Graphene.sh  
qsub jobCB_G.sh  
gnuplot  
splot 'BerryC8.dat' w l
```



対話形式か標準入力から読み込む入力ファイルが必要(jobCB_G.shを確認)

- 1 : ベリー曲率の総和計算 (0: 各バンドのベリー曲率を計算)
- 0 : 計算に考慮するバンド数を指定 (0の場合は占有バンド)
- 0 0 1 : 波数空間の平面を指定, この場合は $k_3=0$
- 100 100 : 平面のメッシュ分割数

Graphene



ベリー曲率の単位は \AA^2

(マニュアル, プログラムの出力の表記は間違い)

$$\Omega_n(\mathbf{k}) = \nabla_{\mathbf{k}} \times \mathbf{A}_n(\mathbf{k})$$

対話形式か標準入力から読み込む入力ファイルが必要(jobCB_G.shを確認)

- 1 : ベリー曲率の総和計算 (0: 各バンドのベリー曲率を計算)
- 0 : 計算に考慮するバンド数を指定 (0の場合は占有バンド)
- 0 0 1 : 波数空間の平面を指定, この場合は $k_3=0$
- 1000 1000 : 平面のメッシュ分割数

カゴメ格子

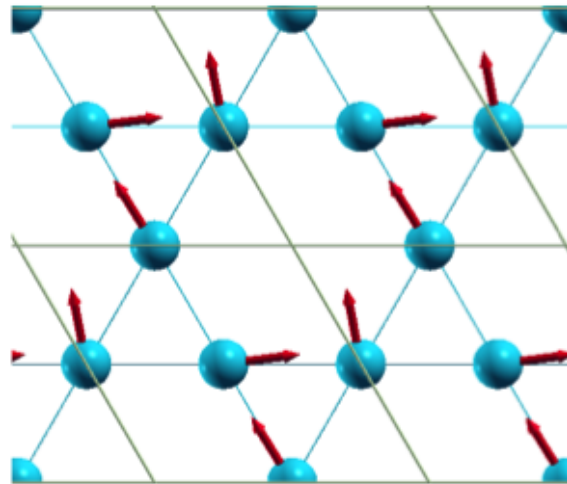
```
qsub job_Kagome.sh  
qsub jobCB_K.sh  
grep 'Chern' BerryC1.dat
```

kagome.dat

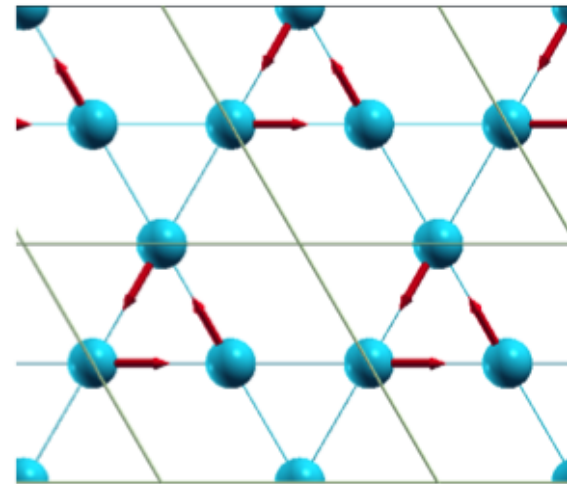
$$\chi := \frac{1}{8\pi} \mathbf{S}_1 \cdot (\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_3)$$

1	H	0.5	0.5	0.5	1.0	0.0	70.00	180.00	0.0	0.0	1	on
2	H	0.5	0.0	0.5	1.0	0.0	70.00	300.00	0.0	0.0	1	on
3	H	0.0	0.5	0.5	1.0	0.0	70.00	60.00	0.0	0.0	1	on

$\chi < 0$



$\chi > 0$

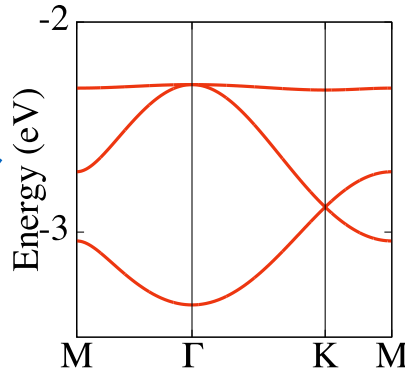


¹⁰K. Ohgushi, S. Murakami and N. Nagaosa, Phys. Rev. B **62**, 10 (2000).

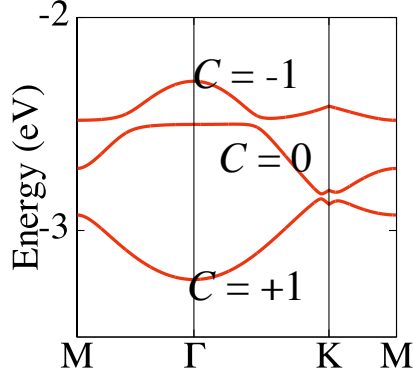
カゴメ格子

```
grep 'Chern' BerryC1.dat  
#ChernNumber = -1.000000  
Gnuplot  
set pm3d at b  
splot 'BerryC1.dat' w l
```

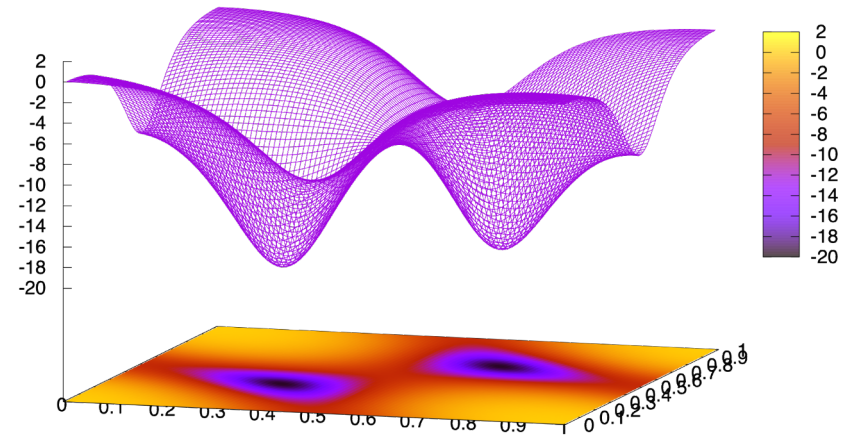
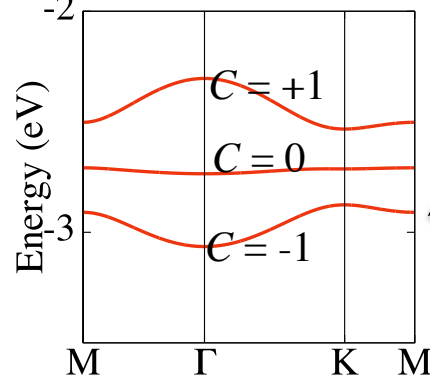
$\chi = 0$ (FM)



$\chi < 0$



$\chi > 0$



ベリー曲率

③ Z₂FH

- ・トポロジカル不変量の計算
 - ・Z₂数の計算

例題:

グラフェン, Bi₂Se₃

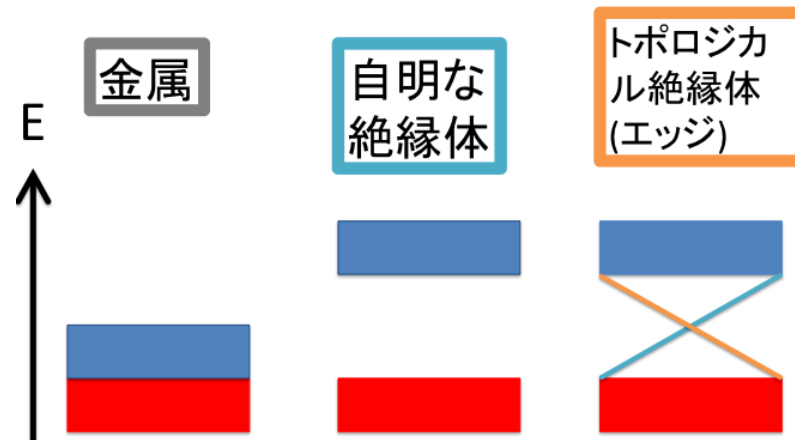
参考文献

Z2FHを用いた計算結果の発表を行う際には、以下の文献を引用して頂けると幸いです。

- H. Sawahata, N. Yamaguchi, H. Kotaka, and F. Ishii, Jpn. J. Appl. Phys. 57, 030309 (2018).
- H. Sawahata, N. Yamaguchi, and F. Ishii, App. Phys. Express, 12, 075009 (2019).

Z_2 数とは

Z_2 数は0もしくは1の指標であらわされ、時間反転対称性によって守られた金属状態(エッジ状態)を端・表面で有するか否かをバルクの計算で判断することが可能



澤端日華瑠, 卒業論文(2016)

Fukui-Hatsugai法による計算

$$Z_2 = \frac{1}{2\pi} \sum_n^{\text{occ.}} \left(\int_{\partial B} \mathbf{A}_n \cdot d\mathbf{k} - \int_B \Omega_{nz} dk^2 \right) \pmod{2}$$

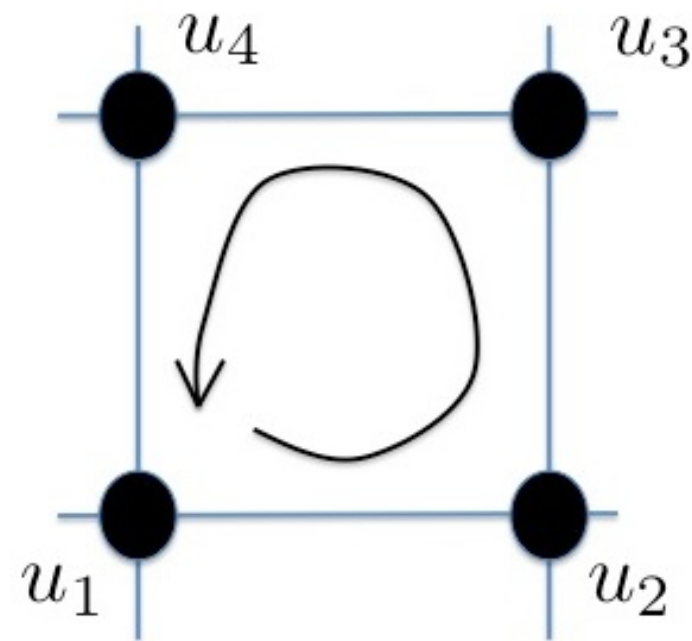
$$\begin{aligned} \textcircled{1} \quad \Omega(\mathbf{k}) &= (\nabla \times \mathbf{A})_z \\ &= A_{k_y}(\mathbf{k} + \Delta k_x) - A_{k_y}(\mathbf{k}) - (A_{k_x}(\mathbf{k} + \Delta k_y) - A_{k_x}(\mathbf{k})) \\ &\quad - 2\pi n_{k_x k_y}(\mathbf{k}) \end{aligned}$$

$$\mathbf{A}_\mu(\mathbf{k}) = \text{Im} \log U_\mu(\mathbf{k})$$

$$U_\mu(\mathbf{k}) = \langle u(\mathbf{k}) | u(\mathbf{k} + \Delta\mu) \rangle$$

$$U_{ab} = N^{-1} \det \langle u_a | u_b \rangle$$

$$\begin{aligned} \textcircled{2} \quad \Omega(\mathbf{k}) &= \text{Im} \log U_{12} U_{23} U_{34} U_{41} \\ C &= \sum_{\text{BZ}} \Omega(\mathbf{k}) \end{aligned}$$



格子Chern数

$$n_{k_x k_y} \quad n(\mathbf{k}) = \frac{1}{2\pi} \sum_n^{\text{occ.}} (A_{12} + A_{23} + A_{31} + A_{41} - \Omega)$$

①と②から $n_{k_x k_y}$ を求める

$$Z_2 = \frac{1}{2\pi} \sum_{\text{Half BZ}} n_{k_x k_y} \pmod{2}$$

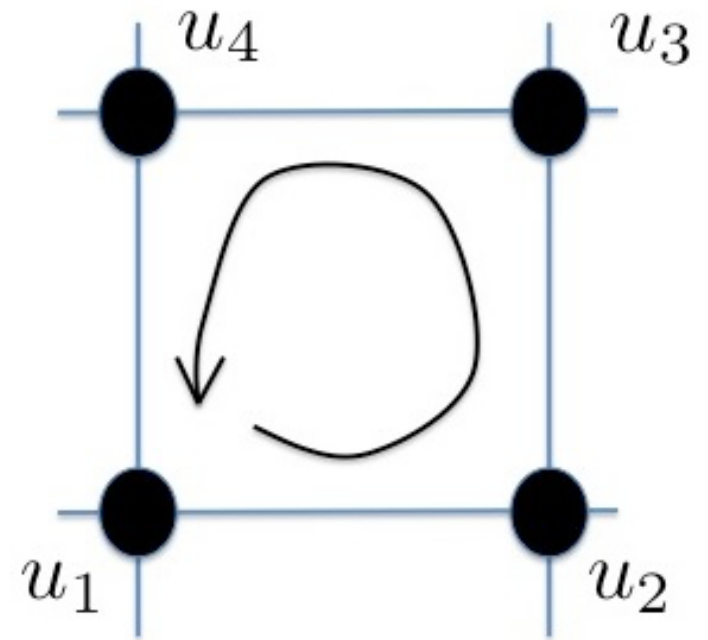
$$\begin{aligned} \textcircled{1} \quad \Omega(\mathbf{k}) &= (\nabla \times \mathbf{A})_z \\ &= A_{k_y}(\mathbf{k} + \Delta k_x) - A_{k_y}(\mathbf{k}) - (A_{k_x}(\mathbf{k} + \Delta k_y) - A_{k_x}(\mathbf{k})) \\ &\quad - 2\pi n_{k_x k_y}(\mathbf{k}) \end{aligned}$$

$$\mathbf{A}_\mu(\mathbf{k}) = \text{Im} \log U_\mu(\mathbf{k})$$

$$U_\mu(\mathbf{k}) = \langle u(\mathbf{k}) | u(\mathbf{k} + \Delta\mu) \rangle$$

$$U_{ab} = N^{-1} \det \langle u_a | u_b \rangle$$

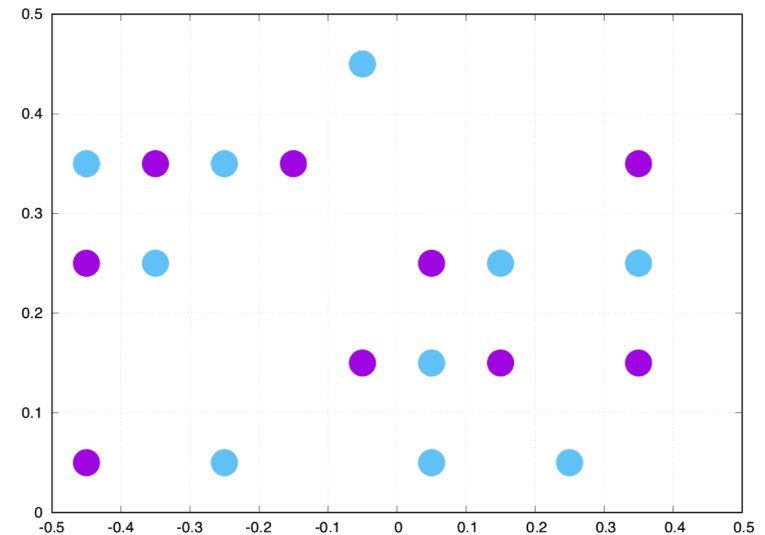
$$\begin{aligned} \textcircled{2} \quad \Omega(\mathbf{k}) &= \text{Im} \log U_{12} U_{23} U_{34} U_{41} \\ C &= \sum_{\text{BZ}} \Omega(\mathbf{k}) \end{aligned}$$



グラフエン

格子Chern数
水色が-1, 紫色が+1

```
qsub jobZ2_G.sh  
gnuplot  
load 'LCNum6.pl'
```



対話形式か標準入力から読み込む入力ファイルが必要(jobZ2_G.shを確認)

- 5 : ブリルアンゾーン(1/4領域)のメッシュ刻み
- 0 : 1の場合は3次元のトポロジカル指数を全て計算)
- 5 : 二次元でxy平面の場合は z_0 のみ計算)

グラフエン

```
qsub jobZ2_G.sh  
gnuplot  
load 'LCNum6.pl'
```

対話形式か標準入力から読み込む入力ファイルが必要
(jobZ2_G.shを確認)

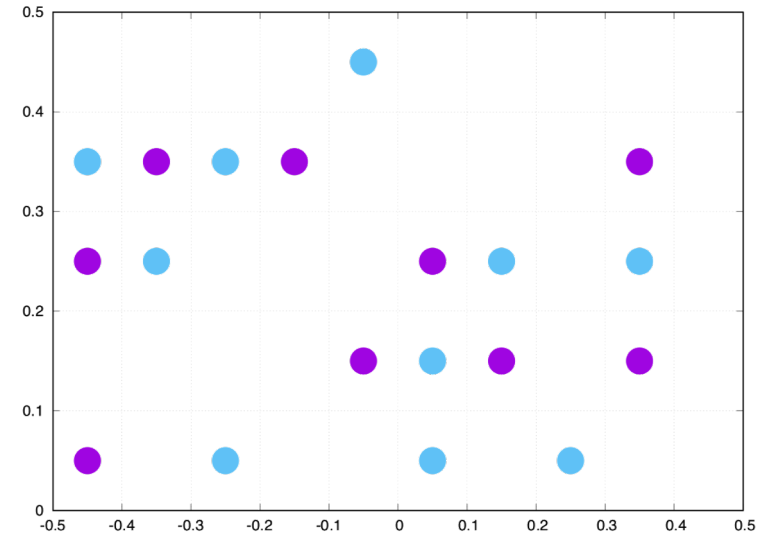
- 5 : ブリルアンゾーン(1/4領域)のメッシュ刻み
- 0 : 1の場合は3次元のトポロジカル指数を全て計算)
- 5 : 二次元でxy平面の場合は z_0 のみ計算)

2行目を1とした場合、無駄に計算されるが、
Z2.datに

Z2 invariant:(nu0,nu1,nu2,nu3):(0,0,0,1)

と表示される。

格子Chern数
水色が-1, 紫色が+1



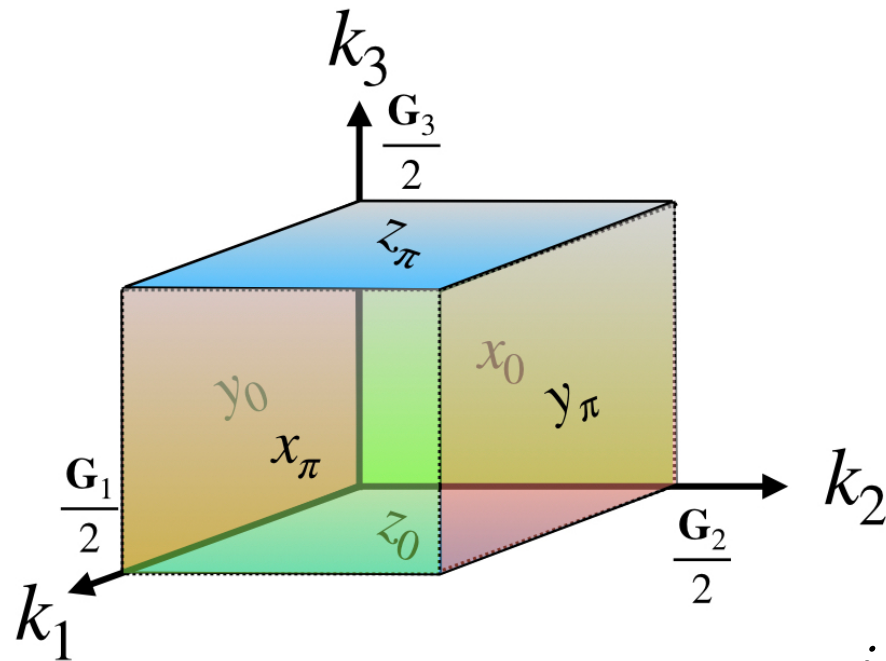
合計が-1のため $Z_2=1$ で
グラフエンはトポロジカル
絶縁体である。

Bi₂Se₃

```
qsub job_Bi2Se3.sh
qsub jobZ2_BS.sh
cat Z2.dat
```

Z2 invariant:(x0,xpi,y0,yi,z0,zpi)=(1.000000,0.000000,1.000000,0.000000,1.000000,-0.000000)
Z2 invariant:(nu0,nu1,nu2,nu3):(1,0,0,0)

$$Z_2 = (\nu_0, \nu_1, \nu_2, \nu_3) = (x_0 + x_\pi, x_\pi, y_\pi, z_\pi)$$



z_2 不変量の関係式をチェックする

$$x_0 + x_\pi = y_0 + y_\pi = z_0 + z_\pi \pmod{2}$$

今の場合: $1+0=1+0=1+0$, OK

$\nu_0 = 1$ 3方向の表面に金属状態が生ずる**強い**トポジカル絶縁体

$\nu_0 = 0, \nu_i = 1$ ($i = 1, 2, 3$)

i 方向に金属状態が生ずる**弱い**トポジカル絶縁体