

論文審査の結果の要旨

氏名 佐久間 怜

凝縮系電子状態の数値計算法を確立することは、計算物性物理学や物質科学などにおける極めて重要な問題であり、半世紀以上も研究が進められてきた。現在数値計算手法として最もスタンダードなものとして、密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT) が主に用いられているが、その計算精度は sp 物質のような電子相関が比較的弱い系に対しては良好であるものの、電子相関が強い物質に関してはしばしば破たんする。DFT の限界を超えて定量的な計算を行うことが、現在の電子状態計算の分野における大きな課題になっている。これまでモンテカルロ法や多体摂動論に基づく方法 (GW 法など) が開発され精度の向上が図られているが、全エネルギーや原子間力に関してはまだまだ不十分な段階である。

申請者の佐久間怜氏は、この問題に対してトランスコリレイテッド法 (Transcorrelated: TC) と呼ばれる研究室独自の方法を用いて取り組んだ。この方法は、孤立系に対しては有効であることが共同研究者の梅沢らによって示されてきたが、凝縮系に対する有効性は分かっていない。佐久間氏は今回、凝縮系への拡張というかなり大変な作業を成し遂げた。バンド分散に関しては、ケイ素や炭素といった sp 物質に対しては DFT に比べてかなりの改善を示すことが明らかとなり、電子相関がより強い YH₃ に対しても GW 法並の精度の向上がみられることが分かった。ただ、全エネルギーや原子間力に関する実証計算までにはこぎつけられなかったため、GW 法と比べての相対的優位性は示すことができなかった。しかし、TC は GW 法と異なり本質的な困難があるとは考えにくいいため、TC 法は将来の電子状態計算の一つの標準的手法となる可能性があるといえる。この新しい手法の開発とその可能性実証を行った点が非常に評価できる。

提案者は、DFT、GW 及び TC 法を用いて YH₃ の示す圧力誘起構造相転移の問題にも取り組んだ。この物質は圧力をかけることにより 23GPa 付近で絶縁体相 (fcc) が fcc 構造を保ったまま金属相に相転移し、吸収係数が突然ゼロになることが実験的に知られている。その原因については水素原子の変位などいくつかの可能性があり、そのメカニズム解明が問題になっている。

この系の電子状態の変化を中心に研究を進めた。DFT では 20GPa 付近で水素原子が連続的に変位を示すことができるが、DFT は電子状態が常に金属的になるため連続的な転移と結論付けることはできない。GW 計算では、まず絶縁体的な電子状態から金属的な電子状態への変化を示すことが示された。全エネルギー

一の変化を示せばそれが直接的なデータとなるが、上記のように GW 計算はそれができない。しかし相転移点付近と思われるところに GW 計算が二種類の自己無撞着解を持つことがわかり、それが間接的なデータとなると論じた。また吸収係数を計算するとそれぞれの自己無撞着解に対してその値がかなり異なることが分かった。この結果から水素原子変異が伴う相転移であると予想されるが、水素欠損が絡んでいる可能性なども否定できないと論じている。

さらに TC 法による計算をこの系に適用した。上述の通り GW によるバンドがかなりの精度で再現できることが見いだされた。かなり異なるアプローチから同様な結果が得られたことは自明ではないことであり、恐らくは TC および GW のレベルで既に正しいバンド分散が得られていることを示唆しているものと思われる。全エネルギーや原子間力の計算は将来の課題として残された。

以上の内容が全 6 章から成る本論文にまとめられ、第 1 章では YH_3 の物性とそれを定量的な計算でアプローチすることの意義について、第 2 章では LDA, GW, TC について計算手法の詳細を、第 3 章では LDA を用いた最適化構造とバンド分散を、第 4 章では GW を用いた電子状態計算を、第 5 章では TC 法を用いた計算結果を記し、それらが第 6 章で要約されている。

以上、本研究では、第一原理的な立場に立脚した新たな電子状態計算手法の開発と電子相関のある系への適用を行い、その計算手法が従来の計算手法(LDA)を超え、しかも最近開発が進んでいる計算手法(GW)と比べても遜色のない有望な方法であることを示している。この計算手法は将来の物性研究に対して十分大きな貢献がなされるものと認められる。

尚、本論文の主要部分は指導教員らとの共同研究として学術雑誌に公表予定であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。したがって、審査委員全員一致で博士(理学)の学位を授与できると認める。