

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 平山元昭

多様な物質の示す物性を第一原理から理解するためのシミュレーション手法開発の需要は大きい。その中でも、電子間のクーロン相互作用の効果をより深く理解し利用する道筋を明らかにすることが、基礎物質科学の進展のみならず、応用展開の鍵を握っていることも指摘されている。特に遷移金属化合物、希土類化合物、有機化合物およびナノ構造物質のような強相関電子系に対する高精度電子状態計算法の開発は重要性が高い。

これに対し、最近になってクーロン相互作用の効果の大きな現実物質の物性を予測する上で、汎用性が高い高精度計算手法が発展してきた。この手法は強相関電子系の持つ特有のエネルギー階層構造を利用したもので、階層的な第一原理強相関電子状態計算法と呼ばれ、以下の3段階からなる。

(1) 高エネルギーの電子構造を密度汎関数理論(局所密度近似(LDA)や一般化勾配近似(GGA)あるいはGW近似)に基づいて求めながら、高エネルギー短時間の自由度のふるまいを求める。

(2) 繰り込み操作によって、ダウンフォールディングという手法で低エネルギー、長時間スケールを扱う有効モデルを導出する。

(3) この有効モデルを信頼性の高い低エネルギーソルバーによって数値的に解く。

この手法はいくつかの遷移金属酸化物や有機導体などに適用されて成功を収めてきた。しかし手法自体が開発されてからまだ日が浅く、方法論的にまだ未完成であり、適用範囲を広げ、精度を上げる上でいくつかの課題が認識されていた。

適用範囲を広げる方向の一つの課題が周期性のない表面や界面、不規則系のような場合への拡張である。今までの適用は完全結晶を仮定したバルク周期系に限られていた。一方界面や表面は基礎科学、テクノロジー応用の両面から極めて重要な対象となってきたにもかかわらず、実験的にも理論的にもバルクに比べて、理解が限定されている。また階層的な第一原理強相関電子状態計算法にとっても、周期性が途切れることによって、通常のダウンフォールディング法に困難があることが知られていた。

精度を高めていく上での方法論的な課題には(1)での密度汎関数法での電子状態計算で不十分ながらも取り入れられている電子相関と、(3)で考慮される低エネルギー部分の高精度の電子相関による二重勘定を如何に除去するかという問題があった。従来は(1)で考慮される電子相関効果は小さいという仮定で無視されることが多かったが、この近似には限界もある。その一つが後述する鉄系超伝導体の磁気秩序に現れている。また第二段階で得られる有効モデルには振動数(エネルギー)に依存するパラメタが含まれるが、実際に(3)で有効モデルを解くときには振動数依存性を無視することが多く、この不整合性を如何に除くかということも課題であった。

本論文では、上記の問題を解決する試みを提案している。

構成は、導入部に続いて、界面系を研究した第2章、二重勘定除去や振動数依存性を扱う方法論を研究した第3章、および第3章で開発した手法を鉄系超伝導体に適用した第4章、およびまとめと結論の第5章からなり、全体として英文で5章からなる。

第2章の界面系の問題では適切な厚みのスーパーセルと境界条件を設定して遮蔽効果を求めただけでなく、界面からの距離とともに絡み合う複雑なバンド構造の絡み合いをほどこき、界面によく局在するワニエ軌道を抽出することに成功し界面近傍の有効模型の導出に成功した。これは初めての界面系でのダウンフォールディングである。

第3章では密度汎関数法で考慮される交換相関ポテンシャルという量を完全に引き去った後に、(3)で考慮される電子相関を除いた高エネルギー部分だけの自己エネルギーを取り込む手法を実装して二重勘定の問題を解決した。また振動数依存する部分を一体エネルギーに自己エネルギーとして取り込む定式化も実装した。

第4章でこの手法を実際に鉄系超伝導体に適用した。FeTe の磁気秩序が二重ストライプ構造を持ち、FeSe で長距離磁気秩序が存在しないという実験事実は、従来階層的第一原理強相関電子状態計算法ではうまく説明できていなかったが、申請者の手法改良を適用した結果、多変数変分モンテカルロ計算によって正しく説明しうることが示され、妥当な直観的解釈も加えた。

第5章は全体のまとめと今後の展望である。

以上、平山元昭提出の本論文は、強相関電子系のために急速に発展しつつある階層的な第一原理強相関電子状態計算法の適用範囲を広げ、精度を高める上で顕著な貢献をしたものと認められ物理学および物理工学への寄与は大きい。以上議論した結果、本論文審査委員会は全員一致で本研究が博士(工学)の学位論文として合格であると判定した。

なお本論文は産業技術総合研究所三宅隆氏、および指導教員今田正俊との共同研究の部分があるが、論文提出者が主体となった計算、解析において、論文提出者の寄与が、学位授与に当たって十分であることが認められた。