

要旨

物質科学においてシミュレーションが果たす役割は拡大し続けている。シミュレーションによる予測は、その物質の合成なしに興味ある材料の予測を可能にし、実験では観測が難しい物理量も調べることができるという利点がある。現在、最もよく使われているシミュレーション手法は、密度汎関数理論 [Density Functional Theory (DFT)] を基礎とする第一原理電子状態計算手法である。しかし、局所密度近似や一般化勾配近似により実装された従来の DFT は、 d 電子など局在性の強い電子軌道が化学結合および物性に重要な役割を果たす遷移金属酸化物などの物質群では問題を抱えている。また、DFT は、絶対零度の計算手法であり、有限温度に適用するためには、更なる工夫が必要である。このような状況を踏まえ、遷移金属酸化物などの物質群を有限温度で取り扱うための取り組みの一つとして、DFT と動的平均場理論 (DMFT) を組み合わせた DFT+DMFT が開発され、モット絶縁体を始めとする強相関化合物に適用されてきた。

しかし、DFT+DMFT を様々な系へと適用する上で、多くの課題が残されている。例えば、不純物問題の解法として、多自由度系における計算コストの観点から量子モンテカルロ法が有望であるが、多自由度系では負符号問題が深刻化することが知られており、物性にとって重要な低温領域でのシミュレーションが難しくなる。また、虚時間軸上の計算を行う量子モンテカルロ法では、励起スペクトルの計算には虚時間から実時間への解析接続が必要となる。しかしながら解析接続の不安定性によって観測量の計算精度が影響を受けることが知られている。

本研究では、多自由度系へ適用可能な実時間・実周波数解法に着目する。近年、実時間解法の開発に進展が見られ、自然軌道を用いた 1 電子基底を最適化することにより、基底状態に必要な基底数を抑え、300 個のバスサイトを含む計算が可能になった。本修士論文では、先行研究を再現し、その後、実際の物質を扱うことを念頭に置き、多軌道系の計算のための最適化や有限温度へのアルゴリズムの拡張を目指した。少数のバスサイトを用い、短距離クーロン相互作用が小さい領域で 2 次摂動と比較し、一致することを確認した。また、先行研究と相関が弱い領域で比較を行い、一致を確認した。