

研究項目 A01 公募研究

「メタマテリアルのための動的電流密度汎関数理論の構築」

研究代表者 樋口 雅彦 (信州大学)

私の所属する学科に、武田三男氏と宮丸文章氏が主宰する光物性研究室があります。彼らによるメタマテリアルの電磁応答現象の研究を間近で聞くうちに、第一原理的にこれらを記述することが可能ではないかと考えるようになりました。以下、自己紹介を兼ねてこれまで行ってきた研究と、それをメタマテリアルの研究にどう生かそうとしているかを説明します。



われわれが日常接する固体や液体などの凝縮系は、アボガドロ数のオーダーの原子により構成されています。凝縮系の示す性質、例えば電磁波の反射・屈折・透過といった電磁応答現象は、構成する電子と原子核が外部場と絡み合いさらにはお互い同士も複雑に絡み合った結果あらわれます。凝縮系の諸物性を理解するとは、外部場のもとで複雑に絡みあった電子と原子核の多体問題をいかにして解くかということに他なりません。このような大きな自由度の系の多体問題は、多くの場合、それを表すハミルトニアンをモデル化するなど簡単化するところから出発し、系の性質を定性的あるいは半定量的に説明する方法がとられます。しかしながら近年の計算機および計算技術の発達に伴い、凝縮系をモデル化せずにあるのまま扱う手法が実行可能になってきました。このような手法が物性論における第一原理計算と呼ばれている手法です[1]。

第一原理計算手法の一つとして、計算機および計算技術を駆使して直接多体のシュレディンガー方程式を解く方法があります。拡散モンテカルロ法や配位置間相互作用法、トランスコリレーテッド法などに代表されるいわゆる波動関数理論です[1]。これらは、系のすべての情報を包含した波動関数を直接求めるものであり、まさに第一原理計算手法の王道的な方法と言えます。しかしながら、バルクのそれを精度良く求めることは、莫大な計算資源を投入しかつ現代の数値計算技術を駆使しても大変困難です。

その一方で、多体問題を見かけ上、一体問題に変換する第一原理計算手法も存在します。もし凝縮系の中の一粒子の感じる局所ポテンシャルが適切に用意できたならば、多体問題は取り扱いが容易な一体問題に変換できるというアイデアです。このアイデアに対する巧妙かつ具体的な処方箋が、1964年、1965年に W. Kohnらによって示されました[2][3]。これが密度汎関数理論 (Density Functional Theory,

以降 DFT と略す) です。DFT は近年最も利用されている第一原理計算手法の一つであり、計算機の発達とともに適用物質は凝縮系全般にわたっています。[1]

それでは、DFT を用いれば凝縮系の諸物性はすべて説明あるいは予言が可能となるのでしょうか。答えは残念ながらノーです。DFT を精密化した先に第一原理計算手法の一つのゴールがあるのは確かですが、凝縮系の「様々な物理量」の説明あるいは予言をゴールとした場合には、DFT ではそれに決して届きません。DFT は系の基底状態の電子密度と全エネルギーの再現は保証していますが、その他の物理量に関しては予言能力がないのです。有限温度に理論を拡張したり、時間依存する場合に拡張したとしても、熱平衡状態の電子密度とグラントポテンシャルであったり、時間発展する電子密度が予言できるのみです。DFT には適応範囲(予言できる物理量)に限界があるということです。

この DFT の原理的な限界を超えるために、再現を保証する物理量が電子密度以外にも広がった第一原理計算手法を構築しようとするのは自然です。近年われわれのグループでは、拡張された制限つき探索理論 (Extended Constrained-Search Theory, 以降 ECS 理論

と略す) を提唱しました [4]。ECS 理論の最大の特長は、系に応じて任意に選んだ物理量が原理的には正確に再現できる点にあります。ECS 理論はその一般性から、従来のさまざまな理論 (スピン密度汎関数理論(SDFT)、電流密度汎関数理論 (CDFT)、LDA+U 法、HF-KS 法など) を包含し

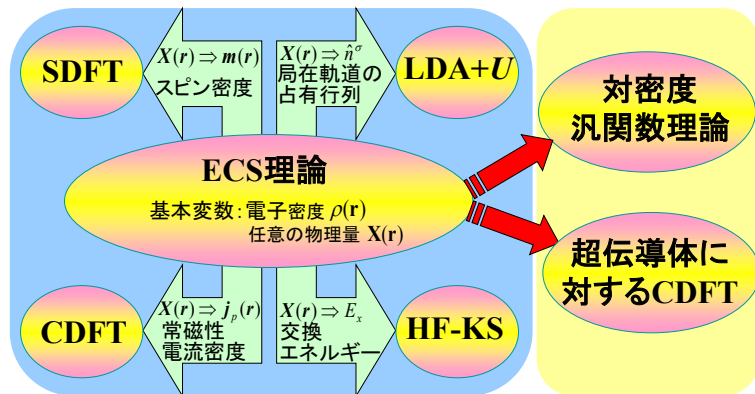


図 1: 拡張された制限付き探索理論 (ECS 理論)

ていることがすでに確認されています (図 1)。これは、ECS 理論が新しい有効理論を構築する際の良い基盤となることを表しています。実際に最近では、ECS 理論を使って「電子相関を表す対密度を再現する理論」 [5]や「超伝導のオーダーパラメータを再現する理論」 [6]の構築にも取り組んでいます (図 1)。

では ECS 理論を用いて、メタマテリアルの電磁応答現象を説明する有効理論は構築できないのでしょうか。電磁応答現象をあらわすためにわれわれが欲しい物理量は物質の多体波動関数そのものではなく、微視的な理論に立脚した「電荷密度



と電流密度」だけで十分です。なぜならば、物質中の「電荷密度と電流密度」が得られれば、微視的マクスウェル方程式を介して物質中の電磁場がすべてわかり、反射・屈折・透過現象がすべて計算できることになるからです。

物質中の「電荷密度と電流密度」を求める微視的理論としては、まさに ECS 理論をメタマテリアル用に具体化させるのが適しています。ECS 理論では所望の物理量の再現を保障するので、メタマテリアルの場合にはその物理量として「電荷密度と電流密度」を選んでやれば良いわけです。これを動的電流密度汎関数理論と呼びます。すでにわれわれのグループでは静的電流密度汎関数理論は開発済みであり[7, 8]、それを基礎に、本公募研究では動的電流密度汎関数理論の構築を目指します。

すでに 2013 年 12 月と 2014 年 3 月の全体会議で概要はお話しましたが、動的電流密度汎関数理論の基礎の部分はできつつあります。具体的には、基本となる二つの定理の証明、そしてそれらを利用して導かれる有効一粒子方程式は導出できました。残りの大きな問題の一つは交換相関エネルギー汎関数の近似形の開発です。DFT および ECS 理論でも避けては通れないこの問題に対しては、すでに静的な理論での蓄積がありますので、それらを参考に今後挑戦していきます。

この分野の方々とはほとんどが初対面だと思います。全体会議などでも色々と教えていただいておりますが、今後ともご教示賜ります様よろしく申し上げます。

参考文献

- [1] 樋口雅彦、他 22 名共著「密度汎関数法の発展-マテリアルデザインへの応用-」(赤井久純、白井光雲編)、(丸善、2011).
 - [2] P. Hohenberg and W. Kohn: Phys. Rev. 136, B864 (1964).
 - [3] W. Kohn and L. J. Sham: Phys. Rev. 140, A1133 (1965).
 - [4] M. Higuchi et al., Phys. Rev. B. 69, 035113 (2004): Phys. Rev. B 69, 165118 (2004): Phys. Rev. B 71, 035116 (2005): Phys. Rev. A. 79, 022113 (2009), Phys. Rev. A. 81, 042505 (2010), 日本物理学会誌 67, 580 (2012).
 - [5] M. Higuchi et al., Phys. Rev. B 75, 042510 (2007): Phys. Rev. B 78, 125101(2008): Phys. Rev. B 82, 155135 (2010): Phys. Rev. A 84, 044502 (2011): Phys. Rev. A 85, 062508 (2012): Phys. Rev. A 87, 032511 (2013).
 - [6] K. Higuchi, K. Koide, T. Imanishi and M. Higuchi, Int. J. Quantum Chem. 113, 709 (2013).
 - [7] M. Higuchi and A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. 66, 149 (1997): J. Phys. Soc. Jpn. 67, 2037 (1998).
 - [8] M. Higuchi et al., Phys. Rev. B 74, 195122 (2006): Phys. Rev. B 75, 195114 (2007).
-