

Generation Scheme of Effective Models Based on Symmetry-Adapted Multipole Basis and Clarification for Universal Properties of Chiral Materials

メタデータ	言語: English 出版者: 公開日: 2023-05-31 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: OIWA, RIKUTO メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10291/00023144

「博士学位請求論文」審査報告書

審査委員 (主査) 理工学部 専任教授

氏名 楠瀬 博明

(副査) 理工学部 専任教授

氏名 菊地 淳

(副査) 理工学部 専任教授

氏名 安井 幸夫

(副査) 東京都立大学大学院理学研究科
准教授

氏名 服部 一匡

1 論文提出者 大岩 陸人

2 論文題名 Generation Scheme of Effective Models Based on Symmetry-Adapted Multipole Basis and Clarification for Universal Properties of Chiral Materials

(和文題) 対称性適合多極子基底による有効模型生成とカイラル物質の
普遍的特性の究明

3 論文の構成

本論文は次の6章から構成されている。

第1章 序論

第2章 理論的背景

第3章 対称性適合多極子基底

第4章 DFTに基づく対称性適合タイトバインディング模型

第5章 カイラルリティの微視的記述

第6章 まとめ

4 論文の概要

本論文は、自然界に広く存在するカイラル物質の普遍的特性を、原子スケールの微視的な立場から究明したものである。また、その究明に必要な理論的基盤を新たに構築し、電子状態の対称性を重視した革新的なモデリング手法の提案も行っている。この手法は、現在、世界中で標準的に用いられている電子状態のモデリング手法の欠点を克服するものである。

物質の特性は、各物質の結晶構造や電子の電荷・軌道・スピン状態によって決まるが、近年、結晶構造と電荷・軌道・スピンの非自明な結合から産み出される新しい物性が数多く見いだされ、スピントロニクス、マルチフェロイクス、トポロジカル物質のような新しい分野が勃興している。なかでも、10年ほど前にイスラエルのグループによって発見されたDNAを通過した電子のスピンが60%程度の高効率で偏極する現象(通称CISS)は、DNAがもつカイラリティの量子的な理解を迫るものとして重要視されている。右手・左手の関係の探求に端緒をもつカイラル物質の研究は、物理学に限らず化学・生物学・生命科学といった広い分野で長年にわたり興味の対象になっているが、原子スケールの極微なレベルでの理解は皆無といってよい。

カイラリティは鏡映対称性と深く関連する概念であり、物質中の対称性を厳密に考慮して、その電子状態をモデリングすることが不可欠であるが、これまでに知られている電子状態モデリング手法はその要請を完全に満たすことができていない。そもそもカイラリティを量子的に記述する方法が知られておらず、最近になって、電気的な擬スカラー(モノポール)という概念を用いて記述できることが分かってきたという状況である。したがって、カイラル物質のモデリングにおいて電気的な擬スカラーの役割を果たす微視的自由度を抽出することが重要である。

本論文では、カイラル物質研究のこのような現状を踏まえて、広く用いられている電子状態のモデリング手法の長所と短所を精査し、微視的カイラリティの究明において対称性を重視した新たなモデリング手法の必要性を指摘している。その要請に応えるため、対称性に基づく分類に適した多極子理論を応用して、結晶群の既約表現で分類された完全正規直交基底を構築し、それらの線形結合により電子状態をモデリングするという手法を提案している。密度汎関数理論(DFT)との比較最適化を機械学習的手法により実行することで、モデリングパラメータの結合係数を決定し、定量的なモデリングを実現している。このような新たに構築した手法を用いて、カイラル結晶の典型物質テルルのモデル化を行い、電気的な擬スカラー自由度とそれと結合する格子回転歪みや電気分極を同定し、外場応答の定量的な解析を行っている。得られた微視的な知見に基づき、電気的な擬スカラーに直接働きかける複合外場によるカイラリティ制御(絶対不斉合成)という野心的な提案を行っている。

以下、本論文の構成に従い、各章の概要について述べる。

第1章「序論」では、物質の構造と電子の電荷やスピンとの結合から生じる隠された自由度の多くが未だ解明されておらず、その系統的な解明が新しい物性開拓やカイラリティの微視的な理解に重要であることを指摘するとともに、その解明に向けた本論文の目的、戦略と構成について述べている。

第2章「理論的背景」では、物質中の電子状態の代表的モデリング手法であるタイトバインディング法について詳しく紹介し、その手法の利点と欠点について整理し、従来手法の課題を明確にしている。特に、世界中で標準的に用いられている密度汎関数理論に基づく電子状態計算か

らワニ関数を構築してモデリングする手法の問題点や、周期結晶の波動的な電子状態から原子に局在した電子軌道状態を抽出する際の問題点を議論している。従来の手法では対称性が厳密に考慮されていないこと、そのため、モデルを簡略化する際に重要な対称性が容易に失われてしまう点を指摘している。この欠点のために、本質を残したままモデルを簡略化することが難しく、結果として物質の特性を議論する際に高コストな電子状態計算が必須になっている。例えば、熱電特性の理解に不可欠な電子系と格子振動の相互作用の計算のボトルネックになっている例があげられている。

第3章「対称性適合多極子基底」では、第2章であげた問題点を解決する革新的手法として、対称性適合多極子基底の方法が詳しく述べられている。基底生成に際して、電子状態を記述するためのモデル空間を原子に局在した電子軌道と結晶構造の空間に分解し、それぞれについて対称性の既約表現で分類された基底を構築する方法が述べられている。また、各空間における基底の正規直交性と完全性が証明されている。以上の結果を踏まえ、それぞれの空間で完全基底を構築した後、両者を結合して既約分解することで、局在電子軌道と結晶構造からなるモデル空間の完全基底を構築する方法が説明されている。

第4章「DFTに基づく対称性適合タイトバインディング模型」では、第3章で構築した完全基底を用いてモデル空間をそれらの線形結合で表すことで、対称性を厳密に満足する電子モデルを構築する方法が述べられている。また、密度汎関数理論に基づく電子状態計算の結果と比較することで、各基底の重みを最適化する方法を議論している。単純な線形回帰最適化では、実用に耐える精度が全く得られない。そのため、隠れ層を加えた深層ニューラルネットワーク (DNN) モデルを導入し、機械学習的手法を援用することで重みを最適化する方法が導入されている。以上の準備のもと、本論文で開発された手法をグラフェン、バナジウム酸化物 SrVO_3 、単層遷移金属ダイカルコゲナイド MoS_2 などの典型物質に実際に適用し、手法の有用性や問題点を多角的に議論している。DNN において、対称性適合多極子基底をニューロンとして導入したことにより、単純なエネルギー最適化のみで局在電子軌道やスピン状態が正しくモデル化できていることが指摘されている。また、モデル化の問題点の分析と今後の改良法が検討されている。以上のように導入された革新的手法は、あらゆる周期結晶を網羅する 230 の空間群すべてについて適用でき、マテリアルインフォマティクスのような分野に大きな波及効果をもたらす可能性が述べられている。

このような従来の手法の欠点を克服した革新的手法を用いて、第5章「カイラリティの微視的記述」では、カイラル物質の特性を支配する原子スケールのカイラリティについて微視的視点からの考察が行われている。カイラル結晶の典型物質テルルに第4章の手法を適用して、対称性で分類されたモデリングを行い、原子スケールのカイラリティを担う電氣的な擬スカラー基底を抽出している。また、擬スカラー基底の重みを定量的に算出し、全体のうちの主成分となっていることも明らかにしている。同様に、この擬スカラーと結合する格子回転や電気分極の原子スケールでの自由度も同定している。以上の考察から、カイラル結晶では普遍的に、電場誘起の格子回転歪みやその逆過程といった極性量と軸性量を変換する応答現象が生じることを結論づけている。この応答現象は、カイラリティを支配する擬スカラー量と結合する自由度を明確に示しているため、逆にこれらの自由度を複合外場によって制御することで、右手・左手のカイラリティを制御する手段を提供する。本論文では、カイラリティ制御を実現するための複合外場がいくつか提案されている。結晶カイラリティを外場によって制御できれば、片方の手に揃えた物質が生成でき

るため産業界にも大きなインパクトがあり、基礎研究においてもカイラリティの特性評価が容易になるため、本論文の指摘は非常に重要である。

本論文全体を通じた結論と重要事項の整理が、第6章「まとめ」で行われている。

5 論文の特質

本論文の主テーマであるカイラリティは19世紀初頭からの長い研究の歴史をもつが、物質中の電子状態を微視的な立場から記述して定量的に議論した研究はこれまでになく、本論文は非常に独創的かつ先進的な研究と言える。カイラリティの秩序変数にあたる電氣的な擬スカラーを定量的に同定し、電場誘起の格子回転歪み応答やその逆応答を評価して、その微視的発現機構を解明したことは特筆すべき点である。このような応答が存在することは、複合外場を用いてカイラリティを制御できることを保証するので、カイラル結晶の絶対不斉合成を実現する上で重要な一歩である。

また、本論文で開発された対称性適合多極子基底による電子状態のモデリング手法は、現在世界中で標準的に用いられているワニエ関数を用いたモデリング手法と相補的な一大手法になる可能性を秘めている。特に、対称性を厳密に満たしていることや高精度でコンパクトなモデル化が可能な点は、少ない計算機資源で、密度汎関数電子状態計算に基づき様々な物理量を定量的に評価することに繋がるため、本論文の重要な特質と言える。

6 論文の評価

本論文は、カイラリティという物質科学における一大ミステリーに原子スケールの視点から答えようとするものであり、カイラリティを支配している電氣的な擬スカラーという微視的要素を明確に同定した点で高く評価される。この成果は、基礎科学においても機能材料応用においても重要なカイラル結晶の絶対不斉合成の実現に大きく寄与することになると期待される。また、本研究で開発された電子状態モデリングの新手法は、電子物性の定量的な解析手法に新たな潮流を生み出すものであり、今後のさらなる発展が楽しみな成果である。

以上のように本論文は、カイラリティの研究コミュニティや密度汎関数電子状態計算の業界に大きなインパクトを与える内容として高い評価を与えることができる。既に国内外から高い関心を得ており、活発な研究交流が始まっていることも付け加えておく。

7 論文の判定

本学位請求論文は、理工学研究科において必要な研究指導を受けたうえ提出されたものであり、本学学位規程の手続きに従い、審査委員全員による所定の審査及び最終試験に合格したので、博士（理学）の学位を授与するに値するものと判定する。

以 上

主査氏名（自署）
