

審査の結果の要旨

氏名 フブシ・マリーテレス

古代の方位磁石にはじまり、強磁性体は人類の生活の中で様々な役割を果たしてきた。一方、反強磁性体は、長くその応用が限られてきた。実際、反強磁性体を発見した Louis Néel は、そのノーベル賞受賞講演で「*extremely interesting from the theoretical standpoint but do not appear to have any practical applications.*」と述べている。この事情は近年、強磁性体なみに大きな異常ホール効果や異常ネルンスト効果、磁気光学カー効果を示す反強磁性体が発見され大きくかわろうとしている。特に磁気デバイスへの応用が期待される機能反強磁性体を理論的に予言したり探索したりすることは現代物性物理学における最もホットな課題となっている。

磁性体の物性を決定する最も重要な要素はその磁気構造である。従って機能反強磁性体の探索をする上では磁気構造の正確な予測が不可欠である。しかしながら一般に、与えられた結晶構造に対しそこで実現する磁気構造を計算で予言することは非常に難しい。これは、可能なスピン構造のパターンが無限に存在し、全ての構造の安定性を計算することが事実上不可能であるという事実にもとづく。したがって、実際の計算においては適切な指導原理のもとで調べる構造の数をできる限り絞らなければならない。その際、その指導原理が的外れであれば、最安定な実験磁気構造を見逃してしまうおそれがある。一方、現実の物質中で実現しやすい磁気構造を選択的に生成できれば、理論主導に基づく磁性体の探索が大きく加速すると期待される。このような問題意識のもと、本博士論文では、実験結果を参照せずに磁気構造を予測する方法論の開発と応用がなされた。

第1章では、Introduction として様々な磁気構造、特にノンコリニアな磁気構造がどのようなメカニズムで実現するか、どのような物性が期待できるか、についての議論がなされている。第2章は、磁気構造を非経験的に計算する方法としてスピン密度汎関数理論のレビューにあてられている。Hohenberg-Kohn の定理、Kohn-Sham の理論、局所スピン密度近似、一般化勾配近似、スピン密度汎関数理論の枠組みを越えた動的平均場近似の課題などが手際良くまとめられている。第3章では本博士論文の方法論開発の基礎となっているクラスター多極子理論が説明されている。原子のまわりの電子の波動関数を記述する上で s 軌道、p 軌道、d 軌道といった球面調和関数の線型結合が自然な基底となることはよく知られている。この事実と同じ発想で、磁気構造を多極子で展開することが考えられる。このアイデアに従うと強磁性状態はクラスター双極子が強的に秩序した状態、反強磁性状態は双極子成分の寄与がなく、より高次のクラスター多極子（例えば四極子や八極子）が強的に秩序した状態と理解することができる。

クラスター多極子を使うと磁気構造の群論的な解析も見通しよく行うことができる。3章ではこれらの事実が簡単な例を使ってわかりやすく示されている。

第4章は本博士論文の中心的な章である。まず、クラスター多極子を使って第一原理計算の初期磁気構造を生成することについての議論が行われている。実験磁気構造のデータベースとして知られる MAGNDATA に登録されている 130 種類の磁性体について、その磁気構造がごく少数のクラスター多極子の和でかけることを示した。このことはクラスター多極子によって生成される磁気構造が実験磁気構造を探索する上で物理的に妥当なものであることを意味する。次にクラスター多極子を用いて、(実験構造を参照せずに) 磁気構造の候補を自動生成し、スピン密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行なって安定構造の探索を行った。合計約 4500 の計算を行なった結果、実験的な磁気構造を 82% の精度で予測できることがわかった。また、電場や磁場に対する物質の応答を考える上で重要となる磁気空間群については 90% の物質で実験磁気構造と同じ対称性が得られている。近年提案された遺伝アルゴリズムを用いた手法 (MagGene) と比較すると、MagGene が 1 つの物質の安定磁気構造を予測するのに約 900 回の第一原理計算を必要としたのに対し、本手法では平均 20 回程度の計算で安定磁気構造が得られている。ノンコリニア磁性体に対するスピン密度汎関数理論の系統的な計算はこれまでなされておらず、本博士論文で得られた結果は局所スピン密度近似(LSDA)や局所電子相関を考慮した LSDA+U の方法がどの磁性元素でどの程度実験を再現するかについて重要な知見を与えるものとしても高く評価される。以上の成果は東北大学鈴木通人、東京大学野本拓也、有田亮太郎の三名との共同研究であるが、ハイスループット計算に必要なコード開発、計算の実行とその解析すべてが論文提出者によってなされた。

よって本論文は博士 (科学) の学位請求論文として合格と認められる。

以上 2060 字