

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名：複合手法を用いた電子構造計算技術の開発

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

藤原 毅夫 (東京大学大学総合教育研究センター 教授)

主たる共同研究者

Ferdi Aryasetiawan (千葉大学大学院融合科学研究科 教授)

3. 研究実施概要

遷移金属酸化物や有機化合物などの新しい強相関物質群が新たなデバイスのための材料として期待されている。しかし強相関系の理解は多くはモデルに基づいたもので現実的物質系としての吟味が十分でなく、第一原理電子構造理論と多電子理論の融合により励起状態の定量的な理解を行い、第一原理計算による物質設計が必要となっている。

また近年の電子デバイスでは 10~100nm スケールでの製造プロセスが重要であり、またそのスケールでの設計指針が必須である。しかし現在、第一原理分子動力学法により実際に取り扱うことができるのは数 100 原子程度が限界であり、理論的に取り扱われる系は現実のデバイス加工プロセスで問題にするスケールに比べて、空間的にも時間的にもはるかに小さい。

そこで必要な計算資源が取り扱う系の大きさに比例して増大する計算手法(オーダーN 法)の開発が期待されている。

本研究課題では、「強い電子間相互作用のある系に対する第一原理電子構造計算手法の開発」および、「大規模系に対する(第一原理)量子力学に立脚した分子動力学手法の開発」を目的とした。これらは相互に大規模行列の数理的取扱いが重要であるという点で共通していると考え、同じグループとして立案した。研究の過程で、大規模系に対して開発した大規模線形方程式解法(Shifted COCG 法)を強相関多体電子系のスペクトルを求めることに応用し、「軌道縮退のある一般化ハバードモデル」という新しい系を取り扱うことに成功した。

「強い電子間相互作用のある系に対する第一原理電子構造計算手法の開発」では、新しく LSDA+U 法から出発する GW 法(U+GWA)を開発し、また LSDA+DMFT, LSDA+Cluster DMFT, Hedin 方程式の一般化、GWA+DMFT など新しい計算手法を多く開発した。GW 近似を拡張し、自己エネルギーの非対角成分を取り入れることも試みているが、計算時間、メモリの観点から、一般的に適用できる段階ではない。また第一原理電子構造計算から Down-Folding により、遮蔽されたクーロン相互作用を解析する新たな手法を開発した。また遮蔽されたクーロン積分が、遷移金属では大きくエネルギー(遮蔽に寄与する電子の励起エネルギー)に依存することを一般的に示すことができた。これらのことは通常議論される静的極限の遮蔽されたクーロン相互作用という量を知るだけでは十分でないことを意味している。第一原理電子構造計算の結果から、Most localized Wannier States を構成し、それらの軌道に対してハミルトニアンをマップする手法も開発した。これらの方法を総合的に駆使することにより、これまでではできなかった強い電子間相互作用を持つ系の研究に対して多くの新しい計算手法を加えることができた。

具体的な対象系としては Fe, Ni などの3d遷移金属、エントロピー起動による Ce の α - γ 転移、 V_2O_3 , V_2O , NiO, MnO, などの遷移金属酸化物、ペロブスカイト構造遷移金属酸化物 $LaMO_3$ (M=Ti~Cu) など多岐に及ぶ。求められる物理量は、励起スペクトル、準粒子バンド、自己エネルギー、グリーン関数、誘電関数、遮蔽されたクーロン相互作用などである。

「大規模系に対する(第一原理)量子力学に立脚した分子動力学手法の開発」では、東大グループではタイトバインディングハミルトニアンに基づく量子 MD 計算法を中心に、新しい数値手法、数値アルゴリズムの重要性に注目し、種々のクリロフ部分空間法(クリロフ部分空間対角化法、Shifted COCG 法、Seed-Switching 法など)を開発した。また現在、進行中ではあるが、これらのクリロフ部分空間法はより一般的な一般化固有値問題の形式(重なり積分のある系)に対しても拡張が行われプログラムに組み込んだ。これらは凝縮系、周期系はもとより、液体系にも適用可能である。使用するハミルトニアンは、第一原理計算から求められるもの(ワニエ軌道、NRL ハミルトニアン等)のほか、Atomic Superposition Electron Delocalization 法を基礎としたものもすでにできており、今後、水溶液系などを対象にすることを念頭に置いている。

一方、北陸先端大グループでは、第一原理 LDA ハミルトニアンに対し、分割統治法を基本に、クリロフ部分空間の特徴をとらえ、安定性と数値収束性に優れた手法を開発した。また基底関数の選択に対して最適手法を種々検討し、凝縮系ばかりでなく、クラスター、有機化合物、生体高分子などを対象にすることができる。これらの手法は、スピナー軌道相互作用、ノンコリニアスピンを取り扱う制約条件付密度汎関数法を開発して、マルチフェロイクスの問題を取り扱うことができるよう拡張されている。またこれらのプログラムは OPEN MX として公開されている。

東大グループおよび北陸先端大グループの二つの手法は互いに相補的であるが、現在の段階では具体的にそれぞれの精度や収束性、あるいはより緊密な接合は、残念ながら実行するには至っていない。具体的な対象系としては、半導体の亀裂伝搬と表面再構成、金 Multishell Helical Nanowire、単一分子磁性体 Mn_4 、 Mn_{12} 、分子磁性体 $V_n(C_6H_6)_{n+1}$ 、新規シリコンナノワイヤーの電子構造など多岐にわたる。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

強電子相関係に対する新しい計算方法を確立し、多電子描像との融合を計りつつ大規模電子構造を取り扱えるようになり多くの物質の電子構造を明らかにしたことを評価する。

手法開発において以下に示すいくつかの斬新で重要な成果があった。新しい大規模電子状態計算の手法として、shifted COCG 法と seed-switching 技術の開発を行った。この結果、巨大連立方程式の計算を高速に行うことができるようになった。また Hedin 方程式の一般化を行ったことや第一原理計算と多電子問題モデルの結合など計算手法を数多く開発した。特にこれら数理科学的な方法論については今後の応用数学、工学一般の立場から見ても有用な成果であり、当該分野に限らない広い波及効果が期待できる。

また研究開始当初は第一原理電子構造理論における成果を目指していたが、マルチフェロイクスや分子磁性や大規模量子力学シミュレーションとしての産業分野など、当初考えていなかった研究分野にも成果を出している。

学術論文が60篇以上、国際会議での招待講演50件以上、国内会議での招待講演が約20件、その他の口頭発表が国内、国際を合わせて50件以上に上り非常に多くのレベルの高い発表を行っている。また研究チーム主催の国際ワークショップを開催している。

そして企業を巻き込んだ ELSEES 研究会を立ち上げ、プログラムパッケージの作成、公開、著作権に関して新しい仕組みを作って運営している。今後この仕組みは、計算科学の分野において産学連携の新しい取り組み方として注目すべきものである。

また一部の大規模系計算手法は Open MX に実装、公開されており、Open MX による応用研究の推進やワークショップを開催し、開発者やユーザーグループのコミュニティの形成にも力を入れていることを高く評価する。

研究の進め方については全体のチームの独自性を強く拘束することなく、相互の情報の交換をよく行っている。研究チーム内の共同研究をもっと強くして開発を行うという手法もあったと思うが、数多くの解析手法の開発、そしてその結果多くの成果が出ており適正であったと考える。

また研究設備に多くの予算を使わず人件費に経費を投入した予算の使い方も適正であった。その結果が成果につながり人材育成にも寄与している。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

本プロジェクトの研究成果の科学技術や社会へのインパクトは特に国際会議への招待数が多いことから判断できる。

強相関系に対するシミュレーション手法では各種の GW 近似手法や第一原理手法によるクーロン相互作用計算など新たな計算手法の開発を行っている。これらの手法により遷移金属酸化物や有機化合物などの新しい強相関物質群におけるわずかなパラメータの変化による大きな物性の変化を捉えることができるようになり、磁気光学素子、スイッチング素子などの電子相関や波動関数の位相などの量子制御が可能になる。

大規模系の MD シミュレーションおよび数値手法ではクリロフ部分空間法や Shifted COCG+Seed Switching 法などの新規手法により大規模計算が可能となった。並列計算を併用して 1000 万 Si 原子系の計算の可能性や Si 結晶の亀裂伝播表面形成などの現象を世界で初めてシミュレーションで示したことは高く評価できる。これらは亀裂伝播や変形、自己組織化などの半導体材料のプロセス設計に必要な物質のナノスケール加工プロセスでの問題解決に有効な手法となるであろう。以上、大規模電子状態計算における革新的なアルゴリズムが開発されたこと、第一原理計算と多体問題モデルの橋渡しの方法が提案されたことにより今後の更なる進展が期待される。

また大規模計算を行う場合、大型計算システムや並列計算で行う手法が脚光を浴びているがそれと並行して、新しいアルゴリズムを導入して研究室レベルの計算機設備で大規模計算を行う用途も重要である。本プロジェクトの計算手法はそのような面からも非常に有益な研究成果であり大いに期待できる。

なお、本プロジェクトの研究に関しては決して研究が完成したという評価ではない。これらの研究のスピードを落とさずに次の研究基盤に繋げていてもらいたい。

また本研究成果は当研究領域の戦略目標にある、原子・分子レベルの現象に基づく精密製品設計のための次世代統合シミュレーション技術の確立に大きく貢献することが期待される。

4-3. 総合的評価

第一原理計算と多体問題モデルの橋渡しの方法が提案されたこと、そして大規模電子状態計算における革新的なアルゴリズムが開発されたことはともに学術的評価、将来への方向性の提示、産業との連携のそれぞれの面で当初の目標をはるかに超えた成果を出しており高く評価する。

また重要な成果のいくつかは手法に関するものであるから、それらが今後どのように広く活用され、どのような具体的な応用へ展開されるか期待されるところである。