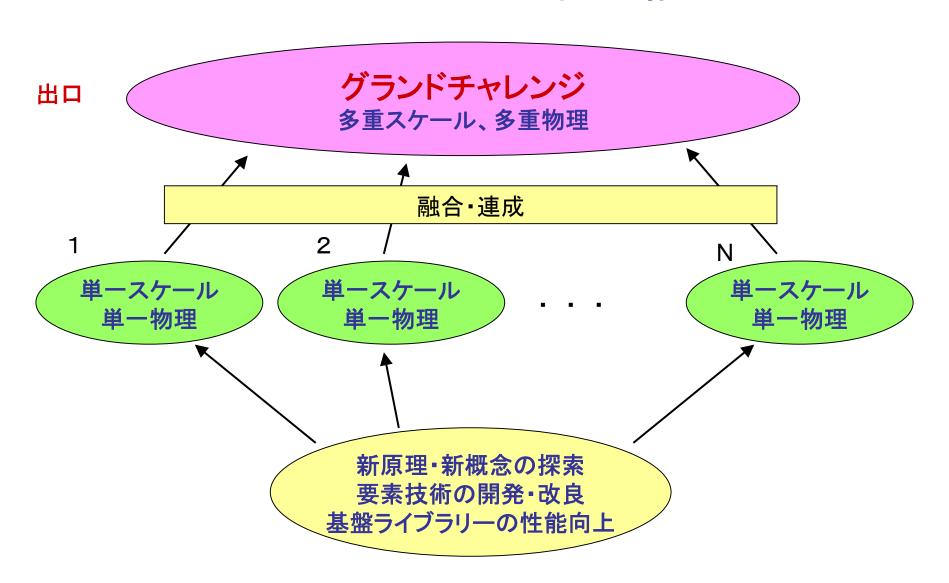
次世代スーパーコンピュータに向けての計算科学の課題

寺倉清之 北大 創成科学共同研究機構 産総研 研究コーディネータ

2005年度理研シンポジウム 2006/03/24

プロジェクトの階層的構成



最近の身の回りの研究活動から

遷移金属酸化物における 磁性・軌道・格子歪

> (Fang, Solovyev, 永長、十倉ら) 軌道の自由度、スピンの自由度 multiferroic トポロジカルカレント 強相関電子 新原理開拓

有機固体 (石橋、石井ら)

単一成分金属 有機強誘電体:水素結合 強相関電子・強電子格子結合 van der Waals 構造的複雑さ Si(001)面上のGeの量子 ドット (橋本、森川、藤川、桜井ら)

> 理論的構造決定: 位相空間探索 大規模計算

• 溶液中での化学反応

超臨界水での ε カプロラクタム (ナイロンの原料) の生成

(Boero, Parrinello, 池庄司ら)

RNAの自己切断機能

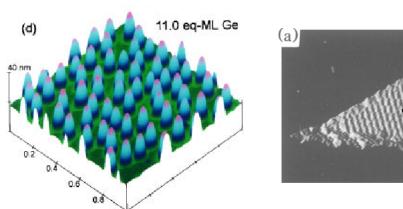
(Boero, 舘野、押山ら)

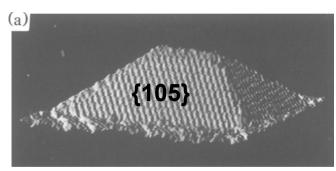
反応経路探索(位相空間探索) 空間軸、時間軸の拡大 プロトンの量子効果

Si(001)面上のGeの量子ドット

Ge/Si系:

ナノテクでの役者である 半導体量子ドット





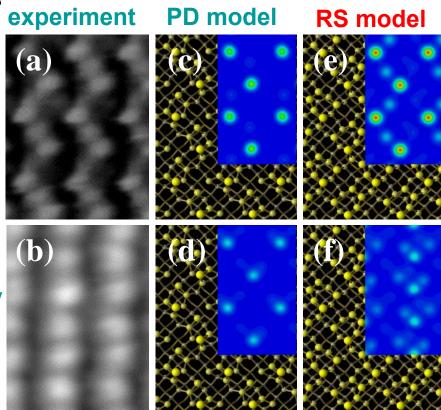
Geの量子ドットの側面は{105}

歪のない{105}面は不安定

10年以上も信じられてきた PD model は正しくない。4%短い 格子によって特異的に安定化 された構造モデル RS model を 理論的に見出した。

量子ドットの安定性解析には 大規模計算と位相空間探索 filled state

empty state



超臨界水による無触媒化学反応 シクロヘキサノンオキシム → ε カプロラクタム

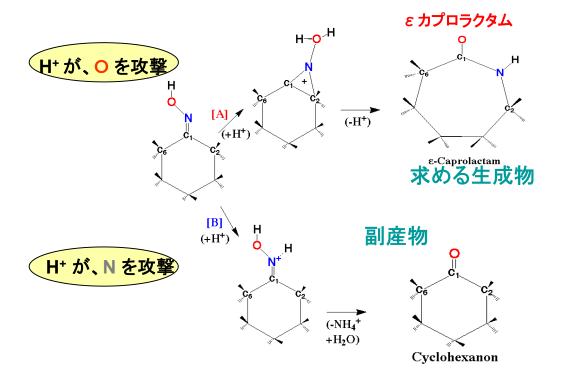
ε カプロラクタム 開環重合→ナイロン6

多くの工業的プロセスは、硫酸などの強酸を触媒に用いる。

問題点:環境に優しくない。不要な硫安の大量生成。

超臨界水では、副産物なしに ε カプロラクタムが生成。

実験:生島豊ら(産総研)



T = 673 K, ρ = 0.66g/cm³

H+

wet

反応速度:H+の拡散が重要

反応の選択性:超臨界水においては H+はOを攻撃するがNを攻撃しない。

第一原理MDにおける要素技術向上: 限界を広げる

サイズ

オーダーN法 計算負荷がシステム サイズに比例 ハイブリッド 本質的な部分だけを 量子力学的に 超並列計算

時間

位相空間探索 拡張アンサンブル Blue moon metadynamics

精度

電子相関 電子相関電子 選移金属酸化物 van der Waals 有機分子間 有機分子と金属 電子励起 光学応答 反応制御

粗視化 マルチスケール

軽い核の量子効果

オーダーN法

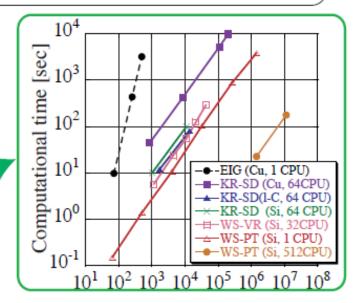
計算量が扱う系のサイズに比例するような計算手法(従来は、系のサイズの3乗に比例)

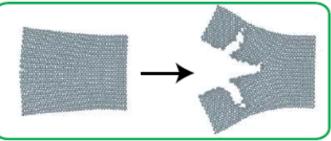
```
CONQUEST (UK London, 物・材機構)
SIESTA (Spain)
ONETEP (UK Cavendish)
FMO (産総研) ← 北浦先生
OpenMX (産総研)
星氏(東大工学部)
など
```

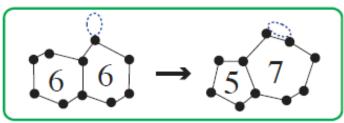
第一原理計算としては10万原子くらいが扱えれば十分: (10 nm)³ → 30³ ≈ 3万原子, (100nm)² → (300)² ≈ 9万原子

10-nm-scale molecular dynamics simulation by linear-scaling electronic-structure calculation

- T. Hoshi and T. Fujiwara,
 - ¹Department of Applied Physics, University of Tokyo,
 - ²CREST-JST
- 1, Methods and test calculations benchmark (upto 10⁷ atoms) (Cu(bulk), C(liquid), Si(bulk)
- 2, Application : Si cleavage process
 - (a) agreement to experiments
 - (b) **bending** of cleavage path
 - (c) surface reconstruction
 - (d) step formation and bias-dependent STM image







尾崎泰助(産総研)

局在軌道基底の第一原理計算 金属にも有効 Order-N methods in OpenMX

Divide-conquer (DC) method

W. Yang, PRL 66, 1438 (1991)

Recursion method

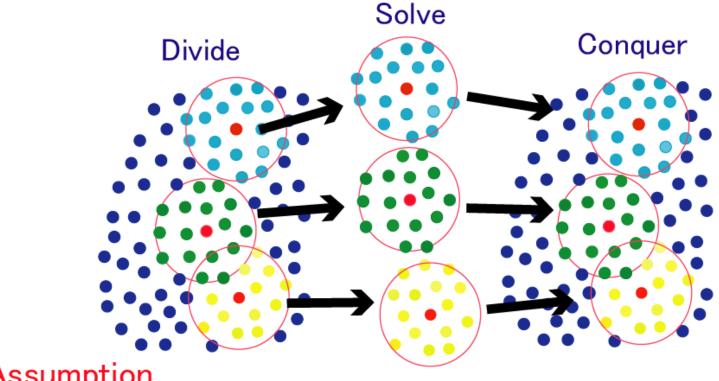
PRB 64, 195126 (2001)

A unified method

Krylov subspace を固定

cond-mat/0509291

Basic idea behind three O(N) methods



Assumption

TDOS can be approximated by the sum of LDOS of the central atom in each cluster.

$$TDOS(E) \simeq \sum_{i} LDOS_{i}(E)$$

A unified approach - DC and recursion -

The DC method

```
the robustness originates in
```

```
fixing the spanned space (no flucuation) direct diagonalization (no source of round-off error)
```

The recursion method

the rapid convergence originates in

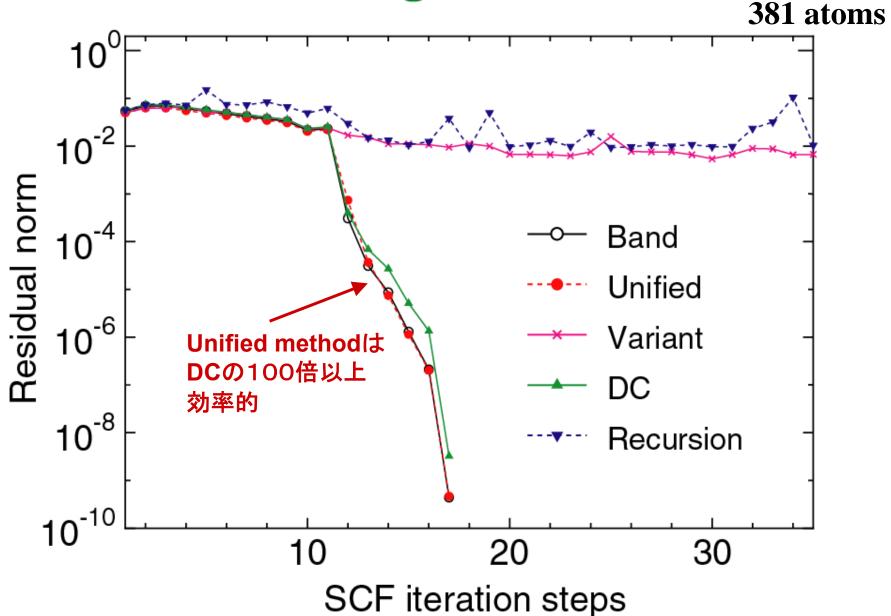
a Krylov subspace generated by the Lanczos algorithm

the instability originates in

a flucuation of the spanned space

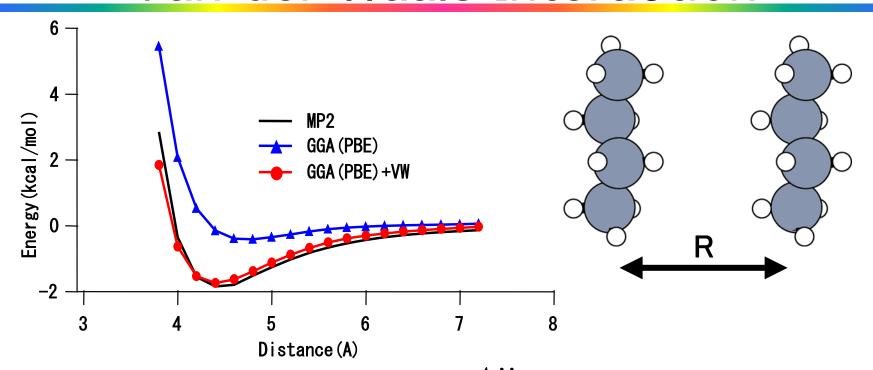
最初のKrylov subspace に固定することにより cond-mat/0509291 収束性が向上

SCF convergence for fcc Al



森川(阪大産研)

Van der Waals Interaction



$$E(GGA + VW) = E(GGA) - \sum_{ij} \frac{Aij}{r_{ij}^{6}}$$

$$A_{CC} = 868.0[\text{kcal A}^6/\text{mol}]$$

 $A_{CH} = A_{HH} = 0.0$

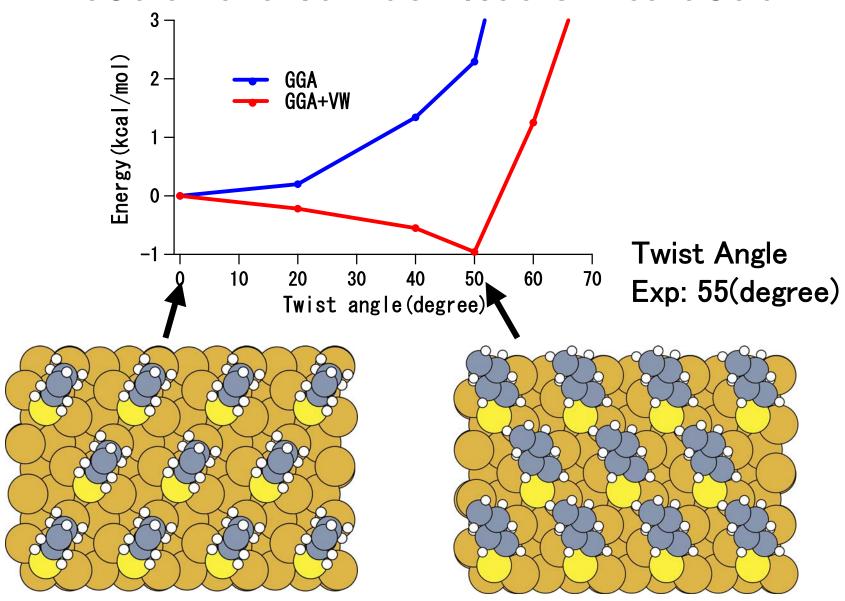
$$A_{\mathrm{CH}} = A_{\mathrm{HH}} = 0.0$$

Fit to n-butane n-pentane n-hexane

Total 287 Configurations

森川(阪大産研)

Effect of the van der Waals interaction

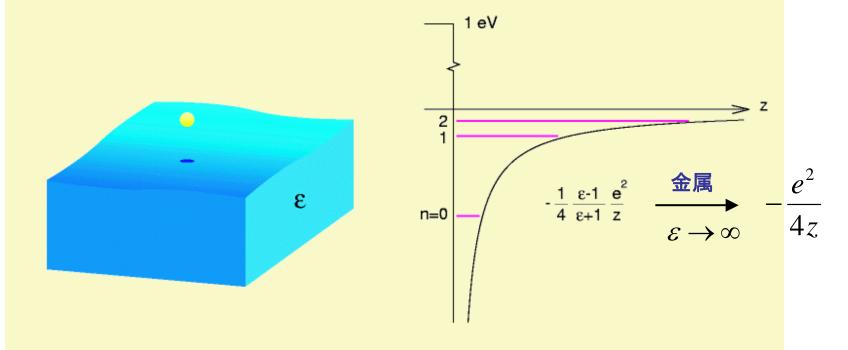


金属表面

鏡像ポテンシャル

河野公俊氏による

He の表面の電子



LDA、GGAでは鏡像ポテンシャルが記述できない。

強相関電子系の第一原理計算

- 強相関の理論は伝統的に日本が強い分野
- 従来はモデル(Hubbard model, Anderson model など)を用いた理論が主流
- 最近、強相関物質の第一原理計算手法の開発が 盛ん

経路積分繰込み群法:今田(東大工)

trans-correlated method:常行(東大理)

DMFT+GW: Aryasetiawan(産総研)

電子ガスの理論の拡張:高田(東大物性研)

量子モンテカルロ:前園(物・材機構)

電子状態計算の要素技術

大規模計算は種々の手法が開発され、実用に耐えるようになってきた。

• 今後の重要課題としては

強相関電子系

弱い相互作用(van der Waals)

基板まで含めて扱うには、現在の量子化学的 手法だけでは不十分

電子励起:特に励起状態でのダイナミックス種々の物理量の計算(実験との比較)

軽原子の量子効果

- 熱平衡経路積分分子動力学
- 多体系での動力学経路積分セントロイド分子動力学

量子効果の例

SrTiO₃ は常誘電体。これは酸素の量子効果による。さもないと、強誘電体になる。

Hの量子効果?

生物はHをDで置換しては生きられない。

衣川健一 会良女子大 量子多分子系のシミュレーション上の問題

低温の軽い分子は量子分子 =ド・ブロイ熱的波長が"長い"=波動性・量子性 $\lambda = h(2\pi/mk_BT)^{1/2} \approx$ 分子間距離



古典的イメージでの分子="粒子"

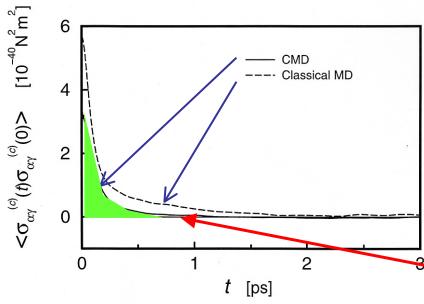
実際の量子分子=空間的に"雲" のように広がっている

量子分子の動的挙動は古典力学(ニュートン方程式)からは 逸脱している!

=従来の分子動力学(MD)シミュレーションは使えない。

量子ダイナミクスの計算手法が必要

応用例: 液体水素の巨視的輸送係数の計算



応力テンソルの非対角成分の時間相関関数

Y. Yonetani and K. Kinugawa, *J. Chem. Phys.* 119, 9651 (2003).

液体パラ水素の輸送係数を CMDとGreen-Kubo公式に 基づいて評価。

$$K \sim \int_0^\infty \left[\frac{1}{\beta\hbar} \int_0^{\beta\hbar} \left\langle \hat{J}(-i\tau)\hat{J}(t) \right\rangle_{qsm} d\tau \right] dt,$$

自己拡散係数

$$D = \frac{1}{3N} \int_0^\infty \left\langle \dot{\mathbf{R}}^{(c)}(t) \cdot \dot{\mathbf{R}}^{(c)}(0) \right\rangle dt,$$

熱伝導率

$$\lambda = \frac{1}{V k_B T^2} \int_0^\infty \left\langle J_\alpha^{(c)}(t) J_\alpha^{(c)}(0) \right\rangle dt,$$

ずり粘性係数

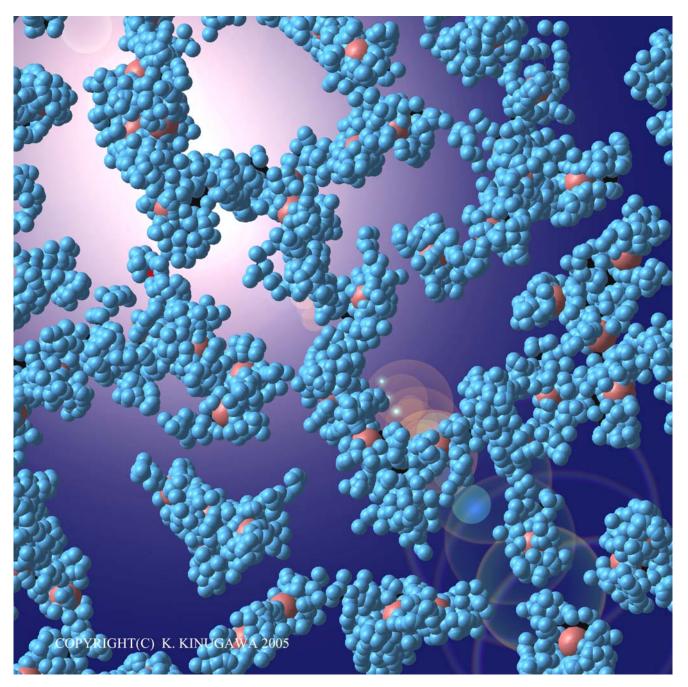
$$\eta_S = \frac{1}{V k_B T} \int_0^\infty \left\langle \sigma_{\alpha \gamma}^{(c)}(t) \sigma_{\alpha \gamma}^{(c)}(0) \right\rangle dt,$$

体積粘性係数

$$\eta_B = \frac{1}{V k_B T} \int_0^\infty \left\langle \delta \sigma_{\alpha \alpha}^{(c)}(t) \delta \sigma_{\alpha \alpha}^{(c)}(0) \right\rangle dt - \frac{4}{3} \eta_S$$

計算された液体パラ水素の輸送係数

	温度 <i>T</i> [K]	自己拡散係数 <i>D</i> [10 ⁻⁹ m²s ⁻¹]	<mark>熱伝導率 λ</mark> [Wm ⁻¹ K ⁻¹]	ずり粘性係数 η [10 ⁻⁵ Nsm ⁻²]	体積粘性係数 ζ [10 ⁻⁵ Nsm ⁻²]
CMD	16.9	4.70	0.22	1.95	10 (予言)
古典MD	17.1	1.67(!)	0.37	6.1(!)	1.8
実験値	17	6.15	0.12	1.78	なし



古典的粒子とする場合の10倍から100倍の計算量

新原理開拓

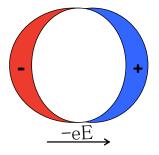
スピントロニクス、センサー ベリー位相エンジニアリング(永長) トポロジカル電流 交差相関(十倉) multiferroics magnetoelectric effect

ベリー位相エンジニアリング

永長

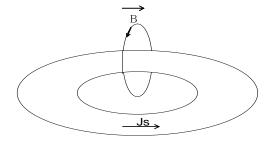
固体中の3種類の電子流

1. オーミック流



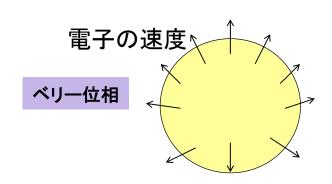
非平衡状態 散逸および熱の発生

2. 超伝導電流 / 反磁性電流



巨視的量子コヒーレンス 熱平衡状態、 <mark>散逸なし</mark> 磁場に応答 低温

3.トポロジカル電子流



熱平衡状態 散逸なし 運動量空間の"曲率" バンドギャップにより守られる 室温

重要

固体におけるベリー位相

• 最初の応用は誘電体における電気分極の理論 電気分極のような、古典的に扱えるような物理量 が、電子密度分布からは得られないで、波動関数 の位相が絡む、本質的に量子力学的なものである ことが指摘された。

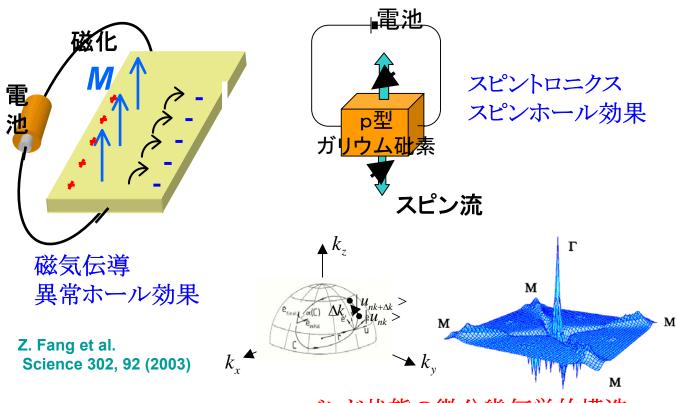
R. D. King-Smith and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B 47, R1651 (1993)

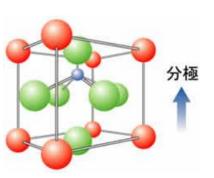
R. Resta, Rev. Mod. Phys. 66, 899 (1994)

寺倉清之, 固体物理 35, 620 (2000)

S. Murakami, N. Nagaosa and S.-C. Zhang Science 301, 1348 (2003)

ベリー位相エンジニアリング 永長





強誘電性 FRAM

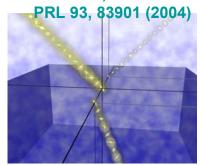
バンド状態の微分幾何学的構造

H. Katsura, N. Nagaosa and A. V. Balatsky PRL 95, 57205 (2005)

電気磁気効果 」マルチフェロイック (交差相関)



M. Onoda, S. Murakami and N. Nagaosa

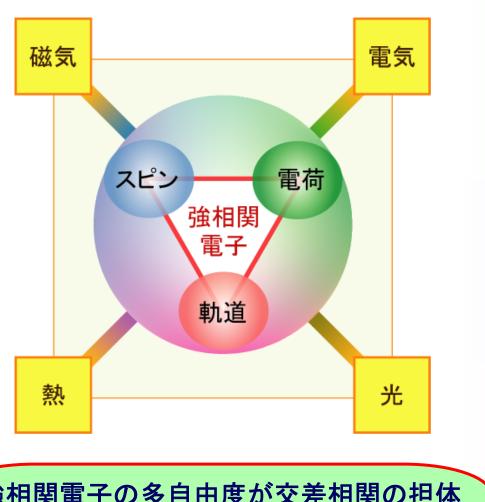


フォトニック結晶 光のホール 効果

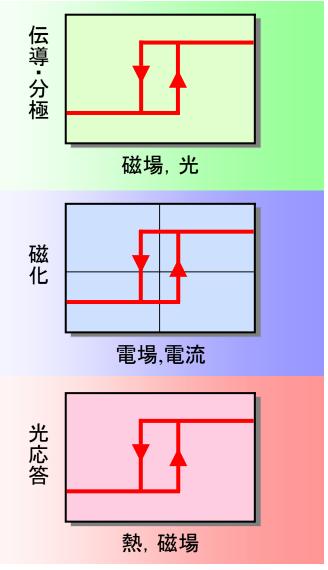
十倉

電気一磁気一光一熱の各物性・機能を相互に結びつける 物質相を開拓し、革新的・統合的な電子技術を創出する。

交差相関の例

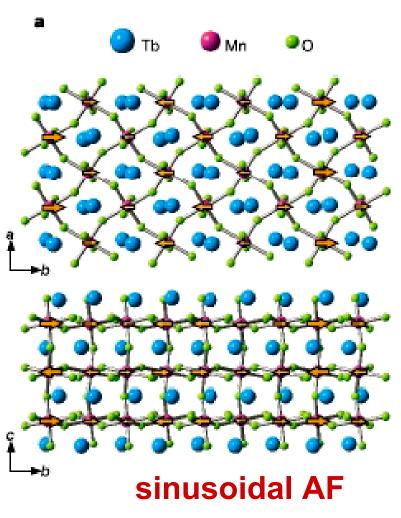


強相関電子の多自由度が交差相関の担体

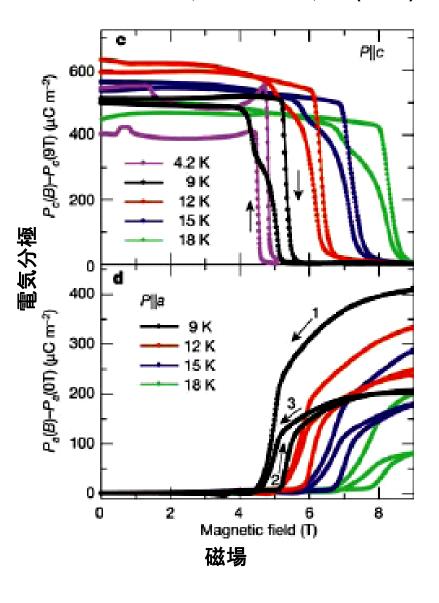


Magnetoelectric effect: TbMnO₃

T. Kimura et al., Nature 426, 55 (2003)



長周期構造→ 大規模計算



新原理からデバイスへ

- 新しい物理現象は、今のところ主としてバルクの物質について調べられている。
- 薄膜化はデバイス化に必須であり、研究が進行中。 膜とバルクが違う可能性(例:BiFeO3)

膜厚依存性、表面、界面の研究が重要。 不整合磁気秩序によるME効果の増大。



応用問題

• 伝導現象

分子素子: 電極との接触

TMR, GMR, CMR

絶縁膜のもれ電流

• 微粒子

構造とエネルギー準位 光学的性質、反応性

• 材料のミクロ内部構造

ミクロ構造の安定性

構造形成過程

材料特性(伝導性、磁性、誘電性、機械的性質)

伝導現象

• 分子素子

非弾性散乱(フォノン、マグノン)

試料の長さと平均自由行程 発熱

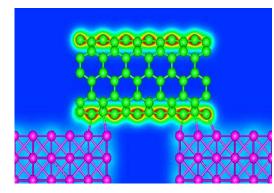
電流による構造変化

電極との接合

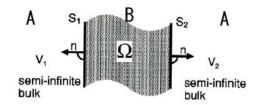
• TMR, GMR, CMR

欠陥や界面の原子配列、界面磁性、 非弾性散乱

・ 絶縁層のもれ電流 欠陥の構造、界面の乱れ



小林伸彦



$$\Gamma_L = \frac{2}{\pi} Tr\{G_{12} \cdot \operatorname{Im} V_{\Sigma_2} \cdot G_{21}^* \cdot \operatorname{Im} V_{\Sigma_1}\}$$

応用問題:multi physics

- 材料のバーチャルラボ
- 燃料電池
- 細胞
- 創薬

燃料電池、ナノバイオ、細胞での共通問題

水

制限された空間、強い電場下での水

生体分子を用いた分子素子でも、水は必ず存在する。

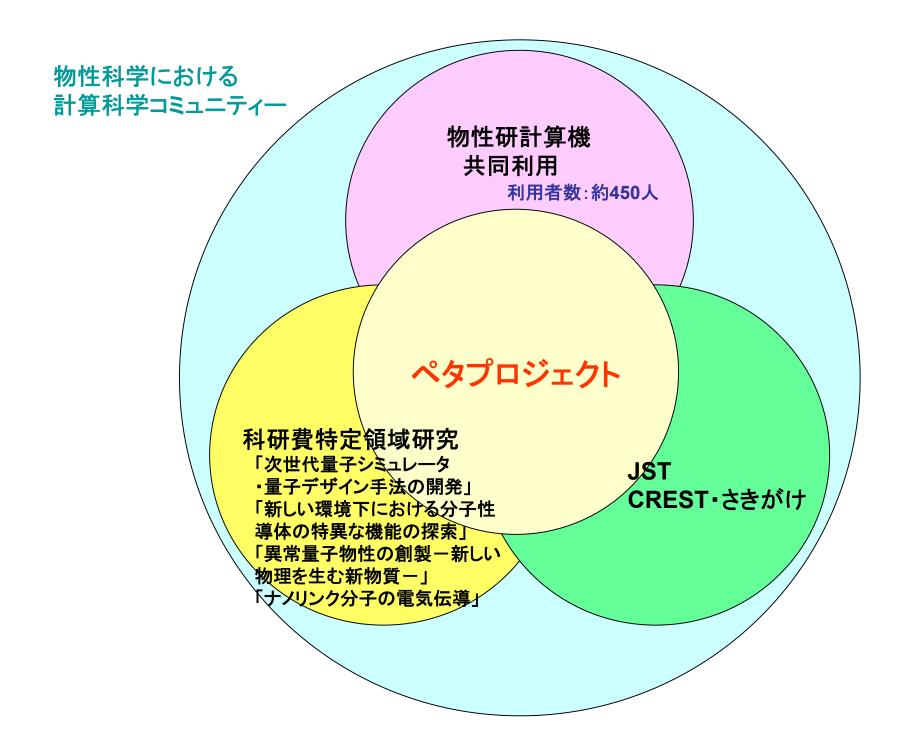
グランドチャレンジ:マルチフィジックス、 マルチスケール

> 高度な要素技術 要素技術の接続

新原理、新現象次のグランドチャレンジの芽 成長を促進させることが重要

オープンなコミュニティーの形成

- グランドチャレンジを継続的に遂行するには、それを支える基盤的研究成果を継続的に注ぎ込まなければならない。
- このためには、オープンなコミュニティーとプロジェクトの連携が保障されていることが必要。
- オープンでありかつ組織的なコミュニティーの形成。



例:イギリスでの組織

Collaborative Computational Projects : http://www.ccp.ac.uk/

The Collaborative Computational Projects (CCPs), assist universities in developing, maintaining and distributing computer programs and promoting the best computational methods. They are funded by the UK's EPSRC, PPARC and BBSRC Research Councils. Each focuses on a specific area of research.

- CCP1 The electronic structure of molecules
- CCP2 Continuum states of atoms and molecules
- <u>CCP3</u> Simulation of physical and electronic properties of surfaces and interfaces
- **CCP4** Protein crystallography
- <u>CCP5</u> Computer simulation of condensed phases
- CCP6 Molecular quantum dynamics
- CCP9 Computational studies of the electronic structure of solids
- CCP11 Biosequence and structure analysis
- CCP12 High Performance Computing in Engineering
- CCP13 Fibre and polymer diffraction
- CCP14 Powder and small molecule single crystal diffraction
- **CCPN** A collaborative computing project for the NMR community