

# 物性研スパコン共同利用・CMSI合同研究会 「計算物質科学の課題と展望」

開催日程：2013年12月10日（火）～ 13日（金）

開催場所：東京大学柏キャンパス 物性研究所 大講義室



物性研スパコン共同利用・CMSI 合同研究会  
(第4回 CMSI 研究会)

# 「計算物質科学の課題と展望」

開催日程：2013年12月10日(火)～13日(金)

開催場所：東京大学柏キャンパス 物性研究所 大講義室

## 無線 LAN のご案内

研究会の開催期間中は、会場で無線 LAN が使用できます。

SSID : keisan13

セキュリティーキー : 2013Dec10

# Program

## 12月10日(火)

(†は若手奨励賞対象者)

### 《物性研スパコン共同利用 特別講演》

13:05 - 13:45 中島 研吾 (東京大学)

「ポストペタスケール・エクサスケールシステムへ向けての東京大学情報基盤センターの取組」

### 《物性研スパコン共同利用》

13:45 - 14:25 利用者アンケートの紹介・ディスカッション

《コーヒーブレイク 14:25 - 14:45》

14:45 - 15:10 星 健夫 (鳥取大学)

「数学・計算物質科学・HPC 分野の融合としての超大規模電子状態計算」

15:10 - 15:35 濱田 幾太郎 (物質・材料研究機構)

「固体と表面のためのファン・デル・ワールス密度汎関数」

15:35 - 16:00 山内 邦彦<sup>†</sup> (大阪大学)

「第一原理計算を用いたマルチフェロイック物質の材料設計」

《コーヒーブレイク 16:00 - 16:20》

16:20 - 16:45 荒木 武昭 (京都大学)

「多孔質に閉じ込めたネマチック液晶が示す非線形・非平衡挙動」

16:45 - 17:10 村島 隆浩<sup>†</sup> (東北大学)

「高分子流体の階層連携シミュレーション」

17:10 - 17:35 大槻 東巳 (上智大学)

「3次元トポロジカル絶縁体の半金属-金属転移における状態密度スケーリング」

---

## 12月11日(水)

### 《物性研スパコン共同利用 特別講演》

10:00 - 10:40 廣井 善二 (東京大学)

「フラストレーション格子化合物の物理と化学」

### 《物性研スパコン共同利用》

10:40 - 11:05 富田 裕介 (芝浦工業大学)

「誘電体のモデル計算」

《コーヒーブレイク 11:05 - 11:25》

11:25 - 11:50 **阪野 壘**<sup>†</sup> (東京大学)  
「近藤状態にある量子ドット系での非平衡電流の揺らぎ」

11:50 - 12:15 **森田 悟史**<sup>†</sup> (東京大学)  
「多変数変分モンテカルロ法によるスピン液体の研究」

《昼食 12:15 - 13:00》

《CMSI 研究課題発表 (第 1 部会)》

13:00 - 13:05 **第 1 部会 (分子課題) レビュー** [天能精一郎]

13:05 - 13:25 **大西 裕也**<sup>†</sup> (神戸大学)  
「超並列 MP2-F12 法による大規模分子の相互作用エネルギーの高精度計算」

13:25 - 13:45 **大塚 勇起** (神戸大学)  
「モデル空間量子モンテカルロ法の並列実装といくつかの応用例」

13:45 - 14:05 **笹井 理生** (名古屋大学)  
「アクトミオシンモーターの動作機構」

14:05 - 14:25 **河野 裕彦** (東北大学)  
「自在回転部位を有するナノ複合分子の機能評価から制御へ」

《コーヒーブレイク 14:25 - 14:40》

14:40 - 14:45 **第 1 部会 (物性課題) レビュー** [今田正俊]

14:45 - 15:05 **遠山 貴己** (京都大学)  
「二次元 DMRG の開発と強相関係への応用」

15:05 - 15:25 **原田 健自** (京都大学)  
「SU(N)ハイゼンベルクモデルで脱閉じ込め転移はあるのか？」

15:25 - 15:45 **三澤 貴宏**<sup>†</sup> (東京大学)  
「多変数変分モンテカルロ法を用いたハバード模型における高温超伝導機構の解析」

15:45 - 16:05 **山地 洋平**<sup>†</sup> (東京大学)  
「新奇量子相の実現・観測へむけた電子状態に基づく理論的予測  
—スピン軌道相互作用と電子相関が生み出すトポロジカル量子相」

《ポスターセッション》

16:05 - 18:20 場所：物性研究所 6 階ラウンジ

《懇親会》

18:30 - 20:00 場所：柏キャンパス カフェテリア

## 12月12日(木)

### 《CMSI 研究課題発表(第2部会)》

- 9:00 - 9:05 **第2部会レビュー** [押山淳]  
9:05 - 9:25 **岩田 潤一**<sup>†</sup> (東京大学)  
「実空間密度汎関数法コード RSDFT の機能拡張」
- 9:25 - 9:45 **小野 倫也**<sup>†</sup> (大阪大学)  
「RSPACE を用いた電子構造・輸送特性シミュレーション」
- 9:45 - 10:05 **宮崎 剛** (物質・材料研究機構)  
「オーダー $N$ 法 DFT プログラムの開発と半導体ナノ構造物質に対する応用」
- 10:05 - 10:25 **土田 英二** (産業技術総合研究所)  
「ベリ一位相を用いた電気伝導率の計算」

### 《コーヒーブレイク 10:25 - 10:40》

- 10:40 - 11:00 **吉本 芳英** (鳥取大学)  
「第一原理電子状態計算ソフトウェア xTAPP の開発と一般公開」
- 11:00 - 11:20 **尾形 修司** (名古屋工業大学)  
「ナノ構造の電子状態から機械的性質までのマルチスケールシミュレーション」
- 11:20 - 11:40 **信定 克幸** (分子科学研究所)  
「ナノ構造体における光誘起電子ダイナミクス」
- 11:40 - 12:00 **斎藤 峯雄** (金沢大学)  
「スラブ系の電子状態計算の開発と応用」

### 《昼食 12:00 - 13:20》

### 《招待講演》

- 13:20 - 13:50 **福島 孝治** (東京大学)  
「STM 画像データから物理モデルの構成方法 —データ駆動科学の例として—」
- 13:50 - 14:20 **加藤 雅治** (東京工業大学)  
「固体中の第2相の形状：エネルギー論を中心にした考察」

### 《CMSI 研究課題発表(第3部会)》

- 14:20 - 14:25 **第3部会レビュー** [岡崎進]  
14:25 - 14:45 **小関 史朗** (大阪府立大学)  
「有機 EL 燐光材料分子の理論的設計とシミュレーション」
- 14:45 - 15:05 **小林 正人**<sup>†</sup> (早稲田大学)  
「ナノ・生体系の反応制御と化学反応ダイナミクス」

### 《コーヒーブレイク 15:05 - 15:20》

- 15:20 - 15:40 **岡本 祐幸** (名古屋大学)  
「拡張アンサンブル法による生体分子の高次構造と機能の解明」
- 15:40 - 16:00 **松林 伸幸** (京都大学)  
「ポリモルフから生起する分子集団機能」
- 16:00 - 16:20 **北浦 和夫** (神戸大学)  
「フラグメント分子軌道法の開発と創薬への応用」
- 16:20 - 16:40 **岡崎 進** (名古屋大学)  
「小児マヒウイルスの全原子分子動力学シミュレーション」
- 16:40 - 17:00 **吉井 範行** (名古屋大学)  
「ポリオウイルスカプシドとレセプター CD155 との相互作用に関する大規模全原子分子動力学計算」
- 17:00 - 17:20 **安藤 嘉倫<sup>†</sup>** (名古屋大学)  
「汎用分子動力学計算ソフト MODYLAS 開発の最近の進展」

《コーヒーブレイク 17:20 - 17:30》

— 討論会「計算物質科学のためのコンピュータアーキテクチャーとは？」 —

モデレータ：藤堂眞治

《招待講演》

- 17:30 - 18:00 **小柳 義夫** (神戸大学)  
「将来の HPCI 計画推進」
- 18:00 - 18:15 **SC13 参加報告** [笠松秀輔]
- 18:15 - 18:30 **FS 進捗, ロードマップ** [藤堂眞治]
- 18:30 - 18:50 **全体討論**

## 12月13日(金)

### 《CMSI 研究課題発表(第4部会)》

- 9:00 - 9:05 **第4部会レビュー** [杉野修・山下晃一]  
9:05 - 9:25 **吉田 紀生** (九州大学)  
「3D-RISM による KcsA チャンネル中のカチオン結合モード解析」
- 9:25 - 9:45 **山下 晃一** (東京大学)  
「太陽電池における光電変換の基礎過程の研究と変換効率最適化・長寿命化にむけた大規模数値計算」
- 9:45 - 10:05 **三浦 伸一** (金沢大学)  
「第一原理経路積分インスタントン法の開発とプロトン移動過程への応用」
- 10:05 - 10:25 **矢ヶ崎 琢磨<sup>†</sup>** (岡山大学)  
「メタンハイドレートの分解過程の分子動力学計算」

### 《コーヒーブレイク 10:25 - 10:40》

- 10:40 - 11:00 **Nicephore Bonnet<sup>†</sup>** (東京大学)  
“Enhancement of the Catalytic Activity of Nanoparticles by the Thermal Motion of a Polar Solvent”
- 11:00 - 11:20 **木崎 栄年<sup>†</sup>** (大阪大学)  
「ステップ構造を持つ Pt(322)表面における水バイレイヤー中の OH 吸着及び水の解離 ～第一原理分子動力学シミュレーション～」
- 11:20 - 11:40 **袖山 慶太郎** (京都大学)  
「DFT-MD 自由エネルギー計算によるリチウムイオン電池電解液・添加剤の還元反応解析」
- 11:40 - 12:00 **浅井 美博** (産業技術総合研究所)  
「非平衡量子伝導理論の展開: ナノエレクトロニクスから熱マネジメント材料へ」

### 《昼食 12:00 - 13:20》

### 《CMSI 研究課題発表(第5部会)》

- 13:20 - 13:25 **第5部会レビュー** [香山正憲]  
13:25 - 13:45 **澤田 英明** (新日鐵住金)  
「鋼中析出物界面の第一原理計算」
- 13:45 - 14:05 **譯田 真人<sup>†</sup>** (大阪大学)  
「電子論に基づく Fe-Si 合金のマクロな機械的特性の予測」
- 14:05 - 14:25 **寺田 弥生** (東北大学)  
「多分散レナード・ジョーンズ系における相図の粒度分布と温度依存性」



- 14:25 - 14:45 **澁田 靖**<sup>†</sup> (東京大学)  
「合金凝固組織の高精度制御を目指したデンドライト組織の大規模数値計算  
—大規模分子動力学法による高温物性値の導出と固液界面挙動解析—」
- 14:45 - 15:05 **西松 毅** (東北大学)  
「強誘電体の電気熱量効果の分子動力学計算」
- 15:05 - 15:25 **大野 かおる** (横浜国立大学)  
「ナノクラスターから結晶までの機能性材料の全電子スペクトルとダイナミクス」

《コーヒーブレイク 15:25 - 15:40》

《CMSI 支援課題》

- 15:40 - 16:00 **中野 博生** (兵庫県立大学)  
「フラストレート磁性体の計算科学研究  
—スピン空間に異方性のない系でのスピントロップ現象—」
- 16:00 - 16:20 **芝 隼人**<sup>†</sup> (東京大学)  
「界面活性剤系のマルチラメラ高次構造形成の大規模粗視化分子動力学計算」
- 16:20 - 16:40 **大久保 毅**<sup>†</sup> (東京大学)  
「フラストレート磁性体におけるトポロジカル励起の秩序化」
- 16:40 - 17:00 **石村 和也**<sup>†</sup> (分子科学研究所)  
「ナノサイズ分子の新規構造及び機能の探索  
—大規模並列計算プログラムの効率的な開発—」
- 17:00 - 17:20 **土居 抄太郎**<sup>†</sup> (東京大学)  
「Screened KKR 法による永久磁石材料の第一原理電子状態計算」
- 17:20 - 17:40 **茂木 昌都** (日産アーク)  
「HPC を用いた次世代電池の反応機構の解明」

# Poster Session

**12月11日(水)** 16:05 - 18:20 6階ラウンジ (†はポスター賞対象者)

- P-01 **大越 孝洋**<sup>†</sup> (東京大学)  
「冷却原子系の量子モンテカルロ・シミュレーション」
- P-02 **米原 文博**<sup>†</sup> (東京大学)  
「多くの励起状態と輻射場が関わる超高速非断熱化学過程と多階層構造を有する分子系における電子動力学の追跡に向けた計算手法の開発」
- P-03 **Qing-Miao Nie**<sup>†</sup> (名古屋大学)  
“Dynamical energy landscape theory for the force-generation process in actomyosin motor”
- P-04 **小畑 修二** (東京電機大学)  
「磁気双極子相互作用に基づくナノ構造 Fe の磁化過程のシミュレーション」
- P-05 **河津 励**<sup>†</sup> (分子科学研究所)  
「虚時間離散化インスタントン法の虚時間範囲に対する新しい取り扱い方法」
- P-06 **小泉 健一**<sup>†</sup> (東京大学)  
「実空間密度汎関数法に基づいた Car-Parrinello 法(RS-CPMD)の開発」
- P-07 **坂下 あい**<sup>†</sup> (お茶の水女子大学)  
「球状ベシクルに内包されたベシクルの形状決定機構の解明」
- P-08 **Vikas Sharma**<sup>†</sup> (産業技術総合研究所)  
“Local Mechanical Properties of Iron-Precipitate Coherent Interfaces Using First-Principles Calculations”
- P-09 **岡 耕平**<sup>†</sup> (大阪大学)  
「酸化タングステン表面上での水素吸着・拡散機構の解析」
- P-10 **小野 頌太**<sup>†</sup> (横浜国立大学)  
「原子球内ポテンシャル計算における高速高精度 Fourier 変換法の開発」
- P-11 **大脇 創** (日産自動車)  
「高性能蓄電デバイス開発へ向けた理論的基盤研究」
- P-12 **渡辺 宙志**<sup>†</sup> (東京大学)  
「気泡の可視化 ～「無い」ものを可視化する～」

- P-13 **北岡 幸恵**<sup>†</sup> (三重大学)  
「Fe フタロシアニンにおける d 電子配置：単一分子から基板吸着、結晶化に至る電子構造と遷移」
- P-14 **野田 真史**<sup>†</sup> (分子科学研究所)  
「ナノ構造体光励起ダイナミクス並列計算プログラム GCEED の開発とその応用」
- P-15 **新城 一矢**<sup>†</sup> (京都大学)  
「 $\text{Na}_2\text{IrO}_3$  に対する有効スピン模型の 2 次元密度行列繰り込み群法による研究」
- P-16 **石井 史之**<sup>†</sup> (金沢大学)  
「遷移金属酸化物における Rashba 効果の第一原理計算」
- P-17 **小田 竜樹** (金沢大学)  
「スラブ系電子構造計算の開発と応用」
- P-18 **鈴木 隆史**<sup>†</sup> (兵庫県立大学)  
「SU(N)一般化ハイゼンベルク模型の有限温度転移」
- P-19 **河野 貴久**<sup>†</sup> (東京大学)  
「ハイブリッド量子古典シミュレーションによるシリカガラス中の水分子反応」
- P-20 **Truong Vinh Truong Duy** (北陸先端科学技術大学院大学)  
“A decomposition method with minimum communication amount for parallelization of multi-dimensional FFTs”
- P-21 **田中 宗**<sup>†</sup> (東京大学)  
「フラストレーションが生み出す新奇相転移現象の探求」
- P-22 **田村 亮**<sup>†</sup> (物質・材料研究機構)  
「反強磁性体における磁気熱量効果の特徴」
- P-23 **正木 晶子**<sup>†</sup> (東京大学)  
「ワーム更新による並列化量子モンテカルロアルゴリズム」
- P-24 **明石 遼介**<sup>†</sup> (東京大学)  
「プラズモン支援超伝導のための密度汎関数理論：転移温度計算手法開発とその応用」
- P-25 **水口 朋子**<sup>†</sup> (分子科学研究所)  
「タンパク質の膜内安定性に関する自由エネルギー解析」
- P-26 **西澤 宏晃**<sup>†</sup> (分子科学研究所)  
「DC-DFTB 理論の高度並列化と Hessian への理論展開」
- P-27 **本山 裕一**<sup>†</sup> (東京大学)  
「ゲージ固定ベリー接続の有限サイズスケーリング解析」

- P-28 **安田 真也**<sup>†</sup> (東京大学)  
「量子臨界点における有効アスペクト比への有限サイズ補正とその起源」
- P-29 **小幡 正雄** (金沢大学)  
「ファン・デル・ワールス密度汎関数法の磁性物質への適応」
- P-30 **野口 良史**<sup>†</sup> (東京大学)  
「第一原理  $GW$ +Bethe-Salpeter 法の開発と最近の応用例」
- P-31 **稲垣 耕司** (大阪大学)  
「第一原理計算による触媒援用表面エッチングプロセスの解明」
- P-32 **堀田 俊樹**<sup>†</sup> (東京大学)  
「長距離相互作用系のあるイジング模型のユニバーサリティクラス」
- P-33 **吉澤 香奈子**<sup>†</sup> (東京大学)  
「xTAPP と TAPIOCA の開発：統合入力ファイルへの拡張とソフトウェアの公開」
- P-34 **小西 優祐**<sup>†</sup> (産業技術総合研究所)  
「ナノ構造を持つ合金中の熱伝導計算」
- P-35 **高木 紀明** (東京大学)  
「STM トンネル接合における磁性分子の可逆的量子状態操作」
- P-36 **樋口 大志**<sup>†</sup> (東京理科大学)  
「実時間密度汎関数法によるシリセンナノリボンからのレーザー誘起電界電子放出」
- P-37 **胡 春平**<sup>†</sup> (東京理科大学)  
「Tamm-Dancoff 近似に基づいた TDDFT 法による非断熱結合係数の高精度計算」
- P-38 **Bo Xiao** (東京大学)  
“First-Principles Study on the bonding and O diffusion in Amorphous-TaO<sub>x</sub>”
- P-39 **Pavel V. Avramov** (神戸大学)  
“Structural Models and FMO Analysis of Human and Avian Hemagglutinin Protein Interactions with Sialocide Ligands”
- P-40 **坂下 達哉**<sup>†</sup> (東京大学)  
「並列固有値ソルバの統一的インターフェースを用いた厳密対角化パッケージの開発」
- P-41 **榮 慶丈**<sup>†</sup> (名古屋大学)  
「アミノ酸の種類ごとに区別したタンパク質系力場の提案」
- P-42 **Hui-Hai Zhao**<sup>†</sup> (東京大学)  
“Tensor Network Method on Finite Lattice with Periodic Boundary Condition”

- P-43 **西松 毅**（東北大学）  
「3次元FFTのベンチマーク」
- P-44 **澁田 靖**<sup>†</sup>（東京大学）  
「炭素ナノ材料生成過程の第一原理分子動力学法シミュレーション  
—炭素源分子解離機構の解明に向けて—」
- P-45 **笠松 秀輔**<sup>†</sup>（東京大学）  
「強誘電体薄膜キャパシタの第一原理解析」
- P-46 **下司 雅章**（大阪大学）  
「CMSIの人材育成 ～計算科学の将来を見据えて～」
- P-47 **吉井 範行**（名古屋大学）  
「TCCIにおける人材育成・教育活動の報告」
- P-48 **寺田 弥生**（東北大学）  
「2013年度東北大学計算材料科学研究拠点（CMRI）活動報告」
- P-49 **五十嵐 亮**<sup>†</sup>（東京大学）  
「MateriApps: 物質科学シミュレーションのポータルサイト」

# 物性研スパコン共同利用 特別講演

12月10日 13:05～13:45

**中島 研吾** (東京大学 情報基盤センター)

「ポストペタスケール・エクサスケールシステムへ向けての  
東京大学情報基盤センターの取組」

12月11日 10:00～10:40

**廣井 善二** (東京大学 物性研究所)

「フラストレーション格子化合物の物理と化学」

## CMSI 招待講演

12月12日 13:20～13:50

**福島 孝治** (東京大学 総合文化研究科)

「STM 画像データから物理モデルの構成方法  
—データ駆動科学の例として—」

12月12日 13:50～14:20

**加藤 雅治** (東京工業大学 総合理工学研究科)

「固体中の第2相の形状：エネルギー論を中心にした考察」

12月12日 17:30～18:00

**小柳 義夫** (神戸大学 システム情報学研究科)

「将来の HPCI 計画推進」

## ポストペタスケール・エクサスケールシステムへ向けての 東京大学情報基盤センターの取組

東大情基セ<sup>1</sup> 中島研吾<sup>1</sup>

東京大学情報基盤センターは、学際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点の中核拠点として、複数のスーパーコンピュータシステムを運用する他、ハードウェア、システムソフトウェア、数値ライブラリ、アプリケーションも含めた幅広い研究開発を実施しております。

本講演では、東大センターの現状と、筑波大と共同で2015年度に導入が予定されているポストT2Kシステムの概要、東大が中心となって実施している「レイテンシコアの高度化・高効率化による将来のHPCIシステムに関する調査研究」の概要の他、2011年度から5年計画で実施している「ppOpen-HPC：自動チューニング機構を有するアプリケーション開発・実行環境」(<http://ppopenhpc.cc.u-tokyo.ac.jp/>) について紹介します。

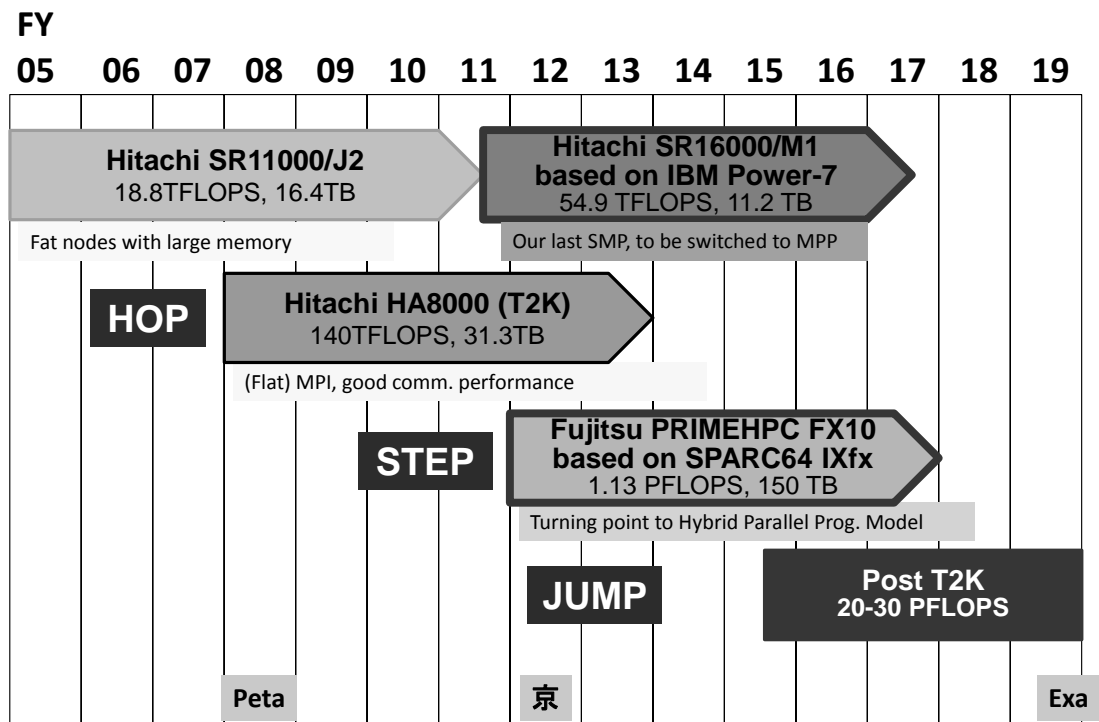


図1 東京大学情報基盤センターのスーパーコンピュータシステム

## フラストレーション格子化合物の物理と化学

東大物性研 広井善二

様々なフラストレーション格子上の強相関電子系が示す物性に着目して物質探索が行われてきた。局在スピン系に大きな謎として残されている量子スピンカゴメ格子反強磁性体の基底状態は依然として謎のままであり、パイロクロア格子上の伝導電子とスピンの相関は大きな注目を集めている。現実の物質を研究して行き着く先は、常に単純なモデルとの間に横たわるギャップである。絶対零度まで長距離秩序を示さないスピン液体状態は僅かな摂動で大きく異なる状態に移ってしまうと予想されるし、低次元スピン系は有限の三次元性のために何らかの秩序状態に落ち着くと考えるのが妥当である。隠された物理の本質を見極めるためには現実世界の困難を理解しつつ、自然の摂理を程良く洞察することが重要であろう。というような能書きはさておき、われわれの最近のフラストレーション物質研究の現状を報告する。



## STM 画像データから物理モデルの構成方法 —データ駆動科学の例として—

東大総合文化 福島孝治

これまでの自然科学は、実験により自然現象を法則として切り出し、理論的に基本法則を見出すことにより発展してきた。さらに、計算機を用いたシミュレーションは複雑な理論モデルの解析を可能とし、「理論」「実験」「シミュレーション」の三つの方法をつき合わせながら我々は自然現象を理解してきた。しかし、近年の実験・測定技術の発展に伴い、得られるデータが高次元になると、自然現象の整理自体が容易ではなくなり、三つの方法をつき合わせるポイントを同定することが困難となってきている。高次元データの中に埋もれている情報抽出の困難さはビッグデータの問題として、社会科学にも共通する問題である。

本講演では、走査型トンネル顕微鏡による物質表面の原子スケールの画像を例に、高次元データの解析方法の最近の試みについて紹介したい。これまでの多くの研究では、第一原理計算から現象論的理論モデルのパラメータを計算し、それを用いたシミュレーションと実験結果を「絵」として比較することにより、モデルパラメータの妥当性を検討してきた。本研究では逆方向のアプローチを考える。すなわち、実験から得られる画像データを入力として、ベイズ推定を用いて理論モデルを構成する方法論を提案する。これは高次元データである画像から理論モデルを抽出することに相当し、データ駆動科学の物性物理への応用手法と考えられる。これまでには散乱実験からの構造推定法としてリバースモンテカルロ法がよく知られているが、ベイズ推定の観点から見直すと同様な範疇の方法と考えることができる。時間が許せば、今回の方法との相違点を議論したい。

## 固体中の第2相の形状：エネルギー論を中心にした考察

東工大 総合理工 加藤雅治

固体材料の種々の性質（とくに力学特性）は、材料の組織に依存する。一般に、組成や結晶構造の異なる複数の相（phase）の形状や分布状態で組織が決まる。そこで、固体母相中の第2相（析出物、マルテンサイト、介在物など）に着目し、第2相の形状が弾性（ひずみ）エネルギーや界面エネルギーを通じてどのように決まるのかを考察する。

一般に第2相 $\Omega$ とそれを囲む母相は、結晶構造が異なっていたり、結晶構造は同じでも格子定数が異なっていたりする。その結果、 $\Omega$ にはひずみが発生し、この固体は弾性エネルギーをもつ。発生したひずみ（ミスフィットひずみ、変態ひずみ、塑性ひずみ、熱膨張ひずみ、など）を総称して eigen ひずみ $\varepsilon_{ij}^*$ とよぶ。Eshelby は楕円体状の $\Omega$ 中に $\varepsilon_{ij}^*$ が発生したとき、 $\Omega$ 内の全ひずみ $\varepsilon_{ij}$ や応力 $\sigma_{ij}$ が、楕円体の形のみで決まる一定値になることを示した [1, 2]。これを使えば、 $\varepsilon_{ij}^*$ が与えられたとき、種々の形状の第2相について弾性エネルギーを定量的に評価でき、エネルギー的に都合の良い第2相の形が得られる。図1は、母相の $f$ 倍の弾性定数をもつ $\Omega$ に $\varepsilon_{11}^* = \varepsilon_{22}^* = \varepsilon$ 、 $\varepsilon_{33}^* = k\varepsilon$  ( $k$ は実数)、他の $\varepsilon_{ij}^*$ はゼロという eigen ひずみが発生したとき、 $f$ と $k$ に依存してどのような形状の $\Omega$ がエネルギー的に最も安定かを示した安定形状図 [3]、図2は $k=1$ （純粹膨張または純粹収縮）で $\Omega$ の形状が板、球、針の場合の弾性エネルギーの $f$ 依存性である [4]。

以上は、弾性エネルギーのみが第2相の形状を決めていると考えたときの話であるが、他に第2相と母相の整合性や界面エネルギー、第2相同士の相互作用などの考慮が必要なこともある。これらについても議論する。

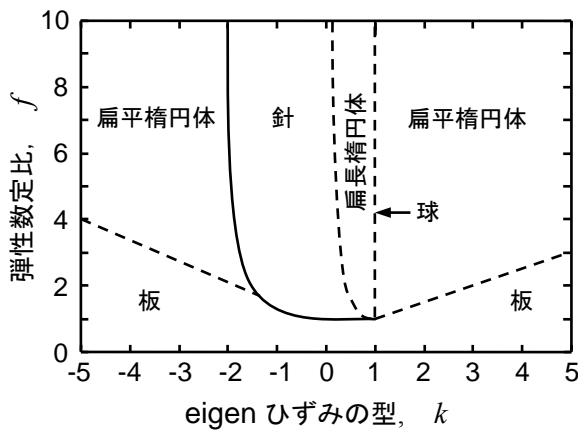


図1 安定形状図 [3]

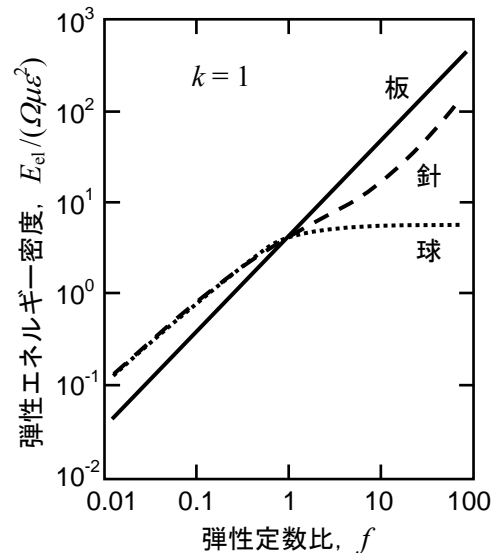


図2 板、球、針の弾性エネルギー [4]

文献

- [1] J. D. Eshelby; Proc. Roy. Soc., **A241**, 376 (1957).
- [2] J. D. Eshelby; Prog. Solid. Mech., **2**, 89 (1961).
- [3] T. Fujii, S. Onaka and M. Kato; Scr ipta Mater., **34**, 529 (1996).
- [4] M. Kato, T. Fujii and S. Onaka; Mater. Trans. JIM., **37**, 314 (1996).

## 将来の HPCI 計画推進

神戸大学システム情報学研究科 小柳義夫

理化学研究所計算科学研究機構により神戸に建設された「京コンピュータ」は、2011年に10.51PFlopsという世界一の性能をマークした後、2012年から供用開始され、さまざまな科学技術上の問題解決に活用されている。しかし精度を上げ複雑な対象に対応するには、すでに性能の不足が痛感されている。現在、2020年頃を目指して「京」の100倍程度の実効性能をもつエクサスケールのコンピュータを建設するプロジェクトが、アメリカ、ヨーロッパ、中国などで進められており、日本でもその動きが始まっている。社会的な制約から、「京」と同程度の予算、消費電力、床面積で建設することが求められているので、直面する技術的チャレンジは大きい。半導体技術の進歩は急速であるが、エクサスケールは市場の動向だけで実現する性能ではない。本講演では、どのような技術的なチャレンジがあり、それにどう立ち向かおうとしているか、また、そのような巨大な計算性能でどんな社会的・学術的な課題を解決しようとしているのか、世界の動きとあわせて解説する。

### 文献

[1] 小柳義夫他：岩波講座計算科学，別巻，スーパーコンピュータ，第4章「スパコンの進化とエクサフロップスに向けた今後の課題」岩波書店(2012)

[2] 文部科学省研究振興局計算科学技術推進室：今後の HPCI 計画推進の在り方について（中間報告）（平成 25 年 7 月）

[http://www.mext.go.jp/b\\_menu/shingi/chousa/shinkou/028/gaiyou/1337595.htm](http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/shinkou/028/gaiyou/1337595.htm)

# 物性研究所スパコン共同利用

12月10日（火） 13：45～17：35

12月11日（水） 10：40～12：15

## 数学・計算物質科学・HPC 分野の融合としての超大規模電子状態計算

鳥取大<sup>1</sup>, CREST(PostPeta)<sup>2</sup>, 愛知県立大<sup>3</sup>, 名古屋大<sup>4</sup>, 東京工科大<sup>5</sup>, 東京大<sup>6</sup> 星健夫<sup>1,2</sup>, 曾我部知広<sup>3,2</sup>, 宮田考史<sup>4,2</sup>, 李東珍<sup>4,2</sup>, 張紹良<sup>4,2</sup>, 井町宏人<sup>6</sup>, 山元進<sup>5</sup>, 西野信也<sup>6</sup>, 秋山洋平<sup>1</sup>, 山崎溪太<sup>1</sup>

近年筆者らが取り組んでいる、「京」や物性研スパコンにおける超大規模(1億原子・100ナノスケール) オーダー $N$ 電子状態計算(コード名 ELSESES)、および、基盤的数理研究(一般化シフト型方程式に対するクリロフ部分空間解法など)について、現状と展望を述べる[1-9]。図1に「京」を用いた1億原子系でのベンチマークをのせる(他応用研究は文献参照)。これら計算は第一原理にもとづくモデル化(TB型)システムを用いている。展望としては、電子物性を想定した大行列数理問題(例えば、内部固有対計算[9]、非線形シフト型方程式)があげられ、対象として有機 EL などのアモルファス状高分子デバイスがあげられる。

本研究は、実アプリ分野(物理学など)・数理分野・HPC 分野の連携研究であり、こうした取り組みを、Application-Algorithm-Architecture (A-A-A) co-design と呼ぶこともある。本研究での数理手法は他分野にも現れ[10]、計算科学を支える基盤と言える。エクサ時代を見据えて、疎行列データベース公開[11]や国際会議企画(分担)[12]など、コミュニティ形成にも取り組んでいる。

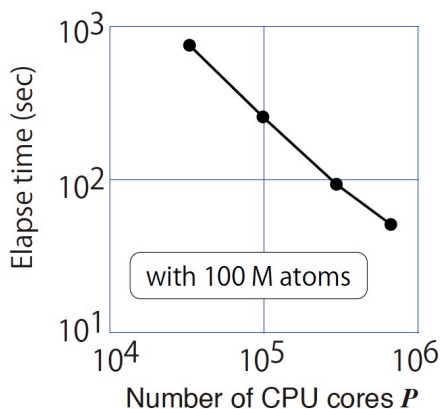


図1: 「京」での 103,219,200(約1億)原子系超並列計算(strong scaling) [8]。全コア(663,552コア)までの計算。物質は、ナノ多結晶ダイヤモンド[13]研究における、sp<sup>2</sup>-sp<sup>3</sup> ナノ複合カーボン固体[7]。

[1] <http://www.elses.jp>, <http://www.damp.tottori-u.ac.jp/~hoshi/> [2] H. Teng, *et al*, PRB**83**, 165103 (2011) [3] 山下他, 日本応用数理学会論文誌 **21**, 241 (2011) [4] T.Hoshi, *et al*, JPCM **24**, 165502 (2012) [5] 西野(東大)・山崎(トヨタ自動車)らを中心とした電池関連物質研究として, S. Nishino, *et al.*, Solid State Ionics **225**, 22 (2012); 19th Int. Conf. on Solid State Ionics, 2013, Kyoto [6] T. Sogabe, *et al.*, J. Comp. Phys. **231**, 5669 (2012) [7] T. Hoshi, *et al*, JPSJ**82**, 023710 (2013) [8] T. Hoshi, *et al*, 印刷中; <http://arxiv.org/abs/1307.3218> [9] D. Lee *et al.*, Jpn. J. Indust. Appl. Math. **30**, 625 (2013). [10] レビュー記事として, 曾我部・張, 応用数理 **19**, 163 (2009): <http://ci.nii.ac.jp/naid/110007361021> [11] <http://www.elses.jp/matrix/> [12] International Workshop on Eigenvalue Problems: Algorithms; Software and Applications, in Petascale Computing, Mar. 7-9, 2014, Tsukuba <http://h4es.cs.tsukuba.ac.jp/epasa2014/> (EPASA2014) [13] T. Irifune, *et al.*, Nature **421**, 599 (2003)

## 固体と表面のためのファン・デル・ワールス密度汎関数

物質・材料研究機構 濱田幾太郎

局所密度近似 (LDA)、あるいは一般化密度勾配近似 (GGA) を用いた密度汎関数理論に基づく電子状態計算手法は、分子、固体、表面、さらには生体分子などの幅広い研究分野で用いられており、系の電子構造と原子構造、そしてそれらの動的性質の微視的理解に貢献している。しかしながら LDA や GGA などの局所的な電子密度にのみ依存する近似では、分子間で重要な相互作用の一つである分散力を精度良く記述できないこともよく知られている。これは分散力が本質的に非局所的な電子間相互作用だからである。分散力を精度良く記述するための手法の開発は電子状態計算における一つの重要な課題となっており、これまでに様々な手法が開発されている。その中でも Langreth と Lundqvist らにより開発された非局所相関項を含むファン・デル・ワールス密度汎関数 (vdW-DF) [1] は、ファン・デル・ワールス相互作用と共有結合を一つの汎関数で同列に取り扱える手法である。また vdW-DF は電子密度のみに依存するため、波動関数にあらわに依存する手法と比べて極めて効率的である。vdW-DF は分子、分子性結晶、吸着系など様々な系に適用され、その有用性が示されている [2]。しかしながら、vdW-DF は一般に平衡原子間距離や吸着距離を過大評価し、また平衡位置近傍での分散力を過大評価することも知られている。そのため vdW-DF を高精度化するための提案が数多くなされている [3-7]。本講演では、vdW-DF の概観を行った後に、固体と固体表面を精度良く記述できる vdW-DF [8] の紹介を行い、分子、固体、吸着系への系統的な精度検証の結果とその様々な系への適用可能性についての議論を行う。またスピン分極した系のための vdW-DF の拡張 [9]、さらに高精度 vdW-DF に向けた交換汎関数の開発 [10] についても紹介したい。

文献

- [1] M. Dion, H. Rydberg, E. Schroeder, D. C. Langreth, B. I. Lundqvist, *Phys. Rev. Lett.* 92, 246401 (2004).
- [2] See for review: D. C. Langreth et al. *J. Phys. Condens. Matter* 21, 084203 (2009).
- [3] J. Klimes, D. Bowler, and A. Michaelides, *J. Phys. Condens. Matter* 22, 022201 (2010).
- [4] V. R. Cooper, *Phys. Rev. B* 81, 161104 (2010).
- [5] K. Lee, E. D. Murray, L. Kong, B. I. Lundqvist, and D. C. Langreth, *Phys. Rev. B* 82, 081101 (2010).
- [6] O. A. Vydrov and T. Van Voorhis, *J. Chem. Phys.* 133, 244103 (2010).
- [7] J. Wellendorff, et al., *Phys. Rev. B* 85, 235149 (2012).
- [8] I. Hamada and M. Otani, *Phys. Rev. B* 82, 153412 (2010); I. Hamada and M. Tsukada, *Phys. Rev. B* 83, 245437 (2011); I. Hamada, *Phys. Rev. B* 86, 195436 (2012).
- [9] M. Obata, M. Nakamura, I. Hamada, and T. Oda, *J. Phys. Soc. Jpn* 82, 093701 (2013).
- [10] I. Hamada (unpublished).

## 第一原理計算を用いたマルチフェロイック物質の材料設計

阪大産研 山内邦彦

磁性および強誘電性を同時に示す複合的秩序をもつ“マルチフェロイック物質”は、異なる秩序間の交差相関（電気磁気効果など）を含む興味深い物理現象を示す。講演者は数年にわたり、Silvia Picozzi 博士 (CNR-SPIN, イタリア) との共同研究を行い、反転対称性を破る反強磁性構造によって強誘電分極を示す斜方晶マンガン酸化物や、電荷秩序に起因して自発分極を発現するマグネタイト  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  に関する理論研究を行い、第一原理電子状態計算の立場から強誘電性や交差相関の微視的メカニズムを解明するための研究を進めてきた。最近では、ハーフドープマンガン酸化物のなかでも強誘電性が生じることが予想されている層状化合物  $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$  について電子状態計算を行い、現在のところ実験サイドから報告されていない結晶構造および電気分極の値を理論予測した。 $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$  では、A サイトを占める Sm/Ba イオン秩序化による層状構造がペロブスカイト構造の対称性を低下させ、 $\text{Mn}^{3+}/\text{Mn}^{4+}$  イオンの電荷秩序パターンが反転対称性を破り、双極子モーメントに起因する強誘電分極が生じることを明らかにした。[1, 2]

一方で、電気磁気効果（外部磁場に誘起される電気分極）の電子論的機構に関する研究を行っている。以前に、コバルト酸化物  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  およびマグネタイト  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  における、スピン軌道相互作用および異方的  $pd$  混成に起因する電気磁気効果の微視的機構を明らかにしたが [3, 4]、同様の機構で電気磁気効果の生じる物質を探索した結果、無限層構造をもつ  $\text{CaFeO}_2$  および  $\text{MgFeO}_2$  が、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  よりも強い電気磁気効果を示すことを電子状態計算および群論的手法を用いて予測した。[5] 本講演では、第一原理電子状態計算から解明された電気磁気効果の微視的機構に焦点を当て、遷移金属酸化物における磁性・誘電性についての研究成果を報告する。

### 文献

- [1] K. Yamauchi; J. Phys. Soc. Jpn. (Letter) **82**, 043702 (2013).
- [2] K. Yamauchi and S. Picozzi; J. Phys. Soc. Jpn. (Letter) **82**, 113703 (2013).
- [3] K. Yamauchi, P. Barone, and S. Picozzi; Phys. Rev. B **84**, 165137 (2011).
- [4] K. Yamauchi and S. Picozzi; Phys. Rev. B **85**, 085131 (2012).
- [5] K. Yamauchi, T. Oguchi, and S. Picozzi; arXiv:1304.1228.

## 多孔質に閉じ込めたネマチック液晶が示す非線形・非平衡挙動

京大院理、荒木武昭

ネマチック液晶を多孔質に封入した系において、単純なセルに封入した場合に見られる弾性力による早い緩和とは別に、遅い緩和とそれに由来するメモリー効果が見られることが知られている。我々はこれまで、Lebwohl-Lasher ポテンシャルを用いたモンテカルロシミュレーションによって、この振る舞いを調べ、この遅い緩和が熱的に誘起された配向欠陥の組み換えによるものであることを示した。また、規則的な構造を持つ多孔質を用いることで配向欠陥の構造も規則的に配置することができることも示した[1]。一方、非平衡状態下における第二種高温超伝導体や超流動相においては、トポロジカル欠陥が系の輸送現象に大きな役割を果たすことが知られている。本研究は、多孔質中に閉じ込めたネマチック液晶の欠陥構造と、多孔質中での液晶の流動性がどのように関係づけられるかを Landau-de Gennes モデルを組み合わせた格子ボルツマン法によって調べることを目的としている。

図 1 は、立方対称の対称性を持つ多孔質にネマチック液晶を封入し、液晶を流した場合の配向欠陥のパターンである。ここでは多孔質によってトポロジカルに拘束されたものとそうでないものの二種類の欠陥が存在する。流れが小さい場合には、欠陥は分子の回転運動によって流れに逆らい、自由エネルギー的に安定な元の位置を保持することが分かった。流れが大きくなると、トポロジカルに拘束されていない欠陥が動き出すようになる。さらに流れを強くすると、拘束された欠陥も組み換えながら運動するようになった。

このトポロジカル欠陥の構造の変化に伴い、ネマチック液晶の実効的な粘性も変化することも分かった。また、外場を掛けた方向とは垂直に液晶を流すことで、欠陥パターンをその方向に向きを変え、このとき、実効的な粘性も大きく変化する。このように、多孔質中において欠陥構造と液晶の流れやすさは関係しており、系として非線形流動を示すことが分かった[2,3]。

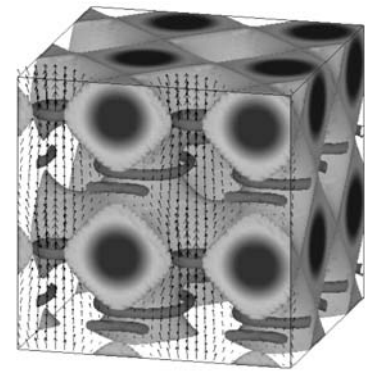


図 1 立方対称の多孔質を流れるネマチック液晶の配向欠陥の様子。

以上の研究は、東大田中肇教授、ミラノ大 T. Bellini 教授、M. Buscaglia 博士、F. Serra 博士との共同研究である。

文献

- [1] T. Araki, M. Buscaglia, T. Bellini and H. Tanaka, H., Nature Materials **303**, 10 (2011).
- [2] T. Araki, Phys. Rev. Lett. **109**, 257801 (2012).
- [3] T. Araki, F. Serra and H. Tanaka, Soft Matter **9**, 8107 (2013).



## 高分子流体の階層連携シミュレーション

東北大院理 村島隆浩

現在、我々の身の周りには数多くの高分子製品（ビニール袋、ペットボトル、発砲スチロールなど）が存在し、我々の生活に欠かせない。これらの高分子製品は、もとは高分子樹脂を高温で溶かした溶融体であり、用途に応じて様々な成形加工を施すことにより、我々の生活に役立てられている。成形加工において高分子溶融体（高分子流体）の流動挙動を調べ、予測・解析することは、新規材料開発においてとても重要である。

高分子溶融体の流動解析は従来、マクロスケールの流体力学的方法とミクロスケールの分子運動論的方法を用いて議論されてきた。高分子溶融体は構成要素である高分子が非常に長いために変形の緩和時間が長いという特徴から、水やエタノールのような低分子からなる流体（ニュートン流体）とは異なる、長い緩和時間を持った非線形な振る舞いを示す。流体力学的方法ではこの非線形な振る舞いを表すための構成方程式を作成する困難がある。つまり従来の流体力学的方法では一般の高分子構造を流動に反映することはできない。一方、分子運動論的方法は高分子構造を考慮することが可能であるが、高分子が非常に大きな分子量を持つためにマクロスケールの流動を解析するほどの超大規模なシミュレーションを実施することは不可能である。

我々は上記の流体力学的方法と分子運動論的方法を連携して高分子溶融体の流動解析を行う階層連携手法（マルチスケールシミュレーション）を開発した[1-4]。流体力学的手法における構成方程式の代わりに、各流体要素に高分子シミュレータを配置し、局所的な流体変形に対する高分子の応力を高分子シミュレータにより求める。また高分子は変形すると同時に上流から下流へと流動するので、流体要素はラグランジュ的に取り扱う。高分子の拡散は非常に遅いので流体要素間の高分子の移動は無視することができるため、各流体要素に配置された高分子シミュレータはそれぞれ独立に計算することが可能になる。したがって我々のマルチスケールシミュレーション手法は並列計算が非常に容易な方法である。

本研究では粒子法による数値流体力学法に粗視化高分子シミュレーションを組み込んだマルチスケールシミュレーションを行った。高分子の流動が正しく取り扱えていることを調べるために、高分子の移流、つまりマクロな流動中のミクロな状態変化について紹介する。

文献

- [1] T. Murashima, T. Taniguchi; J. Polym. Sci. B, **48**, 886 (2010)
- [2] T. Murashima, T. Taniguchi; EPL, **96**, 18002 (2011)
- [3] T. Murashima, T. Taniguchi; J. Phys. Soc. Jpn., **81**, SA013 (2012)
- [4] T. Murashima, S. Yasuda, T. Taniguchi, R. Yamamoto; J. Phys. Soc. Jpn., **82**, 012001 (2013)

### 3次元トポロジカル絶縁体の半金属-金属転移における状態密度スケーリング

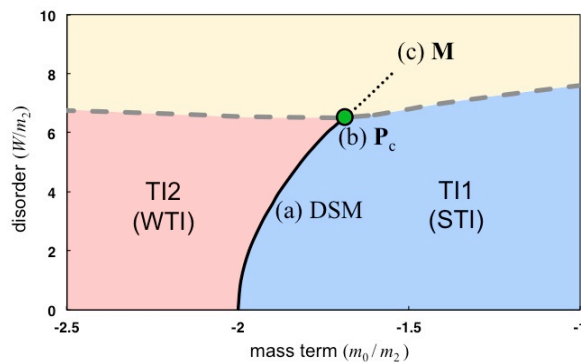
上智大理工<sup>1</sup>、広島大学先端研<sup>2</sup>、Simon Fraser Univ.<sup>3</sup>

小林浩二<sup>1</sup>、大槻東巳<sup>1</sup>、井村健一郎<sup>2</sup>、I.F. Herbut<sup>3</sup>

トポロジカル絶縁体は、ブリルアンゾーンにわたる波動関数の積分で定義される。この積分値が非自明な値をもつ場合、系の端・表面に線形なエネルギー分散をもつ状態が現れる。一方、この定義は不純物（ランダムネス）がある場合には適用できない。しかしながら、ランダムネスがある系でも、表面状態は安定して存在し[1]、これを調べることでトポロジカル絶縁体がどの程度不純物に対して安定かを議論できる[2]。

3次元のトポロジカル絶縁体では、ランダムネスの効果が *irrelevant* になり、そのため、異なるトポロジーをもつ相の境界は Dirac 半金属状態になる。この半金属状態はランダムネスがある程度まで弱ければ安定であるが、ランダムネスが臨界的な値を超えると金属状態へと相転移し、転移点は 3 重臨界点となる[2](図参照)。

本研究では、ランダムな 3 次元トポロジカル絶縁体における状態密度を *kernel polynomial* 法による大規模数値計算により決定した。様々なパラメータに対して、状態密度は 6 桁にわたり 1 変数スケーリングを示した[3]。これにより、Dirac 半金属-金属転移における臨界指数  $\nu$  と動的臨界指数  $z$  を決定した。



ランダムネスのある場合の 3 次元トポロジカル絶縁体の相図。横軸がバルクのエネルギーギャップを特徴づけるパラメータで、縦軸はランダムネスの強さを表す。M は金属相、TI はトポロジカル絶縁相を意味する。異なるトポロジカル絶縁相の相境界で Dirac 半金属(DSM)が実現する。

[1] K.-I. Imura et al.: Physical Review B 86, 245436 (2012)

[2] K. Kobayashi, T. Ohtsuki, K.-I. Imura: PRL 110, 236803 (2013)

[3] K. Kobayashi, T. Ohtsuki, K.-I. Imura, I. Herbut: arXiv:1308.3953

## 誘電体のモデル計算

芝浦工業大学工学部、 富田裕介

磁性体と誘電体. 磁気と電気を対等なものと考えればほぼ対等に扱われるべき対象でありながら、物質科学における両者それぞれの理解の差には大きな隔たりがあるように思われる. この大きな隔たりが存在する理由は様々だと思うが、ひとつの大きな理由は誘電体が磁性体におけるイジングモデルのような典型的モデルを持っていないことにあるのではないかと私は考えている.

本講演では、双極子相互作用する有効スピンモデル[1, 2, 3, 4]を通して誘電体を眺めてみると、誘電体が物質科学として興味深い物質であるだけでなく、統計物理学の観点からも興味深い対象であることを紹介する. また最近、誘電応答と誘電体中の不純物との関係について単純な有効スピンモデルを用いて数値計算を行ったので、その結果[4]について紹介する.

文献

- [1] Y. Tomita: J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 114004 (2009).
- [2] Y. Tomita, T. Kato, and K. Hirota: J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 023001 (2010).
- [3] Y. Tomita and K. Ohwada: J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 011012 (2010).
- [4] Y. Tomita and T. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 063002 (2013).

## 近藤状態にある量子ドット系での非平衡電流の揺らぎ

東大物性研<sup>1</sup>、大阪市大理<sup>2</sup>、インペリアルカレッジ<sup>3</sup>  
阪野壘<sup>1</sup>、小栗章<sup>2</sup>、西川裕規<sup>2</sup>、Alex C. Hewson<sup>3</sup>

近藤効果は最も基本的な電子相関効果の一つとして、単純な不純物問題から強相関電子系まで広い分野に渡って研究されてきた。近年では、微細加工されたナノ構造中の量子ドットを磁性不純物として用いることで、近藤状態のこれまでは直接調べることでできなかった特性が詳しく調べられるようになった。最も特徴的なのは、これまで難しかった非平衡状態にある系での近藤状態の観測である。非平衡状態は量子ドットに繋いだ複数のリード間に電圧を印加することで得られ、容易に系統的な制御が可能である。また、ナノサイズ系ではこれまで、輸送現象を通して電子状態の探索が行われてきた。最近では単純な時間平均電流ばかりではなく、ショット雑音のような電流の揺らぎに起因した、より動的な輸送量の観測する技術も向上している。実際、近藤状態にある量子ドット系では、電流のショット雑音が増幅される様子が観測されている[1]。近藤状態にあるドットでは、電子状態は局所フェルミ流体を形成し、励起状態にある準粒子は局所フェルミ流体相互作用により散乱される。この時、2つの準粒子間に局所フェルミ流体相互作用が働くことで倍電荷状態が非平衡電流中に形成し、その結果、電流揺らぎが増幅されることが明らかにされている[2,3]。この電流の運ぶ有効電荷は電流とショット雑音の比から直接得られ、非平衡電流の観測から得られる平衡系からは得ることができない特徴的な量である。また、倍電荷状態を構成する準粒子対は纏れ状態を形成するため、近藤状態を利用した量子情報デバイスへの応用も考えられる。

我々は最近、カーボンナノチューブ量子ドットなど軌道自由度を持つ量子ドットでの高次スピンの近藤状態による電流揺らぎを、完全計数統計を用いて解析した。低バイアス非平衡状態に対し、準粒子状態のハミルトニアンを繰り込まれた摂動論により構成し電流揺らぎの生成母関数を導出し、フェルミ流体相互作用を数値繰り込み群により計算することで、電流揺らぎの相互作用依存性を詳しく明らかにした[4]。さらに、電流揺らぎのスピン・軌道間の交差相関を通して、倍電荷状態の形成の詳細や、フント則交換結合に起因した相関が観測できることを明らかにした。本講演では、これらの最近の結果について発表する。

### 文献

- [1] O. Zarchin, *et al.*; Phys. Rev. B **77**, 241303 (2008); T. Delattre, *et al.*, Nat. Phys. **5**, 208 (2009); Y. Yamauchi, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 176601 (2011).
- [2] E. Sela *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 086601 (2006); A. O. Gogolin and A. Komnik, Phys. Rev. Lett. **97**, 016602 (2006).
- [3] 阪野壘、小栗章、小林研介、固体物理 **77**, 475 (2012).
- [4] RS, *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 241301(R) (2011); RS *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 266401 (2012).

## 多変数変分モンテカルロ法によるスピン液体の研究

東大物性研<sup>1</sup>、東大院工<sup>2</sup> 森田悟史<sup>1</sup>、金子隆威<sup>2</sup>、今田正俊<sup>2</sup>

幾何学的フラストレーションと量子揺らぎの効果により絶対零度でも磁気秩序を示さない量子スピン液体状態は、近年の候補物質の発見にも刺激され盛んに研究が行われている。我々は教相関電子系に典型的に現れるエネルギーの階層構造を元にした計算手法 (MACE, Multi-scale Ab initio scheme for Correlated Electrons) [1] の量子スピン液体への応用を進めている。第一原理計算を出発点とし、制限 RPA 法によるダウンフォールディング手法により導出された低エネルギー有効模型に対し、高精度低エネルギーソルバーを用いて電子状態計算を行う。本講演では、最終段階にあたる低エネルギーソルバーとして開発を進めている多変数変分モンテカルロ法 [2] について紹介し、量子スピン液体状態が現れると考えられている正方格子上的スピン  $1/2$   $J_1$ - $J_2$  Heisenberg 模型で得られた結果を主に取り上げる。

変分モンテカルロ法は、変分パラメータを含む試行波動関数の元でエネルギー期待値を最小化することで基底状態を近似的に求める手法である。この手法の正当性・精度は波動関数の選択によって決まる。多変数変分モンテカルロ法では、大量の変分パラメータにより試行波動関数の自由度を確保することで、表現可能な状態空間を拡大している。また、系の対称性に対応した量子数射影を行うことで、基底状態の対称性が回復し高精度な解を得ることができる。

最近の密度行列繰り込み群の結果によると、正方格子上的  $J_1$ - $J_2$  Heisenberg 模型では、スタaggered 反強磁性相とストライプ反強磁性相の間に、スピギャップが開いた量子スピン液体が実現すると主張されている [3]。一方、これまでの変分モンテカルロ法による計算では、スピギャップが開いた量子スピン液体状態は実現できていない [4]。この原因は、彼らが用いた試行波動関数は常にギャップの閉じた状態のみしか表現できないためである。そこで我々は、スピギャップの閉じた状態と開いた状態を公平に扱うことが可能な変分波動関数を仮定し、変分モンテカルロ計算を実行した。また、スピン量子数、全運動量、格子の点群対称性による量子数に関する射影を考慮することで、密度行列繰り込み群では得ることができなかった多数の低励起状態の計算に成功した。本講演では、我々が用いた変分波動関数が、スピギャップが有限に開いた量子スピン液体相を再現することを示し、先行研究 [3-5] との比較を行う。

文献

- [1] M. Imada and T. Miyake: J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 112001
- [2] D. Tahara and M. Imada: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 114701
- [3] H.-C. Jiang, H. Yao, and L. Balents: Phys. Rev. B **86** (2012) 024424
- [4] L. Capriotti, et al.: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 097201
- [5] W.-J. Hu, et al.: Phys. Rev. B. **88** (2013) 060402(R)

# CMSI 研究課題発表（第 1 部会）

12月11日（水） 13：00～16：05

## 超並列 MP2-F12 法による大規模分子の相互作用エネルギーの高精度計算

神戸大システム情報<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup> 大西裕也<sup>1</sup>、石村和也<sup>2</sup>、天能精一郎<sup>1</sup>

【研究の背景】有機伝導体として注目を集める様々な有機分子結晶や凝集体では、分子間距離や分子配向といった微視的な構造が、伝導度などの電子的特性を決定する一つの重要な要素となっている。この微視的構造を電子状態計算によって正確に見積もるために、本課題では、現実的な計算コストで基底関数極限と同様の結果が得られる露わに相関した二次の摂動論 (MP2-F12 法) を、京コンピュータのために実装し、フラーレンやその誘導体といった有機伝導体として広く用いられている大きな分子の分子間相互作用の MP2-F12 計算を行っている。

【実装上の発展】以前の実装では、分子が大きな場合や基底関数が大きい場合には、各ノード上のメモリに全ての格子点データと全分子軌道からなる二次元配列を格納させることが困難な場合があったが、全軌道を複数のブロックに分割し、通信を複数回行うことで、消費メモリを節約して計算を行なう方法を新たに実装した。これにより MP2-F12 法を適用可能な分子や基底関数のサイズを拡張することができた。この場合、ノード間の通信回数が増えることになるが、京コンピュータではそれほど大きな問題にはならないことを確認した。

【応用計算】C<sub>60</sub> フラーレン二量体の相互作用エネルギーを種々の計算方法で求めたところ、分散相互作用を記述できない HF 法や DFT 法では、引力性の相互作用を記述できない一方で、MP2-F12 法では中心間距離 9.6 Å で極小値 -0.88 eV が得られた。しかしながら、実験で得られた凝集エネルギーから見積もった二分子間の安定化エネルギーは、0.3 eV よりも小さいと考えられるため、MP2-F12 法が相互作用の強さを大きく過大評価していることがわかる。一方、小さな分子では CCSD(T)法と同等の分子間相互作用エネルギーを与えることが知られている SCS-MP2-F12 法でも相互作用エネルギーは 0.6 eV 程度となり、MP2-F12 法よりも小さな分子間結合エネルギーを与えるものの、実験値と比較すると依然として相互作用を過大評価していることが明らかとなった。これらの結果から、小さな分子に対して最適化された SCS のパラメータは、フラーレンの分子間相互作用には有効でないことが示唆される。また、SCS が分子間相互作用を過大評価する傾向は、 $\pi$ 系を大きくしていった場合にも見られた。フラーレンや大きな  $\pi$ 系を持つ分子では LUMO レベルが低くなるため、これらの結果から、占有軌道と LUMO の間のエネルギー差が小さな場合には、SCS では不十分であることが示唆される。そこで、新たに軌道エネルギー差に依存したスケールリングパラメータを設計し、フラーレン二量体などに応用したところ、フラーレンや大きな  $\pi$ 系をもつ分子間だけではなく、SCS がうまく働かない水素結合系でも相互作用エネルギーに関して妥当な結果を得ることができた。詳細な結果および他の系に応用した結果については当日発表を行う。

### 【参考文献】

- [1] (a) S. Ten-no, J. Chem. Phys. **121**, 117 (2004). (b) K. Ishimura and S. Ten-no, Theor. Chem. Acc. **130**, 317 (2011).  
[2] S. Grimme, L. Goerigk, and R. F. Fink, WIREs Comput. Mol. Sci. **2**, 886 (2012).

## モデル空間量子モンテカルロ法の並列実装といくつかの応用例

神戸大システム情報 大塚勇起、天能精一郎

高精度かつ並列化効率の高い電子状態理論として、配置空間の量子モンテカルロ法がある[1,2]。これらの方法では、Configuration Interaction (CI)係数をウォーカーの密度分布として確率的に表現することによって、配置空間での厳密解であるFull-CI解を、実際の次元数より遥かに少ないメモリ使用量で計算することが可能である。しかしながら、励起状態への適用が困難であること、擬縮重状態のように複数の状態のエネルギーが近接している場合は、負符号問題が顕著となり、収束解が得られないという問題があった。

最近、これらの問題を解決する手法として、モデル空間量子モンテカルロ(Model Space Quantum Monte Carlo (MSQMC))法が提案されている [3]。MSQMC法でのモデル空間は、目的とする状態の主配置から構成され、その他の多数の電子配置からの寄与は、トランスファー行列のサンプリングによって確率的に有効ハミルトニアンの中に含まれる。MSQMC法は、完全縮重や擬縮重を伴う任意の励起状態を計算可能な強力な手法であり、我々はその超並列実装を行うと共に、高励起状態を含む幾つかの応用計算を行っている[4]。

図1に、MSQMC法とFull-CI法によるC<sub>2</sub>分子の基底状態と励起状態ポテンシャルカーブの比較を示す。X<sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>, B<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub>, B<sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>状態は、D<sub>2h</sub>対称性では同じ既約表現に属するが、平衡核間距離から結合解離領域にわたってFull-CI法の結果を精度よく再現していることが分かる。

当日は、アルゴリズムの詳しい説明と、Cr<sub>2</sub>や高いエネルギー領域のイオン化状態への応用例を紹介する予定である。

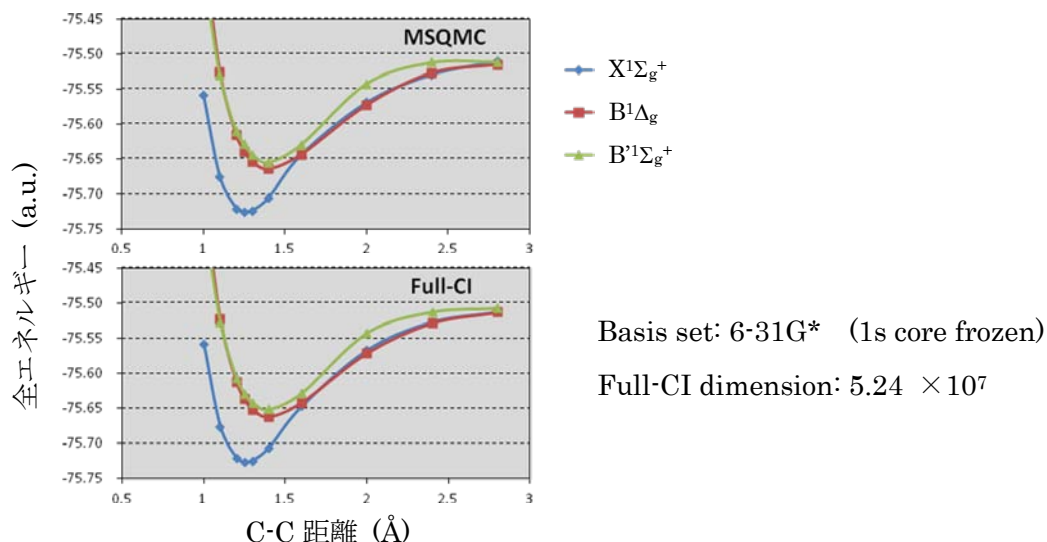


図1. MSQMC法とFull-CI法によるC<sub>2</sub>分子のポテンシャルカーブの比較

- [1] Y. Ohtsuka and S. Nagase, *Chem. Phys. Lett.*, 463, 431, (2008).
- [2] G.H. Booth, A.J.W. Thom and A. Alavi, *J. Chem. Phys.*, 131, 054106, (2009).
- [3] S. Ten-no, *J. Chem. Phys.*, 138, 164126, (2013).
- [4] Ohtsuka, Ten-no, in preparation



## アクトミオシンモーターの動作機構

名大院工<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup> Qing-Miao Nie<sup>1,2</sup>、笹井理生<sup>1</sup>、寺田智樹<sup>1</sup>

ミオシンはアクチンフィラメントとの相互作用を通じて、ATPの加水分解に伴うエネルギーを力学エネルギーに変える分子モーターであるが、その動作機構には不明の点が多い。とくに、ミオシンのレバーアーム運動とブラウン運動のどちらがどの程度、力の発生に寄与しているかは論争が続く問題である[1,2]。ここでは、この問題の解決に貢献するため、筋肉の力発生を担うミオシンIIとアクチンフィラメントからなる系を例にとり、タンパク質の粗視化モデルを開発し(図1)、計算科学アプローチによってミオシンの運動を考察する[3,4]。

本計算では、これまでX線や電子顕微鏡などにより解明された、レバーアームの向きとアクチンへの結合面が異なる複数のミオシン構造それぞれについて、さらにATP, ADP+Pi, ADPなどリガンドの異なる結合状態を考慮し、計7つの状態を区別する。この7状態それぞれについて、ミオシンとアクチンフィラメントの相対位置を座標とする面内で自由エネルギーランドスケープを



図1: アクトミオシン系の計算。合計1万アミノ酸残基以上のサイズとなる。

描画した。7つの自由エネルギーランドスケープ上の拡散運動とランドスケープ間の遷移を組み合わせたシミュレーションを行い、アクトミオシンがATPを消費しながら、ミオシン構造とミオシンの位置を変える様子を分析した。

重要な結果として、弱結合状態と強結合状態では、ミオシンはアクチンフィラメントの異なる位置に結合しようとするため、ATP加水分解に伴って弱結合状態から自由エネルギーのより低い強結合状態に緩和する際、アクチンフィラメントの回転運動が制限されている条件では、ミオシンは必ずアクチンフィラメント上を移動しなければならない、ということが明らかにされた。この移動運動は偏りのあるブラウン運動として、1分子計測の結果を再現する。また、この緩和過程でミオシンのレバーアームも向きを変えるため、レバーアーム運動とブラウン運動は同時に生じることが示された。ミオシンIIに対するこれらの結果を踏まえ、さらに細胞内の物質輸送を担うミオシンVI、ミオシンVなど近縁の分子モーターについても計算を開始し、京の有効利用によって分子モーター動作機構の基本原理に迫ることを目標としている。

### 文献

- [1] T. Yanagida, et al.; Curr. Opin. Cell Biol., **12**, 20 (2000).
- [2] J. Howard; Curr. Biol., **16**, R517 (2006).
- [3] Q.-M. Nie, A. Togashi, T. N. Sasaki, M. Takano, M. Sasai, T. P. Terada, submitted.
- [4] Q.-M. Nie, M. Sasai, T. P. Terada, submitted.

## 自在回転部位を有するナノ複合分子の機能評価から制御へ

東北大院理 河野裕彦、山崎馨、中村亮介、Anant Babu Marahatta、菅野学

$10^{13} \text{ W/cm}^2$ 以上の強度をもつ強い近赤外レーザー光は、分子内クーロン力に匹敵する力を電子に及ぼす。これにより、結合の組み替え・切断など様々な反応が引き起こされる。実験的には、波形整形パルスを用いることにより  $\text{C}_{60}$  のようなサイズの大きな分子においても様々な反応の経路や収率を変えることができる。大きな分子では、注入されたエネルギーは急速に複数の結合（あるいは振動モード）へ再分配され、入力されたエネルギーだけに依存する“統計的解離”が ns から  $\mu\text{s}$  の長い時間スケールで起こると考えられており、大きな分子でこのような制御が可能であることはきわめて興味深い。

我々は、 $\text{C}_{60}$ の光励起による解離反応制御の機構解明を目的とし、まず、強レーザー場によって誘起される初期振動ダイナミクスを時間依存断熱状態法に基づいた第一原理分子動力学計算(B3LYP など)により求めた[1]。その結果、パルス列によってモード選択的振動励起が可能であることを示した。振動励起後の  $\text{C}=\text{C}$  結合回転 (Stone-Wales 転位) を経て解離に至るナノ秒分子ダイナミクスのシミュレーションには、高速計算が可能ながらも化学反応を記述できる密度汎関数緊密結合法を用いた。これにより、 $\text{C}_{60}$ の結合ネットワーク上の振動エネルギーの流れを詳細に解析することができ、初期振動励起のモードに依存した非統計的解離過程が存在しうることを示した[1]。

最近、外場による分子ダイナミクス制御を、硬軟併せもつ分子の機能の動的発現に展開することも進めている。たとえば、剛性の高い分子フレーム中に回転する部位 (回転子) を導入した分子ジャイロスコープの結晶では、温度変化により回転子の回転頻度が変わり、光学的・誘電的性質が顕著な変化を示す。我々は、その構造を理論的に再現し、機能を支配する回転子運動を動力学計算によって明らかにしてきた[2]。また、ナノマシンの基本単位となり得るフラーレン内包分子ベアリング[3]をとりあげ、軸受け内に捕捉されたフラーレンの回転速度と回転方向の支配因子の解明にあたっている。今後は、これらの系の動きを迅速に操れる電磁場を理論設計し、回転部位の自在制御を目指す。

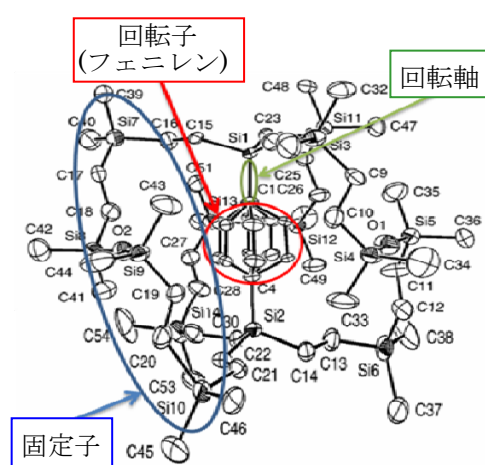


図 1 合成されたシラアルカンジヤイロスコープ状の分子性結晶の X 線構造。Si-O-Si 結合を含む 3 本の固定子からなる骨格によって保護されたフェニレン環 (中央の円で囲った部位) が 3 つの平衡配置間を回転する。

[1] N. Niitsu, M. Kikuchi, H. Ikeda, K. Yamazaki, M. Kanno, H. Kono, K. Mitsuke, M. Toda, K. Nakai, J. Chem. Phys. **136**, 164304 (2012).

[2] A. B. Marahatta, M. Kanno, K. Hoki, W. Setaka, S. Irle, and H. Kono, J. Phys. Chem. C **116**, 24845 (2012).

[3] H. Isobe, S. Hitosugi, T. Yamasaki, and R. Iizuka, Chemical Science **4**, 1293 (2013).

## 二次元 DMRG の開発と強相関系への応用

京大基研<sup>1</sup>、理研 AICS<sup>2</sup> 遠山貴己<sup>1</sup>、新城一矢<sup>1</sup>、曾田繁利<sup>2</sup>

密度行列繰り込み群法 (DMRG) は、低次元強相関電子系・スピン系の数値的研究手法のひとつとして知られており、とりわけ一次元系において多くの研究成果が報告されている。この手法を二次元系へ応用する試みも行われており、その代表的な手法のひとつとして、一次元系のアルゴリズムに長距離相互作用を導入する手法がある。しかしながら、この DMRG の二次元系への応用は、エンタングルメント・エントロピーの面積則からも知られる通り、巨大な計算コストが要求される。実際、二次元系への応用はそれほど多くなかったが、近年のコンピュータ技術の発展によりそれが現実的なものとなり、重要な研究成果もいくつか報告されている。

本研究では、京コンピュータを始めとする巨大な計算資源のもとで実行可能な二次元 DMRG のアルゴリズム開発を行った。特に、超並列計算機を念頭に、超並列二次元 DMRG の開発を行った。DMRG の Sweeping のプロセスに対する並列手法を独自に開発し (図参照)、プログラムに組み込んだ結果、高い並列化効率を示すことがわかった。その結果、京コンピュータでは、DMRG の打ち切り次数が数万のオーダーの計算が可能となっており、高精度の二次元強相関電子系・スピン系の計算が期待できる。

強相関系への応用として、現在、(1) Heisenberg 型相互作用と、スピン・軌道相互作用に起源を持つ Kitaev 型相互作用を持つハニカム格子上的量子スピン系の基底状態、(2) 三角格子ハバード模型の金属・絶縁体転移の研究を行っている。(1)では、第三近接までの反強磁性型 Heisenberg 相互作用と最近接 Kitaev 相互作用を含む模型に対する基底状態の相図を作成し、古典スピンによる同じ模型の相図との比較を行っている。そして、 $\text{Na}_2\text{IrO}_3$  で報告されているジグザグ型スピン構造が出現するパラメータ領域を明らかにしてきた。(2)では、同一サイト内クーロン相互作用  $U$  を変化させながら電子の二重占有数を計算し、金属から絶縁体への変化が起こる  $U$  の値の決定や、電子のホッピング異方性を加えたときにその値がどのように変化するか検討している。これは、三角格子構造を持つ有機物質のスピン液体状態に理解に寄与すると期待される。

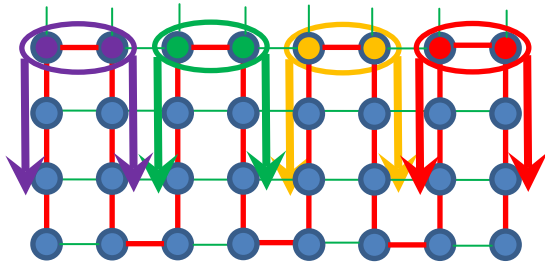


図 二次元 DMRG の sweeping に対する並列化のイメージ図。青丸は格子点を示す。通常の二次元 DMRG では、格子点を結ぶ赤線に沿って一次元型 sweeping を行う。並列化 sweeping では、赤線をいくつかの区間に分けてそれぞれ sweeping を行う。

## SU(N) ハイゼンベルグモデルで脱閉じ込め転移はあるのか？

京大情報<sup>1</sup>, 兵庫県大工<sup>2</sup>, 東大物性研<sup>3</sup>, RIST<sup>4</sup>, Fudan Univ. (China)<sup>5</sup>  
原田健自<sup>1</sup>, 鈴木隆史<sup>2</sup>, 大久保毅<sup>3</sup>, 松尾春彦<sup>4</sup>, Jie Lou<sup>5</sup>, 渡辺宙志<sup>3</sup>, 藤堂眞治<sup>3</sup>, 川島直輝<sup>3</sup>

脱閉じ込め転移[1]では、驚くべき事に、臨界点を挟んだ両相で異なる対称性が自発的に破れ、且つ、臨界点でのみ両方の対称性が回復している。一方、従来の良く知られている臨界現象は、臨界点を挟んで1つの対称性が自発的に破れる現象として考えられている（これをランダウ・ギンツブルグ・ウィルソンパラダイムと呼ぶ）。従って、脱閉じ込め転移は従来のパラダイムを超えた新しいタイプの量子臨界現象の一つである。

SU(N)ハイゼンベルグモデルは脱閉じ込め転移を起こすミニマムモデルではないかと考えられており、多くの研究が活発に行われている。我々もSU(N)ハイゼンベルグモデルを中心とした量子モンテカルロ法を用いた研究を行ってきた。

一般的に、正方格子や蜂の巣格子上のSU(N)ハイゼンベルグモデル（J項のみモデル）では、ネール秩序等のSU(N)対称性が自発的に破れた秩序が基底状態に現れる。一方でプラケット型相互作用（Q項と呼ばれる）を付加すると、強く相関したスピン対が格子上に規則的に並んだValence Bond Solid 秩序が低温で出現することが知られている。従って、絶対零度では、SU(N)対称性と空間対称性が各々破れた2つの秩序相の間に、量子相転移がおこると考えられている。このモデルはSU(N) JQ モデル[2]と呼ばれ、脱閉じ込め転移研究の中心的モデルとして多くの先行研究が行われてきたが、脱閉じ込め転移の存在に関してもまだ決着が着いていない。

我々はSU(N) JQ モデル（N=2、3、4）の転移点近傍の大規模な量子モンテカルロシミュレーションを行った。その結果、（1）格子の空間対称性を超えた脱閉じ込め転移特有の普遍的振る舞いを確認する一方で、（2）システムサイズの増加と共に、臨界性を仮定して評価した臨界指数（特に相関長の発散を記述する $\nu$ ）が1次転移（非臨界的転移）の方に系統的にシフトしていく事も発見した。これらの結果は今後の脱閉じ込め転移の研究に多くの指針を与えるものである[3]。

文献

- [1] T. Senthil, A. Vishwanath, L. Balents, S. Sachdev, and M. Fisher, *Science* **303**, 1490 (2004).
- [2] A. Sandvik, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 227202 (2007).
- [3] K. Harada, T. Suzuki, T. Okubo, H. Matsuo, J. Lou, H. Watanabe, S. Todo, and N. Kawashima, arXiv:1307.0501.

## 多変数変分モンテカルロ法を用いたハバード模型における高温超伝導機構の解析

東大院工 三澤 貴宏, 今田 正俊

最近接のホッピング  $t$  とオンサイトのクーロン相互作用  $U$  のみを考慮した、正方格子上的ハバード模型は銅酸化物における高温超伝導を記述する最も基本的な模型の一つである。しかしながら、長年の精力的な研究にも関わらず[1-4]、ハバード模型における高温超伝導の存在およびその起源についてはいまだ完全な決着はついていない。今回の研究では、ドーブしたハバード模型における超伝導の発現可能性及びその機構を明らかにするために、我々は大規模かつ高精度の多変数変分モンテカルロ計算を実行した[5]。我々が用いた変分モンテカルロ法の大きな特徴としては一体波動関数として一般化されたペアリング波動関数を採用していることである[6]。このペアリング波動関数が含む多数の変分パラメータを適切に調節することによって、反強磁性絶縁体及び金属、さらには異方的超伝導を対等に取り扱うことができる。相関因子としては、グッツヴィラー、長距離ジャストロー、ダブルン-ホロン束縛因子を導入した。また、系がもつ対称性を回復させるために、スピン及び運動量に関する量子数射影を行った。厳密対角化及び量子モンテカルロ法などの結果との比較から、この変分モンテカルロ法が数値的に厳密な結果をよく再現できることを確認している[5,6]。

この多変数変分モンテカルロ法を用いてドーブしたハバード模型を解析したところ、強相関領域( $U/t > 6$ )でポテンシャルエネルギーの利得(二重占有度の減少)によって  $d$  波の超伝導がハーフフィリング近傍で安定化することを明らかにした。しかしながら、このハーフフィリング近傍で実現している超伝導のほとんどが相分離によって覆い隠されてしまうことを明らかにした。この超伝導はオフサイトクーロン斥力にも弱く、 $U$  の 1/10 程度の最近接の斥力  $V$  で、相分離の領域の縮小とともに、超伝導がほとんど消失してしまった。この結果は超伝導発現と相分離の近接効果として現れる電荷揺らぎの増大が密接に関わっていることを強く示唆している。その一方で、最近接の反強磁性相互作用  $J$  は相分離領域を広げ、それと同時に超伝導の領域も広げることを見出した。さらに、これらのサイト間の相互作用の  $V$  と  $J$  の適切な組み合わせのもとで、相分離に覆い隠されない超伝導が広い領域で発現することを見出した。この結果は、 $V$  及び  $J$  といった従来の理論計算では簡単化のために無視されることの多かったサイト間の相互作用が、現実物質の高温超伝導を発現させるのに重要な役割を果たしていることを示している。

### 参考文献

- [1] N. Furukawa and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 61, 3331 (1992).
- [2] T. Aimi and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 76, 113708 (2007).
- [3] H. Yokoyama et al. J. Phys. Soc. Jpn 73, 1119(2004).
- [4] D. Baeriswyl et al. New J. Phys. 11 075010 (2009).
- [5] T. Misawa and M. Imada, arXiv:1306.1434.
- [6] D. Tahara and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 77, 114701 (2008).

## 新奇量子相の実現・観測へむけた電子状態に基づく理論的予測 -スピン軌道相互作用と電子相関が生み出すトポロジカル量子相

東大院工 山地洋平、今田正俊

より高い転移温度を示す高温超伝導体やスピントロニクス等の舞台を提供する高機能な物質群を理論的に予測することは理論的・数値的研究の大きな目標の一つである。本発表では、理論的物質設計の実現に向けた試みの一つとして、スピン軌道相互作用と電子間クーロン相互作用が新奇量子相を生み出すと期待されているイリジウム酸化物をターゲットとした研究を紹介する。

近年遷移金属元素イリジウムの酸化物において、スピン軌道相互作用と電子間クーロン相互作用の協奏が、トポロジカルな量子相を発現する可能性が相次いで予言されている[1,2]。その一つに、可解模型の解として導かれたスピン液体相が、イリジウム酸化物  $A_2\text{IrO}_3$  ( $A=\text{Li,Na}$ ) の基底状態となる可能性[1]がある。このスピン液体相は、磁性を示す絶縁体としては希有な、基底状態において自発的対称性の破れを示さない量子液体状態である。また、パイロクロア格子イリジウム酸化物  $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ( $R$ :希土類元素) の磁性相[3]では、ワイル半金属[2]と呼ばれる質量ゼロの『ニュートリノ』が低エネルギー物性を担うゼロギャップ半導体相の実現が予言され、とくに注目を集めている。しかし残念ながら、いずれの量子相も実現あるいは直接的な実験的観測には至っていない。

本発表では、イリジウム酸化物で期待されているこれら二つの新奇量子相、スピン液体とワイル電子を、いかに現実の物質群で実現、あるいは観測するかについての理論的指針を示す。ハニカム格子イリジウム酸化物  $\text{Na}_2\text{IrO}_3$  の微視的な電子状態から出発し、その基底状態・有限温度における熱力学量の物質パラメータ依存性を、多体波動関数から数値的に求め物質設計指針を与える[4]。また、パイロクロア格子イリジウム酸化物  $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ( $R$ :希土類元素) において、磁壁近傍にワイル電子のもつ量子異常を反映したトポロジカルな 2 次元電子系が、ワイル電子の観測可能な痕跡として現れることを示す[5]。これらの研究は今後、京コンピュータの利用が不可欠となる 10TB 規模の多体波動関数に基づく高精度な物性予測や、高精度電子状態計算に基づく、磁壁を始めとする結晶中のメゾからマクロスケールにおよぶ機能性非一様構造の予測に対し、強い動機と出発点をあたえる。同時にこれら大規模数値計算の学術的意義を基礎づけるものである。

文献

- [1] J. Chaloupka, G. Jackeli and G. Khaliullin, Phys. Rev. Lett. **105**, 027204 (2010).
- [2] X. Wan, *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 205101 (2011).
- [3] D. Yanagishima and Y. Maeno, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 2880 (2001); K. Matsuhira, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 094701 (2011).
- [4] Y. Yamaji *et al.*, in preparation.
- [5] Y. Yamaji and M. Imada, arXiv:1306.2022.

# **CMSI 研究課題発表（第2部会）**

12月12日（木） 9：00～12：00

## 実空間密度汎関数法コード RSDFT の機能拡張

東大院工 岩田潤一

大規模系に対する第一原理シミュレーションの実現は、量子力学的効果を取り込み、ナノメートルサイズの系や周りの環境まで考慮した現実的モデルを扱うという多大な需要のある問題である。我々はこれまで京コンピュータに代表される超並列計算機に向け、密度汎関数法に基づく第一原理電子状態計算コード「RSDFT」の開発を行ってきた。従来の平面波基底を用いる計算コードとは異なり、RSDFT は実空間差分法を採用しているために、高速フーリエ変換がほとんど必要なく、高並列環境で高い性能を発揮するコードとなっている[1]。しかしながら現在の RSDFT は、局所密度近似 (LDA) および一般化密度勾配近似 (GGA) の範囲で基底状態の電子および原子構造という最も基本的な物性のみが扱えるだけのコードであり、熱的、電氣的、光学的性質や、LDA・GGA を越える精度の電子相関を扱うことなど、より広範な物性に関する第一原理シミュレーションを実デバイスサイズに匹敵する大規模系に対して実行していくためには、RSDFT をベースにさらなる計算機能の拡張を行うことが急務となっている。

本発表では、RSDFT をベースに Car-Parrinello 型の分子動力学法を実装した RSCPMD の概要と京コンピュータ上での性能評価についてお話する。また Gate-All-Around タイプの電界効果トランジスタのシミュレーションを想定した円筒型有効遮蔽媒質法の実装、さらに現在進行中の RSDFT の機能拡張に関するいくつかの話題についてご紹介する。

文献

[1] Y. Hasegawa, *et al.*, ; International Journal of High Performance Computing Applications, to be published.



## RSPACE を用いた電子構造・輸送特性シミュレーション

阪大工、JST さきがけ、小野倫也

我々のグループでは、独自に密度汎関数理論に基づく第一原理計算コード RSPACE[1]を開発している。このコードは、実空間差分法に基づいた数値計算アルゴリズムを採用しており、超並列計算機での優れたパフォーマンスに加え、従来の平面波を用いた計算方法では取り扱えなかった伝導特性計算も可能であるという特徴を持つ。本プロジェクトでは、開発した RSPACE を駆使し、SiC パワーデバイスデバイスのデザインを行う。

SiC デバイスは、パワーデバイスのなかでも、熱酸化により SiO<sub>2</sub> という安定な絶縁膜が作成可能であるということと従来の Si デバイス作成技術を応用しやすいという利点をもつ。しかし、熱酸化時できた SiC/SiO<sub>2</sub> 界面の界面欠陥が原因と考えられるキャリア移動度の低下[2]やゲート電圧の閾値不安定性[3]が、量産化へ向け解決すべき課題となっている。ここでは、RSPACE を用いて大規模伝導特性計算を行い、MOS 界面のキャリア移動度を低下させるキラ欠陥の特定と滅処理方法の提案を目的としている。

昨年は、SiC 表面の初期酸化過程のシミュレーションを行い、SiO<sub>2</sub> 膜形成に余剰となった SiC 基板の C 原子が CO 分子として放出されること、そして分子放出により SiC と SiO<sub>2</sub> の格子定数の違いによる界面ひずみを緩和することを示した。今年は、SiC/SiO<sub>2</sub> 界面の酸化過程とキャリア散乱の原因となる界面欠陥の電子状態を調べるため、TEM 観察データやバンドオフセットを活用し、界面残留秩序構造の探索を行った。その結果、SiO<sub>2</sub> 相で tridymite および quartz 構造が混じった界面原子構造が有力であることが分かった。また電子状態計算により、界面欠陥は 2 つの SiO<sub>2</sub> 相が交わる部分で形成され、滅処理によって導入された N 原子によって容易に終端化されることが明らかになった。

発表では、欠陥を持った界面の電子状態と伝導特性計算を用いた欠陥の散乱特性の評価方法について議論したい。

### 文献

- [1] K. Hirose, T. Ono, Y. Fujimoto, and S. Tsukamoto, *First-Principles Calculations in Real-Space Formalism, Electronic Configurations and Transport Properties of Nanostructures* (Imperial College, London, 2005).
- [2] D. Okamoto, H. Yano, K. Hirata, T. Hatayama, and T. Fuyuki, *IEEE Electron Device Letters* **31**, 710 (2010).
- [3] M.J. Marinella, D.K. Schroder, T. Isaacs-Smith, A.C. Ahyi, J.R. Williams, G.Y. Chung, J.W. Wan and M.J. Loboda, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 253508 (2007).

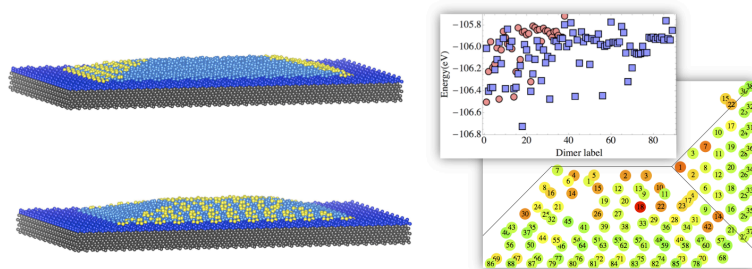
## オーダー $N$ 法 DFT プログラムの開発と半導体ナノ構造物質に対する応用

物質・材料研究機構<sup>1</sup>、東京理科大学<sup>2</sup>、University College London<sup>3</sup>

S. Arapan<sup>1</sup>、有田通朗<sup>1,2</sup>、D. R. Bowler<sup>3</sup>、宮崎剛<sup>1,2</sup>

我々は計算時間、必要なメモリ量が系の含む原子数  $N$  に比例するオーダー $N$ 法第一原理計算プログラム CONQUEST を開発してきた。「京」上での最適化、並列化を進めた結果、百万原子系に対しても構造最適化を含む第一原理計算が可能になっていることを最近示している。本講演では、まずプログラム開発として構造最適化と第一原理分子動力学を効率的に行うために最近 CONQUEST に導入した手法を紹介する。これにより、密度行列最適化計算に必要な回数を大きく減らすことに成功したこと、効率的な分子動力学が可能となったことを報告する。

また、応用計算例として Si 表面上に Ge をヘテロエピタキシー成長させた時に現れる 3 次元ナノ構造 (ハットクラスター) の成長過程に関するオーダー $N$ 法大規模計算による研究を報告する。この研究において、我々は 10 万原子を越える系に対しても構造最適化計算に成功している。ハットクラスターはある成長条件下で幅を変えずに長さだけを増加させて成長することが実験結果として報告されている。本研究では最初に、ハットクラスターの構造モデルとして、約 2 万原子を含む横に長いハットクラスターの構造を求めた。計算の結果、高さによって Ge 間の平均距離が異なり、ストレス解放の程度が高さによって変わることを定量的に確認した。さらに、大小二つのファセット面上を Ge ダイマーが単一で吸着する際の多数の吸着位置に対して構造最適化計算を行い、吸着エネルギーの場所依存性を求めた。その結果、1) 頂点や尾根が特に安定、ファセット間の稜線も安定、2) 吸着位置が高い場合がより安定、3) 縦と横のファセット面上で大きな差は見られない、4) ファセット下部はぬれ面上よりも不安定、という結果が得られた。これらから、吸着ゲルマニウムはあるエネルギー障壁を越えた後はハットクラスターの上部に集まるという事が示唆される。さらに、吸着ゲルマニウムがテラス (不完全なファセット面) を形成する際の安定化エネルギーを小さなファセット面上の上部、下部、そして大きなファセット面上の上部から形成する場合について計算した。その結果、小さなファセット面上を上部から埋める場合が初期過程において安定であることが分かった。以上から、ハットクラスターの結晶成長は小さなファセット面の上部から始まると結論される。さらに、最近開始した、Si/Ge コアシェルナノワイヤの構造と電子状態に対する大規模第一原理計算による研究の現状も報告したい。



左図: Si(001)基盤上の Ge 3 次元ハットクラスター構造。3 次元島構造は 4 つのファセット面 (すべて {105} 面) から出来ている。左図上は、小さなファセット面上、左図下は、大きなファセット面上の吸着候補位置。縦 13nm、横 20nm、約 2 万原子 (19973 原子) を含んだ系。

右図: 吸着 Ge ダイマーのエネルギー。丸は小さなファセット上、四角は大きなファセット上の吸着位置に対するもの。右図下は、吸着 Ge のエネルギーの場所依存性。濃い点の方が薄い点より安定

## ベリー位相を用いた電気伝導率の計算

産業技術総合研究所 土田 英二

燃料電池やリチウム電池の電解質は通常エネルギーギャップを持ち、電子伝導性はない。従って荷電したイオンが電気伝導を担うことになるが、このような系において電気伝導率を第一原理分子動力学シミュレーションから計算する方法は未だ確立されていない。これは古典分子動力学法とは異なり、イオンの電荷が一定では無いこと、周期系に電場を加える方法が自明では無いこと、及び統計精度が厳しいという事情による。本講演ではベリー位相を用いて電気伝導率を効率良く計算する複数の方法 [1] について比較・検討する。

具体例として、小規模な熔融塩（144 原子系）について 2 ナノ秒（ $10^6$  ステップ）程度の第一原理 MD を行い、統計精度や実験値との比較について議論する。

文献

[1] 非平衡 MD の例として、Y-K. Choe, E. Tsuchida, and T. Ikeshoji, "First-principles molecular dynamics study on aqueous sulfuric acid solutions", J. Chem. Phys. 126, 154510 (2007).

## 第一原理電子状態計算ソフトウェア xTAPP の開発と一般公開

鳥取大工応数<sup>1</sup>、東大物性研<sup>2</sup>、東大院理<sup>3</sup> 吉本芳英<sup>1</sup>、吉澤香奈子<sup>2</sup>、山本良幸<sup>3</sup>、常行真司<sup>2,3</sup>

xTAPP[1]は平面波基底、ultrasoft 擬ポテンシャル、密度汎関数法の組み合わせでの第一原理電子状態計算を行うソフトウェアである。コードの歴史は PPSF(1983年、現筑波大学白石賢二氏)までさかのぼることができ、これを ultrasoft 擬ポテンシャルに対応させた TAPP(1990年、現慶応大学、山内淳氏)をへて、2000年ごろから吉本がハイブリッド並列化などについて発展させたものが xTAPP である。xTAPP は 2013年4月より GPL ver. 3 の元で一般公開されている。

この講演では、xTAPP の一般公開作業、xTAPP の最近の開発状況、入出力の可視化ソフト TAPIOCA の開発 (吉澤)、xTAPP と連携するソフトウェア (山本) について発表を行う。

xTAPP の一般公開においては、コードのこれまでの開発者に一般公開のメリット、狙いを説明し了承を得ている。また公開が不適切であったり、コードの今後の発展のためここで新規に書き直した方が良い部分については、新規に開発したコードで差し替えており、入力形式は刷新されている。また、第三者が独自の系をすぐに計算できるようにするために必要な擬ポテンシャルデータベース(H から Bi までの大部分)の整備を行ったが、この際、基礎的な物質について計算した格子定数、体積弾性率、凝集エネルギー、バンド図も提供している。

最近の開発状況については GPGPU による hybrid 密度汎関数汎関数の実装について報告する。Hybrid 汎関数の計算ではバンド×バンドの FFT による畳み込み計算がその kernel となっているが、これをブロック化することで GPGPU と CPU 間の低速なデータ転送の問題を緩和している。GPGPU としては AMD Radeon 6950 と NVIDIA Tesla C2070 の両方をそれぞれ OpenCL と CUDA によるプログラムで使用したが、双方のメモリバンド幅に大きな差がないため、ほぼ同じ性能が得られている。

可視化ソフト TAPIOCA (吉澤) は、xTAPP の入力データを GUI で作成し、また電荷密度やバンド図など計算結果を同時に可視化するソフトウェアである。吉本が提供したコードを元に基本セルをクラスタ化して拡張セルを作成する機能を含んでいる。また TAPIOCA は xTAPP の入力データだけではなく VASP[2,3]の物も扱うことができ、プログラムの相互乗り入れを支援できる。

xTAPP と連携するソフトウェア開発については、xTAPP で作成した波動関数を量子モンテカルロ計算ソフトウェア CASINO の試行波動関数のフォーマットへの変換ユーティリティ (山本) について報告する。

文献

[1] 吉本芳英、TAPP コンソーシアム [tapp@cms.phys.s.u-tokyo.ac.jp](mailto:tapp@cms.phys.s.u-tokyo.ac.jp).

[2] G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).

[3] G. Kresse and J. Furthmüller, Comput. Mater. Sci. **6**, 15 (1996).

## ナノ構造の電子状態から機械的性質までのマルチスケールシミュレーション

名工大院,<sup>1</sup> 豊田中研,<sup>2</sup> 東大物性研,<sup>3</sup> デンソー<sup>4</sup> 尾形修司,<sup>1</sup> 大庭伸子,<sup>2</sup> 河野貴久,<sup>3,1</sup> 田中宏一<sup>4,1</sup>

Li イオン電池等の実用デバイスの高性能化に関連して、ナノスケールで複雑な界面の、実際的な設定でのシミュレーションが強く期待されている。本課題では、DFT 計算では直接扱えない大規模な複雑界面について、DFT レベルの計算精度を全イオンに働く力に対してハイブリッド量子古典法を用いて実現しつつ、イオン輸送、化学反応、熱(フォノン)輸送等をシミュレートする。ハイブリッド量子古典法を用いると、QM/MM 法の適用が困難な稠密固体にも、精度を落とさずに適用できる。

本年は以下の項目について進展があった。

1. Li イオン電池のグラファイト負極と電解液との界面における固体電解質皮膜(SEI)に関連して、分割統治型の実空間グリッド DFT である DC-RGDFT コード[1]を用いた第一原理 MD シミュレーションを、SEI-電解液の界面を通じた Li イオン移動に関して 2,300 原子規模で 5.0 ps/run 程度、異なる設定で実行した。計算結果の温度依存性などから、電解液に 1mol/l の濃度で添加した塩(LiPF<sub>6</sub>)により、Li イオンの界面移動レートが 2 倍に上がることを発見した[2]。
2. DC-RGDFT を用いたハイブリッド量子古典コードを用いて、Li イオン電池のグラファイト負極内部の Li イオン群の拡散挙動に関するシミュレーションを実行中である。Li イオン群を囲むように上下の炭素シートが変形して形成された cage の中で個々の Li イオンが良く拡散する一方、Li イオン群の重心位置の拡散は、希薄極限での Li イオンの場合と同程度であること等が観察されている。
3. シリカ結晶およびガラス中での水反応に関するハイブリッド量子古典シミュレーションを実行中である。特にシリカガラス中においては、その"空隙"を個々の水分子が拡散して水分子同士が会合し、系の圧縮や変形により、水分子間でのプロトン移動を経て形成された OH 基が Si-O ボンドを切断すること等が観察されている。
4. パワー素子の電気絶縁性放熱材料中に混入させているセラミックスフィラーと高分子材料との界面を通じた熱伝導に関して、その界面結合剤添加による熱伝導度の増大率を、非平衡 MD シミュレーションを数 ns 行うことで求めた[3]。より実際的な界面をハイブリッド量子古典法で扱う場合は、DFT の計算量が多いため数 ns の時間は実現できない。個々のフォノン波束の界面透過率を同時並列に計算し、その熱統計平均からこれまでよりも格段に短い時間で熱伝導度を得る方法の検討を進めている。

[1] N. Ohba, S. Ogata, T. Kouno et al.: *Comp. Phys. Commun.* 183 (2012) 1664-1673.

[2] S. Ogata, N. Ohba, and T. Kouno: *J. Phys. Chem. C.* 117 (2013) 17960-17968.

[3] K. Tanaka, S. Ogata et al.: *J. Appl. Phys.* 114 (2013) 193512-1-8.

## ナノ構造体における光誘起電子ダイナミクス

分子研 信定克幸、野田真史

ナノ構造体の柔軟な電子構造や化学的性質の多様性を活かし、更には光との相互作用の自由度を取り込んだ量子デバイスは、従前の電子デバイスや光デバイスとは異なる光・電子機能性を併せ持った有望な次世代量子デバイスと考えられる。しかし、その機能発現のメカニズムは複雑であるために実験的研究も未だ試行錯誤の連続であり、ましてや理論的研究では、極端に単純化した理論モデル系を対象として、実在系とかけ離れた定性的議論をしているだけであり、光・電子機能性量子デバイス開発に資する基礎的知見は事実上得られていない。この現状を打破するためには、実在系に即したナノ構造体を対象としてその機能性発現のメカニズムを基礎的な観点から明らかにしつつ、その知見を踏まえた上で物質に任意の機能性を付加する計算科学的観点に立った指導原理を見出すことが必須である。

本研究課題では、光と物質が露に相互作用した結果生じる光・電子機能性を持った、従前のデバイスとは異なる次世代量子デバイスを理論的に設計することを最終目的とする。より具体的には、金属や半導体、有機分子で構成される高次構造を持った実在系ナノ構造体の実時間・実空間光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を行い、光・電子機能発現のメカニズムを根源から理解するとともに、光エネルギー伝搬、波長変換素子、高効率・広帯域光エネルギー変化デバイス（太陽電池・光触媒）等の光・電子機能を持つ新規量子デバイスを計算により提案し設計するための基礎理的知見を得ることを目指す。この目的達成のためには、第一に電子と電磁場の露なカップリングを取り扱う為のナノ光応答理論の開発、第二にその理論に基づく超並列大規模電子・電磁場ダイナミクス法プログラムの開発、第三に電子・電磁場ダイナミクス法を用いて数～数十 nm サイズ程度の実在系ナノ構造体における光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を実行しなければならない。既に第一、第二課題までは順調に進んでおり、プログラムの更なる超並列化と高速化を行うと同時に、実在系量子デバイス設計のプロダクトランにも着手し始めた。

計算手法としては、時間依存コーンシャム方程式を実空間グリッド上で差分法を使って直接解き、時間発展はテーラー展開を採用した。いずれも非常に簡便なアルゴリズムであり、一般的な量子化学計算やバンド計算で用いられる固有値対角化や高速フーリエ変換等の計算負荷が大きくかつ超並列化計算に必ずしも向いていないアルゴリズムが一切含まれていない。このため、非常に超並列化に向いており、現状で数～十数 nm 程度のナノ構造体の光励起電子ダイナミクスの計算が可能となっている。このサイズの光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を実行できるグループは世界的に見ても極めて少ない。この超並列プログラムは、GCEED(Grid-based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics)と称して開発を進めている[1]。

当日は、金属と半導体から構成されるコアシェル型ナノ構造体の光励起ダイナミクスや回折限界を超えた近接場光励起ダイナミクスの実例を紹介する。

文献

[1] M. Noda, K. Ishimura, K. Nobusada, K. Yabana, T. Boku; submitted to J. Comput. Phys.

## スラブ系の電子状態計算の開発と応用

金沢大学理工 齋藤峯雄、小田竜樹、石井史之

今後のデバイス応用に向けた材料開発において、異種材料界面や材料表面の原子構造及び電子構造を明らかにする必要がある。そのため、スラブ系の大規模第一原理計算の実行が必要である。とくに、スピントロニクス応用を考えた場合、スピン軌道相互作用(SOI)が、重要な役割を果たし、この相互作用を取り入れた計算を可能とするプログラムの開発や解析プログラムの開発が必要である。本研究では、擬原子局在基底を用いたプログラム OpenMX と平面波基底を用いたカー・パリネロ法プログラム CPVO による応用計算を行った。

極性ワイドギャップ半導体である ZnO は、圧電(ピエゾ)素子や光学素子としても有望である。また Mg を混入した MgZnO との界面を作ることにより良好な 2 次元電子系を創製することに成功している[1]。そこでこのような界面をスラブによりモデル化するため、ZnO の電子構造計算を実施した。スラブにてモデル化することで接合材料の計算科学的アプローチを行い易くする可能性があり、実際の実験条件を模倣した計算を導入し易くなると考えられる。計算は、密度汎関数法を用いて行った。ZnO 表面層と内部層に相当するスラブ内バンド図や状態密度を評価した。内部層においては、結晶のバンドギャップに相当するエネルギーギャップが存在していることを確認した。またウルツ鉱型構造を反映した電気分極を見出した。

また、ウルツ鉱型の ZnO は、そのスピントロニクス応用も注目されている。ウルツ鉱型結晶構造は反転対称性を有しないため、SOI を考慮したバンド構造は時間反転不変な  $k$  点を除いてはスピン分裂を生ずる。本研究では、相対論的第一原理電子状態計算によって、ZnO のスピン分裂と、逆格子空間(ブリルアンゾーン)におけるスピン分布を調べた。この系の価電子帯は、結晶場分裂により、エネルギーの高い  $\Gamma_5$  とエネルギーの低い  $\Gamma_1$  に分裂し、SOI により  $\Gamma_5$  は  $\Gamma_9$  と  $\Gamma_7$  に分裂する。GaN の場合とは異なり、 $\Gamma_7(j=1/2)$  は  $\Gamma_9(j=3/2)$  よりエネルギーが高く「負のスピン軌道結合」が見出されていた[2]。本研究から、 $\Gamma_5$  由来の  $\Gamma_7$  状態は、 $\Gamma_1$  由来の状態と同じ既約表現を持つため、この二つの状態は強く混成し、見かけ上、負のスピン軌道結合が生じる事が分かった。したがって、ZnO の価電子帯では、極めて強い SOI が生じている事が分かった。この価電子帯および伝導帯において、典型的なラシュバ型スピン分布が生ずることを見いだした。そして、基板による歪みを導入することによって、スピン分裂ならびにラシュバ型スピン分布である時計周り、半時計回りの反転が制御可能であることを示した。この基板によるラシュバ効果の制御に関する発見は、スピン電界効果トランジスタへの応用へと繋がるものである。

文献

[1] A. Tsukazaki et al., Nature Mater. 9, 889 (2010).

[2] L.C.L.Y. Voon et al., Phys. Rev. B 53, 10703 (1996).

# **CMSI 研究課題発表（第3部会）**

12月12日（木） 14：20～17：20



## 有機 EL 燐光材料分子の理論的設計とシミュレーション

大阪府大院理 小関史朗

【序】液晶ディスプレイに代わる次世代ディスプレイとして注目を集めてきた有機 EL ディスプレイは、価格、寿命および効率の問題により期待されたほど普及していない。今後の普及のためには、その技術開発には何らかの大きな変革が必要とされている。本研究シリーズでは、燐光を発する白金およびイリジウム錯体に着目し、燐光波長への配位子の効果および配位子への置換基導入の効果を理論的に研究し、変革をもたらす何らかの示唆を得ることを試みている。

【計算方法】基底状態および最低三重項状態の幾何学的構造を密度汎関数(DFT)法により最適化し、適切で実行可能な活性空間を用いた MCSCF 法により分子軌道を求めた。これらの分子軌道を用いて動的相関を考慮した Second-order configuration interaction 法により波動関数を構築し、それらを用いてスピン軌道相互作用行列を構築・対角化し、電子状態 (Spin-mixed (SM) states) を求めた。なお、relativistic electron core potentials (RECP)およびそれらに付随する基底関数を用いたため、スピン軌道相互作用の見積もりには Breit-Pauli Hamiltonian の一電子近似を用いた。これらの電子状態間の遷移モーメントを計算することにより、燐光スペクトルの波長と強度を予測した。

【結果と考察】イリジウム錯体：親分子として Ir(ppy)<sub>3</sub> を用い、配位子の置換、配位子への置換基の導入に伴う燐光スペクトルの波長および強度の変化を見積もった。塗布型プロセスによるデバイス作製を念頭におき、O<sup>^</sup>O 配位子導入の影響を考察した。イリジウム錯体では、より鮮明な青色燐光を発する錯体の提案・合成が期待されており、多々研究が進められている。現在までに最も有用であるとされているのは、フッ化物を導入した Ir(dfppy)<sub>2</sub>(pic)、いわゆる FIrpic であり、この材料相当あるいはそれ以上に有用な錯体の提案が強く望まれている。本研究では、Ir(ppy)<sub>3</sub> → Ir(ppy)<sub>2</sub>(dfppy) → Ir(ppy)(dfppy)<sub>2</sub> → Ir(dfppy)<sub>3</sub> → Ir(dfppy)<sub>2</sub>(pic)/Ir(dfppy)<sub>2</sub>(acac)のシリーズについて理論計算を行い、次の項目が燐光波長に与える影響について解析し、実験結果の解釈を試みた：1) フッ素基の効果、2) フッ素基位置、3) pic 配位子の効果、4) acac 配位子の効果。なお、Ir(C<sup>^</sup>N)<sub>2</sub>(C<sup>^</sup>N<sup>^</sup>)あるいは Ir(C<sup>^</sup>N)<sub>2</sub>(N<sup>^</sup>O)では4つの構造異性体、Ir(C<sup>^</sup>N)<sub>2</sub>(O<sup>^</sup>O)では3つの構造異性体が存在する。さらに光学異性体も存在するが、孤立系の分子軌道計算では相違が得られないので光学異性体は考察から除き、5) 構造異性体による燐光波長の変化も検討した。また、6) 他の置換基(CN, NO<sub>2</sub>, NH<sub>2</sub>, etc.)の効果についても検証中である。これらの結果をもとに適切な青色燐光材料分子の提案を行う。

白金錯体：親分子として Pt(thpy)<sub>2</sub>および Pt(ppy)<sub>2</sub>を用い、次の項目が燐光波長に与える影響について解析した：1) acac 配位子の効果、2) acac 配位子への MeO 基導入の効果、3) MeO 基の位置、4) thpy 配位子へのベンゼン環導入の効果、5) thpy 配位子と ppy 配位子の相違。これらの結果については論文報告の準備を進めている。

【文献】 [1] 分子科学討論会要旨 (1P117(2010), 3P111(2010), 2P111(2011), 4P109(2011)). 理論化学討論会要旨 (2P24(2012)). [2] T. Matsushita, T. Asada, S. Koseki, *J. Phys. Chem. A*, 2006, 110, 13295. [3] T. Matsushita, T. Asada, S. Koseki, *J. Phys. Chem. C*, 2007, 111, 6897. [4] S. Koseki, N. Kamata, T. Asada, S. Yagi, H. Nakazumi, T. Matsushita, *J. Phys. Chem. C*, 2013, 117, 5314. [5] Koseki, S.; Asada, T.; Matsushita, T. *J. Comput. Theoret. Nanoscience* 2009, 6, 1352–1360 など。

## ナノ・生体系の反応制御と化学反応ダイナミクス

早大先進理工<sup>1</sup>、九大先導研<sup>2</sup>、北大院理<sup>3</sup>、名大院理<sup>4</sup>、早大高等研<sup>5</sup>、分子研<sup>6</sup>  
中井浩巳<sup>1</sup>、吉澤一成<sup>2</sup>、武次徹也<sup>3</sup>、イレ・ステファン<sup>4</sup>、小林正人<sup>5</sup>、西澤宏晃<sup>1,6</sup>

我々は、電子状態理論計算によりナノスケールの反応系を化学的精度で取り扱うことを可能とし、この結果を精密に解析することによって、反応経路の探索や反応制御、反応場設計をインシリコで行うための学術的基盤の確立に向けて研究を進めてきた。本目的を達成するためのツールとして、これまでに、分割統治(DC)法[1,2]や密度汎関数強束縛(DFTB)理論[3]を完成させ、また Global Reaction Route Mapping (GRRM)プログラムと連携した研究を行ってきた。本講演では、特に DC 法および DC-DFTB 計算プログラムの「京」への実装状況をまとめ、これらを利用した応用計算の現状と展望について述べる。

DC 法は、大規模系の量子化学計算を系の大きさに対して線形の計算時間で実行可能とする線形スケールリング計算法の一つである。DC 法では、全系をいくつかの部分系に分割して計算を行い、その結果を組み合わせて系全体のプロパティを評価する。その特徴として、

- (1) 部分系の計算を分散することで高並列化が可能
- (2) フェルミ準位を使って全体を統一する仕組みにより、部分系の電子数を指定する必要がない
- (3) 平均場理論だけでなく、高精度な電子相関理論にも適用可能

といった点が挙げられる。また、エネルギー計算だけでなく、ダイナミクスの計算に必要な原子に働く力[4,5]や非線形光学応答物性[6]の計算にも適用してきた。

DC 法により、大規模系の高精度電子状態計算が可能となったが、その反応ダイナミクスを追うためには、非常に高い計算コストが必要となる。そこで最近、二電子積分の求積が不要な DFTB 理論と DC 法を組み合わせ、数万分子を含む巨大系のダイナミクスを追跡するためのプログラム「DC-DFTB-K」を開発している。このプログラムは、「京」での超並列計算を念頭に置き、西澤が中心となってフルクラッチで開発を進めている。プログラムの詳細は、西澤によるポスター発表を参照されたいが、水 40,000 分子系の 1 ステップの計算が「京」5000 ノードを利用して 0.7 秒以下、対ピーク実行効率 16%以上で実行できることを確認している。

現在、CO<sub>2</sub>の分離回収において CO<sub>2</sub>の固定に用いられるアミン溶液の反応メカニズムを、このプログラムを用いて詳細に解明することを目指している。発表では、この研究に対する現在の予備的検討についても言及したい。

[1] M. Kobayashi, H. Nakai; in *Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics* (Springer, 2011), pp. 97-127.

[2] M. Kobayashi, H. Nakai; *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **14**, 7626 (2012).

[3] M. Elstner *et al.*; *Phys. Rev. B*, **58**, 7260 (1998).

[4] M. Kobayashi *et al.*; *J. Chem. Phys.*, **134**, 034105 (2011).

[5] M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **138**, 044102 (2013).

[6] M. Kobayashi, T. Tsuma, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136**, 084108 (2012).

## 拡張アンサンブル法による生体分子の高次構造と機能の解明

名大 院理・物理<sup>1</sup>、院理・構造生物研<sup>2</sup>、院工・計算科学研<sup>3</sup>、計算機セ<sup>4</sup> 岡本祐幸<sup>1,2,3,4</sup>

多くの多自由度複雑系のシミュレーションにおいて共通の困難は、系に無数にエネルギー極小状態が存在するために、シミュレーションがそれらエネルギー極小状態に留まってしまい、誤った答えを出してしまうことである。我々は、この困難を克服するために、拡張アンサンブル法 (generalized-ensemble algorithms) と総称される手法を適用することを分子シミュレーションの分野で提唱し、多くの有効な拡張アンサンブル法を開発してきた (解説としては[1-5]などを参照されたい)。これによって、小蛋白質の自然の構造への折り畳みに成功するとともに、薬剤候補分子のターゲット蛋白質へのドッキングシミュレーションにも成功してきた。特に後者は新しい創薬手法を提案するものであり、大きな社会的インパクトが期待される。我々は最近、多次元・多変数拡張アンサンブル法の一般定式化に成功した[6]。

本講演では、我々の最新の拡張アンサンブルシミュレーションの結果を報告する。特に、レプリカ交換傘サンブル法と2次元レプリカ交換法による薬剤候補分子のターゲット蛋白質へのドッキングシミュレーション[7,8]、レプリカ交換法による膜タンパク質の立体構造予測シミュレーション[9]、密度汎関数法により量子効果を取り入れた拡張アンサンブル法によるマロンアルデヒドにおけるプロトン移動シミュレーション[10]などの結果を報告する。

文献

- [1] U.H.E. Hansmann and Y. Okamoto, *Curr. Opin. Struct. Biol.* **9**, 177-183 (1999).
- [2] A. Mitsutake, Y. Sugita, and Y. Okamoto, *Biopolymers* **60**, 96-123 (2001).
- [3] H. Okumura, S.G. Itoh, and Y. Okamoto, in *Practical Aspects of Computational Chemistry II*, J. Leszczynski and M.K. Shukla (eds.) (Springer, Dordrecht, 2012) pp. 69-101.
- [4] A. Mitsutake, Y. Mori, and Y. Okamoto, in *Biomolecular Simulations: Methods and Protocols*, L. Monticelli and E. Salonen (eds.) (Humana Press, New York, 2012) pp. 153-195.
- [5] 岡本祐幸、拡張アンサンブル法、「*計算科学講座*」第9巻「超多自由度系の最適化」第2章 (古橋武、笹井理生 編、共立出版、2013) pp. 119-241.
- [6] A. Mitsutake and Y. Okamoto, *J. Chem. Phys.* **130**, 214105 (14 pages) (2009).
- [7] H. Kokubo, T. Tanaka, and Y. Okamoto, *J. Chem. Theory Comput.* **9**, 4660-4671 (2013).
- [8] H. Kokubo, T. Tanaka, and Y. Okamoto, *J. Comput. Chem.* **34**, 2601-2614 (2013).
- [9] R. Urano and Y. Okamoto, in preparation.
- [10] Y. Mori and Y. Okamoto, *Phys. Rev. E* **87**, 023301 (4 pages) (2013).

## ポリモルフから生起する分子集団機能

京大化研<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup>、東レ<sup>3</sup> 松林伸幸<sup>1</sup>、水口朋子<sup>2</sup>、茂本勇<sup>3</sup>

本課題の目的は、熱ゆらぎ程度の強さの相互作用・相関によって生成されるソフトな自己組織化構造や分子集団の機能を、単一分子の性質や分子内・分子間相互作用から計算科学的に予測することである。溶液・ミセル・脂質膜・タンパク質・高分子非晶のような様々な種類のソフト分子集合系への物質結合を、拡張された意味での溶媒和として定式化し、エネルギー表示溶液理論と大規模分子動力学シミュレーションを組み合わせ、化学的個性を反映した全原子モデルでの自由エネルギー解析を行う。

1つの研究対象は、脂質膜とタンパク質の相互作用であり、フリッパーフロップ運動の経路に焦点を当てた自由エネルギー解析を行っている。脂質分子として dimyristoylphosphatidylcholine (DMPC) を用いて二重膜を構成し、タンパク質としては glycophorin A の膜貫通部分 (23 残基) を用いている。水は、あらわに取扱っている。タンパク質の配置として、膜貫通配置とともに、膜の法線方向に対して直角となる配置を、膜中心からの法線距離を 5 Å ごとに変えて検討している。各配置について、DMPC と水を混合溶媒と見なし、タンパク質を溶質とすることで、エネルギー表示法を適用し、溶媒和自由エネルギーを計算した。自由エネルギー計算の結果、膜貫通配置が最安定であり、さらに、膜の法線方向に対して直角となる配置では、法線距離が 15 Å 程度のとき、自由エネルギー安定化が起こることを見出している。この配置を取るとき、タンパク質が疎水コアの外部領域に存在することを示すものであり、その安定性の原因を探るために、溶媒和自由エネルギー値を DMPC からの寄与と水からの寄与に分割した。DMPC からの寄与は、法線距離への依存性が弱く、全溶媒和自由エネルギーの法線距離依存性は、水からの寄与によってもたらされることが分った。水とタンパク質の (引力的) 相互作用は、タンパク質が膜の外側にあり水に近いほど強くなるが、水による排除体積効果 (斥力的相互作用の主要部分) は、水の密度増加に伴い急増する。そこで、2つの相互作用の効果の拮抗により、膜の法線方向に対して直角となるとき、タンパク質は疎水コアの外部領域で安定化することが明らかになった。水との引力的および斥力的相互作用の拮抗機構は、脂質膜系での疎水小分子の場合の挙動と共通であり、さらに、水の気液界面や超臨界水でも共通であることが分っている。

さらに、高分子の吸水能を、自由エネルギー計算に基づいて検討している。ここでは、高分子運動の緩慢さによるサンプリング効率の低下の問題を解決するために、レプリカ交換法を用いるとともに、高分子鎖をセグメントの集合と捉え、溶質である水と溶媒と見なすセグメントの相互作用の分布関数を用いることで吸水の自由エネルギーを構成した。セグメントは、サイズが小さいので運動が早く、サンプリング効率が良い。疎水基のみからなる高分子から親水基を含むものまで、多様な高分子を検討した結果、自由エネルギー計算値の実験値との差は平均 0.5 kcal/mol であり、高分子系の全原子自由エネルギー計算が、実用的な精度と速度で可能であることが分った。

## フラグメント分子軌道法の開発と創薬への応用

神戸大学・システム情報 北浦和夫

私たちはタンパク質の丸ごと量子化学計算が可能なフラグメント分子軌道法[1]の開発と創薬研究への応用を目指した機能拡張を行っている。本年度は、方法論の開発として解析的2次微分と非制限 Hartree-Fock 法(FMO-UHF 法)の開発を行った。また、巨大生体分子の構造モデルの作成と FMO 計算のプリ・ポスト処理を効率化するために FMO 計算支援ソフトウェア (名称: FU)を開発した。FMO 法の創薬研究への応用として、インフルエンザウィルスのタンパク質 (ヘマグルチニン、HA)の阻害剤の分子設計に向けて、HA とリガンドの複合体の構造モデルの作成を開始した。

### 1. FMO 法の開発・機能拡張

- 1) 解析的2次微分: 完全解析的1次微分の開発に成功した成果を基に、解析的2次微分の開発を行った[2]。これにより、分子の振動解析や遷移状態の計算が可能になった。
- 2) FMO-UHF 法: 開殻系の電子状態理論として、FMO-ROHF、MCSCF 法がすでに開発済みであったが、より利便性が高い UHF 法[3]を開発した。

### 2. FMO 計算支援ソフトウェアの開発

数万原子からなる HA のような巨大タンパク質・タンパク質複合体の FMO 計算を行う際の最大の問題は、構造モデルを作成する困難である。創薬研究では一連の多数の構造モデルを作成する必要があり、これを効率化することが喫緊の課題であった。この状況を改善するために、グラフィカルユーザーインターフェース (GUI)を備えた FMO 計算支援ソフトウェア FU を開発した。これにより、HA3 量体 (PDBID:2WRE、多数の欠損原子・残基がある) の構造モデルの作成が1日程度でできるようになった。

### 3. ヘマグルチニン-リガンド複合体の構造モデルの作成

インフルエンザウィルスの表面タンパク質ヘマグルチニン (HA)は、宿主細胞表面の糖鎖を認識して結合する。これが感染の初期過程であり、HA を阻害する化合物はインフルエンザの治療薬の候補となる。私たちは、すでに、FMO 法によりヒト型とトリ型の HA とリガンドの結合様式の比較を行い、宿主変異にかかわる重要な分子間相互作用を明らかにした[4]。ここで得られた知見を活用して、すでに知られているいくつかの弱い HA 阻害剤[5]を元にして、より強い活性を持つ化合物を分子設計することを目指している。しかし、これらと HA との複合体の構造は未知であるため、構造を予測することから始めなければならない。HA は3量体で約2,400原子からなる巨大分子系であるため、構造モデルの作成を効率化する必要があった。先に述べた FU により、従来数週間を費やしていた構造モデルの作成が1日程度でできるようになり、今後、阻害剤分子設計研究を効率的に推進できる見通しがたった。

[1] K.Kitaura et al., Chem. Phys. Lett., 313, 701 (1999)

[2] H. Nakata et al., J. Chem. Phys. 137, 044110 (2012)

[3] H. Nakata et al., J. Chem. Phys. 138, 164103 (2013)

[4] T. Sawada et al., Glycoconjugate J. (2008), J. Am. Chem. Soc., 132, 16862 (2010)

[5] N. Sriwilaijaroen et al., Food Chem. 127, 1 (2011)

## 小児マヒウイルスの全原子分子動力学シミュレーション

名古屋大院工<sup>1</sup>、立命館大薬<sup>2</sup>、微生物化研<sup>3</sup>、大阪大蛋白研<sup>4</sup>  
安藤嘉倫<sup>1</sup>、吉井範行<sup>1</sup>、山田篤志<sup>1</sup>、藤本和士<sup>2</sup>、小嶋秀和<sup>1</sup>  
水谷圭佑<sup>1</sup>、中川敦史<sup>3</sup>、野本明男<sup>4</sup>、岡崎 進<sup>1</sup>

### 【MODYLAS】

高並列汎用分子動力学シミュレーションソフト MODYLAS[1]は、京コンピュータにおける超並列計算に対応するために、並列化効率を大幅に低下させる FFT を実質的に回避しながら、周期境界条件下にある分子集合体における長距離力に対して FMM を用いて高精度に計算できるペタフロップス級の MD 計算を実現した汎用プログラムである。京コンピュータ上で行った 65,536 ノード (524,288 コア) を用いた計算では、1,000 万原子系の MD 計算 1 ステップの実行を 5 ms で終える性能を有している。MODYLAS は、自由エネルギー計算をはじめとして分子シミュレーションに関わる様々な機能を備えており、京コンピュータ等を用いたナノ分野、バイオ分野における分子集団系の研究に用いることができる。本ソフトはすでに公開済みである[2]。

### 【カプシドの構造安定性】

平衡状態において、カプシドはその内外で水分子を交換する。水の移動速度は速い。つまり、約 20 マイクロ秒でカプシド内のすべての水分子を自発的に交換する。このことは、小児マヒウイルスは数千気圧にもものぼる圧力耐性を有する一方で、乾燥に対して容易に不活化するといったことをよく説明している。一方で、電解質は透過させない。つまり、カプシドは浸透膜として機能する。生理的条件下での電解質濃度において浸透圧はさほど高くはなく、カプシドの安定性に影響するほどではない。事実、真水中でウイルスは長時間活性を保つ。

カプシド内外の電解液の状態はさらに興味深い。カプシド内部と外部の電解液の圧力を密度—圧力検量線から評価すると、カプシド内の電解液圧力は負の値を示す。ピリアル定理から求めた圧力も負であり、密度の結果と定量的に良い対応を示した。負圧はバルクにおいては存在し得ないが、小さな空間であるカプシド内は負圧に保たれる。負の圧力は不均一な系、例えば植物の維管束やナノスケールの毛細管において現実に生成されることはよく知られているが、ある一定条件下でウイルスにおいてもそれが見られることは興味深い。負の圧力は熱力学的には不安定であることを意味しており、RNA を収容していない状態でのカプシドの不安定性の原因の一つとなっている。この圧力差によりカプシドは収縮し、これに拮抗する復元力を発生させ力学的釣り合いを保つ。

文献

[1] Y. Andoh et al., *J. Chem. Theory Comp.* **9**, 3201(2013).

[2] <http://www.modylas.org/>

## ポリオウイルスカプシドとレセプターCD155 との相互作用に関する 大規模全原子分子動力学計算

名大院工<sup>1</sup>、立命館大薬<sup>2</sup> 阪大蛋白研<sup>3</sup>、微生物化研<sup>4</sup>、水谷圭祐<sup>1</sup>、吉井範行<sup>1</sup>、山田篤志<sup>1</sup>、安藤嘉倫<sup>1</sup>、藤本和士<sup>2</sup>、小嶋秀和<sup>1</sup>、中川敦史<sup>3</sup>、野本明男<sup>4</sup>、岡崎進<sup>1</sup>

ポリオウイルスは4種類のタンパク質 VP1,VP2,VP3,VP4 および脂質であるスフィンゴシンがそれぞれ60個集まった正二十面体対称性のカプシドを持つ。ヒトへの感染の初期過程では、細胞表面上のレセプターがカプシド表面のキャニオンと呼ばれる窪みを認識する。レセプターに認識されたウイルスは脱殻を起こし、RNAを細胞内に放出して感染へと至る。レセプターCD155は膜貫通タンパク質のひとつで、N末端側から3つの細胞外ドメインD1、D2、D3と膜貫通ドメイン、細胞質内ドメインから構成されている。このうちポリオウイルスを認識するのはD1であり、D1とD2のみを切り出したもの(D1D2)だけでも感染の初期の状態を再現できる[1]。本研究ではポリオウイルスとレセプターとの相互作用を明らかにするために、ウイルスカプシドとD1D2からなる系の全原子をあらわに取り扱った分子動力学(MD)シミュレーションを行い、カプシド-レセプター間の結合に伴う自由エネルギープロフィールを求めることを試みた。

一辺46nmの立方体周期境界セル内にポリオウイルスカプシドおよびD1D2を、ウイルスカプシド重心とD1重心の距離が約20nmまたはそれ以下となるように配置した複数の系を用意した。溶媒には、リン酸緩衝生理食塩水濃度となるようなナトリウムイオン、塩化物イオン、カリウムイオンを含む水溶液を配置した。系の全原子数は約1020万原子である。タンパク質とイオンの力場にはCHARMM36 with CMAPを、水にはTIP3Pモデルをそれぞれ用いた。MD計算には独自開発した高並列汎用分子動力学シミュレーションソフトMODYLAS[2]を使用し、京コンピュータにおいて計算を実行した。圧力1atm、温度310.15Kとなるように制御したNPTアンサンブルにて、ポリオウイルス重心とD1の重心の距離を拘束しつつMD計算を行い、それらの重心間に働く平均力を個々の距離において算出した。

本講演では、計算によって得られたカプシド-レセプター間に働く平均力を示す。ウイルスがどの程度の距離においてどの程度の引力を受けつつ感染へと進んでいくのかについて、分子レベルからの知見を明らかにする。本研究は、ウイルス全体がレセプターと結合する現象を分子論的に取り扱った最初の例であり、ウイルス感染が計算科学の対象となりうることを明示したものとと言える。

文献

[1] P. Zhang, S. Mueller, M.C. Morais, C.M. Bator, V.D. Boeman, S. Hafenstein, E. Wimmer, and M.G. Rossmann; Proc. Natl. Acad. Sci., **105**, 18284 (2008).

[2] Y. Andoh, N. Yoshii, K. Fujimoto, K. Mizutani, H. Kojima, A. Yamada, S. Okazaki, K. Kawaguchi, H. Nagao, K. Iwahashi, F. Mizutani, K. Minami, S. Ichikawa, H. Komatsu, S. Ishizuki, Y. Takeda, and M. Fukushima; J. Chem. Theory Comput., **9**, 3201 (2013).

## 汎用分子動力学計算ソフト MODYLAS 開発の最近の進展

名大院工 安藤嘉倫

分子科学分野での幅広い計算対象を京コンピューター上で高速かつ高効率に計算できるよう、MODYLAS [1,2] 開発を進めてきた。取扱う計算系には次のような特徴がある。

- ・化学組成および構造の両面での多様性
- ・分子間の静電相互作用が支配的である
- ・従来分子動力学計算で対象としてきた系にくらべ大きな空間スケール
- ・系に長時間スケールのダイナミクスが含まれる

化学組成の多様性に対応するため CHARMM (with CMAP), AMBER/OPLS といった代表的な汎用ポテンシャルモデルを使用可能としている。これら汎用ポテンシャルは分子内相互作用、短距離 Lennard-Jones 相互作用、長距離静電相互作用から構成される。特に静電相互作用は現象の再現性を決める重要な因子のため厳密な計算が必要であり、標準的な PME (Particle Mesh Ewald) 法に加え高速多重極展開法 (FMM) を実装している。FMM を実装した理由は、演算量が  $O(N)$  であることに加え高並列時に並列性能を低下させる全体通信を含まず、数千ノード規模以上においても良好な並列性能が維持されると期待されたためである。また空間スケールの大きな系および長時間スケールのダイナミクスを扱うには 1 step あたりの計算時間を削減する必要がある。そのため通信の前後処理が極力発生しないデータ構造 (メタデータ構造) を独自に考案し、かつ 3D トーラスネットワークに最適化した通信方式を採用することで Tofu の性能を最大限に引き出したレーテンシー律速の通信コードを開発した。メタデータ法に従った通信の結果、座標および多極子データはメモリ上に連続に装填され、低キャッシュミス率の演算をも同時に実現される。MODYLAS は京コンピューターをフルノード規模使用した場合であっても高並列性能および高演算性能を維持する汎用分子動力学計算ソフトウェアである。

最近の進展として、基本セル形状をこれまで立方体に限定していたところ、直方体形状の基本セルも計算可能とした。一方向に長い基本セルは界面を扱った分子動力学計算においてしばしば用いられるため、この拡張により MODYLAS のより広い計算対象への応用が期待される。また併せて使用可能プロセス数についてこれまで  $2^n$  制限 (京で最大 65,536 ノード) があったところ、 $2^n \times 3^m$  のプロセス数も選択可能とした (京で最大 82,944 ノード)。京の全 82,944 ノードを使ったテスト計算においてプログラムの正常動作を確認した。その際には、通信最適化のため Tofu の物理ノード形状を rank-map-hostfile により通常の  $48 \times 54 \times 32$  から  $48 \times 48 \times 36$  へと変更した上で、論理プロセス形状を同じく  $48 \times 48 \times 36$  ( $2^4 3^1 \times 2^4 3^1 \times 2^2 3^2$ ) と指定して計算を実行した。今回の拡張に際して上述したメタデータ構造、コピーレスな通信ルーチン、および低キャッシュミス率の演算はそのまま維持されており、細部の最適化および性能評価を進めている。

文献

[1] Y. Andoh et al., *J. Chem. Theory Comput.*, **9**, 3201 (2013).

[2] <http://www.modylas.org/>



# CMSI 研究課題発表（第4部会）

12月13日（金） 9：00～12：00

## 3D-RISMによるKcsAチャンネル中のカチオン結合モード解析

九大院理<sup>1</sup> 吉田紀生<sup>1</sup>

カリウムチャンネルはバクテリアから人間に至るまで多くの生体内に広く存在しており、細胞膜内外のイオン濃度を調整する重要な役割を担っている。カリウムチャンネルは優れた選択性を有しており、細胞内外でナトリウムイオン ( $\text{Na}^+$ ) の濃度差が極めて大きい場合でもカリウムイオン ( $\text{K}^+$ ) のみを選択的に透過させることができる。この選択性は選択フィルタと呼ばれる部位によって作られていると考えられている。<sup>[1]</sup> 選択フィルタはチャンネル内で一段細くなっており、ここを通過するイオンはそれまで纏っていた水分子を脱がなければならない。この脱水和とチャンネル内のカルボニル酸素との結合による安定化の差によって、選択性が発現すると考えられてきた。

ところが、近年、チャンネル内に  $\text{Na}^+$  存在する可能性が実験によって指摘された。また、その実験を元にシミュレーションによる追試が行われ、 $\text{Na}^+$  と  $\text{K}^+$  ではチャンネル内でのイオンの結合様式（結合モード）が異なるであろうという仮説が立てられた。

我々のグループでは液体の統計力学理論である 3D-RISM<sup>[2]</sup> を用いて KcsA チャンネル内のイオン結合モードの解析を行った。3D-RISM 計算では、KcsA チャンネルを溶質として扱い、水およびイオンを溶媒として、チャンネル周りの溶媒（水・イオン）の分布確率で、イオンの結合モードを評価した。我々の結果から、 $\text{K}^+$  が選択フィルタ内の結合サイト S0, S1, S2, S3, S4 に強いピークを示すのに対し、 $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$  ではそれら結合サイトの中間点 S0.5, S1.5, S2.5, S3.5 の位置にピークを示すことが分かった。

S0~S4 ではカルボニル酸素 8 つの中心にイオンが結合した状態で有りこのサイトを“ケージサイト”と呼ぶ。一方、S0.5~S3.5 の半整数サイトはカルボニル酸素 4 つの中心にイオンが結合した状態である。このサイトを“プレーンサイト”と呼ぶ。

各状態でのイオンの水和状態を調べるために、イオン 1 つを溶質の一部として扱い、その周りの水分子の分布を解析した。この結果からイオンがケージサイトにあるときは水分子は直接イオンに配位しないが、プレーンサイトにあるときは二つの水分子（の酸素）が配位して合計 6 配位の状態になることが分かった。Figure 1 に模式図を示す。

この結合モードは実験およびシミュレーションによって仮定されたものと良く一致しており、この仮説を統計力学理論により立証することができた。

### 【文献】

[1] B. Hill, Ion channels of excitable membranes. 3rd edn. Sinauer Associates Inc., Sunderland, Mass, 2001.

[2] F. Hirata, Molecular Theory of Solvation. Kluwer, Dordrecht, 2003.

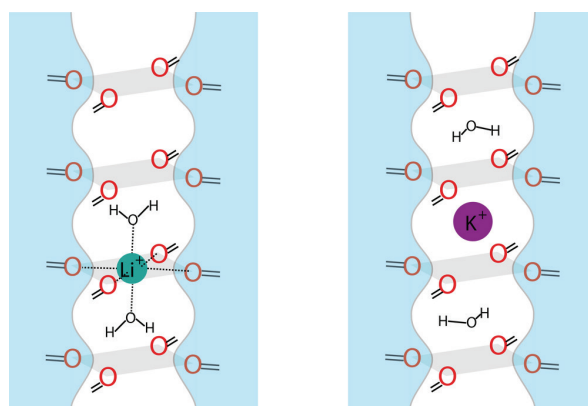


Figure 1. Illustrated picture of the binding of ion in SF. Red colored O denotes the backbone carbonyl.

## 太陽電池における光電変換の基礎過程の研究と 変換効率最適化・長寿命化にむけた大規模数値計算

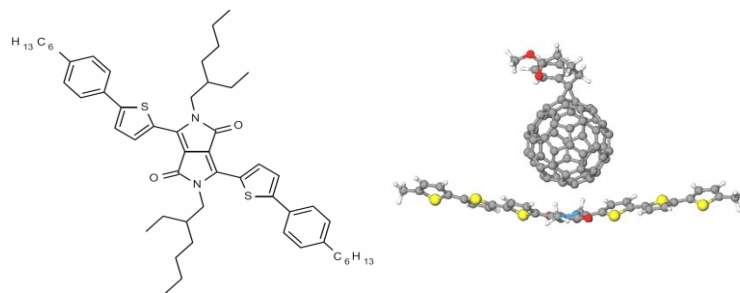
東大院工 山下晃一

本研究は、有機薄膜太陽電池における光エネルギー変換の高効率化を目指し、電荷対生成過程の初期過程であるドナー分子からアクセプター分子への電荷分離過程を高効率に起こす有機物材料を探索することを目的として行った。

有機系太陽電池では、まず①太陽光によって、②エキシトン（クーロン相互作用した電子-正孔対）が生成し、③有限の寿命で相界面を拡散し、④ドナー・アクセプター異種界面で電荷分離し、⑤電荷移動（キャリア輸送）される。光照射時に両端子を解放した場合の出力電圧を解放電圧  $V_{oc}$ 、短絡した場合の電流を短絡電流  $I_{sc}$ 、最大出力と  $V_{oc} \cdot J_{sc}$  の比を FF とすると、変換効率は  $V_{oc} \cdot J_{sc} \cdot FF$  で与えられる。単結晶シリコンでは Shockley-Queisser の熱力学的理論限界値 30% に迫るデータもあるが、現在、最も効率の高い有機系太陽電池でも 10% 以下である。このように有機系太陽電池の変換効率が低い原因として、まず有機物材料の誘電率が小さく、光吸収により生成した電子-正孔対がドナー・アクセプター界面へ拡散する過程で容易に再結合することが上げられる。また界面での電荷移動状態の再結合 (Geminate Recombination) や電荷分離後の自由な電子と正孔の再結合が電荷分離確率を下げる主要な素過程として考えられる。

具体的にアクセプター分子を PCMB とし、ドナー分子を種々の Diketopyrrolopyrrole 誘導体 [1] として、これらエキシトンの界面での再結合、電荷分離後の再結合といった光エネルギー変換効率を律する重要な素過程について、電子カップリングの量子化学計算と量子ダイナミクス計算 [2, 3] に基づく計算化学の観点から理解し、変換効率 IPCE を予測した結果について報告する。

図 Diketopyrrolopyrrole  
誘導体と PCMB との分子界面



また、最近 15% の変換効率を達成した有機無機ペロブスカイト [4, 5] の電子物性と光電荷移動の機構に関する理論的解析の結果について報告する。

### 文献

- [1] W. Sung, T. Yasuda, G. Watanabe, Y. S. Yang, C. Adachi, *Chem. Mater.*, **25**, 2549 (2013).
- [2] M. Fujii and K. Yamashita, *Chem. Phys. Lett.*, **514**, 146-150 (2011).
- [3] S. Manzhos, H. Segawa and K. Yamashita, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 1141-1147 (2013).
- [4] M. M. Lee *et al.* *Science* **338**, 643 (2012).
- [5] J. H. Heo *et al.* *Nature Photon.*, **7**, 486 (2013).

# 第一原理経路積分インスタントン法の開発と プロトン移動過程への応用

分子研<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup> 河津励<sup>1,2</sup>、三浦伸一<sup>2</sup>

地球上の生物のエネルギー源の大部分は植物などによる光合成と呼ばれる光-化学物質エネルギー変換プロセスであり、その産物を利用するその他の生き物は呼吸と呼ばれる化学物質-電気エネルギー変換プロセスを利用している。これらに共通する重要な素過程は電子移動とプロトン移動である。一方、近年注目されている燃料電池もまた同様のプロセスがベースになっている。このプロトン移動ではトンネル効果が重要な役割を果たすことが知られている。また、燃料電池で用いる水素の貯蔵に関しても、水素のトンネル効果が無視できない可能性がある。

プロトンが関与するトンネル現象はトンネル分裂としてマイクロ波吸収などで直接観測されている。そのようなトンネル分裂を計算する手法の一つとして、半古典論ベースの経路積分インスタントン法に基づく方法[1]が知られている。一方、厳密計算のための方法として、経路積分分子動力学法や経路積分モンテカルロ法が知られている。経路積分法では、分配関数は虚時間作用が指数関数の肩にのった量の汎関数積分として表される。この作用を虚時間軸に沿って離散化したものが上記の分子動力学法・モンテカルロ法でのサンプリングの対象となる。この離散化した経路積分表示を用いてインスタントン法を実装する手法が Althorpe らによって開発された[2]。この表示を採用すると経路積分分子動力学法等で開発されてきたライブラリを有効に活用することができるというメリットがある。我々は彼らの方法をベースに、計算精度を向上し、かつ計算コストを削減する手法を検討し、その手法を実装するプログラムの開発を行っている[3, 4]。

インスタントン法では、虚時間作用を停留する“古典解”と、そのまわりの二次のゆらぎまでを考慮し、経路に関する汎関数積分を実行する。ゆらぎの部分の計算は解析的に実行できるために、シミュレーションの観点からは、安定点を結ぶ“古典経路”の探索が重要なポイントとなる。本研究では離散化した虚時間作用を直接数値的に最適化することにより求めている。また、トンネル分裂は小さな量であるために、この量を正確に求めるためには精度の高いポテンシャル面の記述が重要である。本研究では、量子化学計算等により予めポテンシャル関数を作るかわりに、オンザフライで電子状態計算を行い、インスタントン計算を実施する手法を開発した[4]。

まずはベンチマークとして、アンモニア分子の傘反転トンネル分裂を計算した。アンモニア傘反転はいくつかの同位体効果が実験的に調べられており、それらの計算を行い、Table 1 のように実験値とよく相関する結果が得られた。プロトン移動への適用例は、当日報告する。

**Table 1.** Isotope effect of ammonia flips ( $\text{cm}^{-1}$ ).

|                    | Calc. | Ration<br>to $\text{NH}_3$ | Exp. | Ration<br>to $\text{NH}_3$ |
|--------------------|-------|----------------------------|------|----------------------------|
| $\text{NH}_3$      | 0.70  | 1.00                       | 0.79 | 1.00                       |
| $\text{ND}_3$      | 0.044 | 0.06                       | 0.05 | 0.06                       |
| $^{15}\text{NH}_3$ | 0.67  | 0.96                       | 0.75 | 0.95                       |

文献

- [1] G. V. Mil'nikov, H. Nakamura, *J. Chem. Phys.* 2001, 115, 6881.
- [2] J. O. Richardson, S. C. Althorpe, *J. Chem. Phys.* 2011, 134, 054109.
- [3] T. Kawatsu, S. Miura, *J. Phys. Conf. Ser.* 2013, 454, 012030.
- [4] In preparation.

## メタンハイドレートの分解過程の分子動力学計算

岡山大学大学院自然科学研究科 矢ヶ崎琢磨、松本正和、田中秀樹

メタンハイドレートは水のかご状構造にメタン分子を取り込んだ固体であり、低温・高圧な環境で安定に存在する[1]。近年、日本近海の海底に存在するメタンハイドレートが天然ガス資源として非常に大きな注目を集めている。また、海底のメタンハイドレートの分解は、地球温暖化と強い関係があることが示唆されている。これらに加えて、メタンや水素のガスハイドレートはエネルギーの安全な保存や輸送という目的でも注目を集めている。ガスハイドレートの分解は、科学的にも産業的にも重要な過程の一つである。

我々は京コンピュータを用いて、水中のメタンハイドレート分解の大規模分子動力学計算を行った。系は $9 \times 9 \times 9$ のユニットセルからなるメタンハイドレート(33534 水分子+5832 メタン分子)と、その周囲の水 85144 分子で構成される。水とメタンの相互作用にはそれぞれ TIP4P/2005 モデルと OPLS モデルを用いた。分子動力学計算は名古屋大学岡崎グループにより開発された MODYLAS パッケージ[2]を用いて行った。

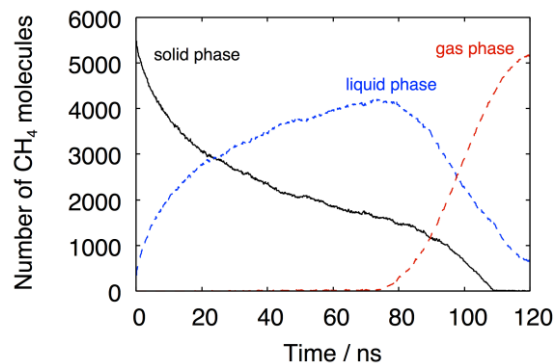
初めに 220 K で構造を緩和させ、その後目的の温度まで急激に上昇させてハイドレートの分解過程を追跡した。温度上昇によりハイドレートは分解を始め、それによりメタン分子が周囲の液相に放出される。分解が進むと液相はメタン過飽和状態になる。核生成過程を経てひとたびメタンの泡が生じると、その泡が周囲の液相中のメタン分子を吸い上げ、液相のメタン濃度が大きく減少する。我々は、この泡の生成によるメタン濃度減少がハイドレートの分解を促進することを見出した。これは、メタン濃度の減少により、ハイドレートケージの再構成が抑制されるためである。この効果は過熱度の低い低温での分解過程で特に重要である。我々はまた、分解速度がハイドレートのサイズに強く依存し、これが Gibbs-Thomson 効果でよく説明されることを見出した。

本研究の結果は、水中のガスハイドレートの分解速度を熱供給以外の方法でコントロールできることを示している。すなわち、添加物などにより泡の生成を促進することでハイドレートの分解を促進することができるということである。この機構は、海底のメタンハイドレートの効率的な回収や、ガスハイドレートによるエネルギー保存・輸送などの実用面で役立つ可能性がある。

文献

[1] E. D. Sloan and C. Koh, *Clathrate Hydrates of Natural Gases*; CRC press, Boca Raton, FL, 2008.

[2] Y. Andoh et al., *J. Chem. Theory Comput.* **9**, 3201 (2013).



ハイドレート、液相、気相のそれぞれに含まれるメタン分子数の時間変化。292 K。

# Enhancement of the Catalytic Activity of Nanoparticles by the Thermal Motion of a Polar Solvent

Nicéphore Bonnet,<sup>1,2</sup> Osamu Sugino,<sup>1</sup> Minoru Otani<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, Kashiwa 277-8581, Japan*

<sup>2</sup>*Nanosystem Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba 305-8568, Japan*

The success of electrochemical devices for energy applications relies heavily on the development of efficient, stable, and cheap nanocatalysts, which has motivated intense research to elucidate what controls the catalytic activity at the atomistic level. Notably, the effect of size reduction on the intrinsic activity of nanoparticles is hard to predict in view of the complex and often conflicting behaviors of different contributions to the catalytic activity at the nanoscale. It is therefore important to be able to analyze the different factors and assess the magnitude of their contributions.

In this work, we discuss the enhancement of the catalytic activity of nanostructures under the effect of electrode potential fluctuations. Extending the insights of Krischer *et al.* [1], we propose that the potential of a nanoparticle in solution fluctuates in response to the thermal motion of the polar solvent, and these potential fluctuations may serve to enhance the catalytic activity with respect to a macroelectrode. We derive a simple estimate of the enhancement effect at a semi-phenomenological level by combining the empirical Tafel law and microscopic insights of the Marcus theory. For nanoparticles in the 3-5 nm range, we obtain an approximate 10-fold enhancement factor of the catalytic current compared to a macroelectrode.

This dynamical enhancement effect is characteristic of the nanoscale. It is thus particularly relevant in connexion with the intense development of spectroscopic and surface science probing techniques with high spatial, temporal, and spectral resolution, which will greatly advance the characterization of the dynamical behavior of nanostructures so as to optimize them for electrochemical applications.

[1] V. García-Morales and K. Krischer, *J. Chem. Phys.* 134, 244512 (2011).

## ステップ構造を持つ Pt(322) 表面における水バイレイヤー中の OH 吸着及び水の解離 ～第一原理分子動力学シミュレーション～

阪大院工<sup>1</sup>、物材機構<sup>2</sup> 木崎栄年<sup>1</sup>、稲垣耕司<sup>1</sup>、濱田幾太郎<sup>2</sup>、森川良忠<sup>1</sup>

燃料電池の Pt 表面での酸素還元反応 (ORR) において、ステップを持つ表面で平坦な Pt(111) 表面よりも格段に反応性が高くなることが報告されている[1、2]。本研究では第一原理シミュレーションを用いて ORR と Pt ステップ構造との関係を調べた。

まずステップ構造を持つ Pt スラブ表面での酸素還元反応の分子動力学計算を行う前段階として Pt 原子 3 層からなり、真空層 $\sim 12 \text{ \AA}$  をもつ Pt(322)- $3 \times \sqrt{17}$  スラブ構造を用意し、その表面上での水のバイレイヤー及びヒドロキシル基の振る舞いを第一原理計算コード STATE により調べた。交換相関汎関数として PBE-GGA を使い、エネルギーカットオフを 25Ry、電荷密度に関するカットオフを 225Ry とした。k 点メッシュを  $2 \times 2 \times 1$  とし、すべての原子に働く力が  $1 \times 10^{-3} \text{ Ha/a.u.}$  以下になるまで最適化した。また、双極子補正の効果は Effective screening medium 法を用いて導入された。Pt 表面上の水バイレイヤーに OH 分子を導入したとき、その吸着エネルギーを  $E_{\text{ads}} = E(((\text{H}_2\text{O})_{n-1} + \text{OH})/\text{metal}) - \{E((\text{H}_2\text{O})_n/\text{metal}) - E(\text{H}_2)/2\}$  と定義する。水バイレイヤー中に 2 つ目の OH 分子を導入したときの吸着エネルギーを  $E_{\text{ads}} = E(((\text{H}_2\text{O})_{n-2} + 2\text{OH})/\text{metal}) - \{E((\text{H}_2\text{O})_{n-1} + \text{OH})/\text{metal}) - E(\text{H}_2)/2\}$  とし、最後に 3 つ目の OH 分子を導入したとき、 $E_{\text{ads}} = E(((\text{H}_2\text{O})_{n-3} + 3\text{OH})/\text{metal}) - \{E((\text{H}_2\text{O})_{n-2} + 2\text{OH})/\text{metal}) - E(\text{H}_2)/2\}$  と定義する。吸着サイトとして Pt スラブモデルの上側ステップと下側ステップそれぞれに対してブリッジサイトとオントップサイトを考慮し、テラス面に対しては FCC ホローサイト、HCP ホローサイト、オントップサイトを考慮した。その結果、1 つ目の OH の場合、水バイレイヤーを保ちながら Pt 上側ステップのオントップサイトに吸着する傾向が得られた。さらに OH 分子を導入すると、ステップ上とテラス上での吸着エネルギーは同程度となった。最後にもう一つ OH 分子を導入すると、Pt 上側ステップ上で水素結合ネットワークを形成しながらオントップサイトに吸着する傾向が見られた。

次に Pt(111)- $3 \times 2\sqrt{3}$  平坦表面と Pt(322)- $3 \times \sqrt{17}$  スラブ表面上での水の挙動を第一原理分子動力学シミュレーションで調査した。その結果、Pt(322)表面のステップ構造上のブリッジサイトで水の解離が起こった(図 1)。この結果は Pt(322)ステップ表面で様々な吸着サイトにおける OH 分子のみの吸着エネルギーから得られた最安定構造と一致した。

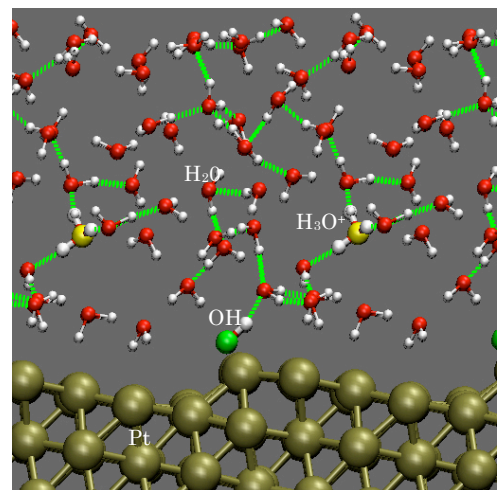


図. 1. Pt(322)ステップ表面でのステップ構造上の水の解離。

文献

- [1] A. Kuzume *et al.*; J. Electroanal. Chem., **599**, 333 (2007).
- [2] A. Hitotsuyanagi *et al.*; Electrochim. Acta, **82**, 512 (2012).

## DFT-MD 自由エネルギー計算による リチウムイオン電池電解液・添加剤の還元反応解析

京大 ESICB<sup>1</sup>, 物材機構 MANA<sup>2</sup>, 富士フイルム<sup>3</sup>, JST さきがけ<sup>4</sup>  
袖山慶太郎<sup>1,2</sup>, 後瀉敬介<sup>1,3</sup>, 奥野幸洋<sup>1,3</sup>, 館山佳尚<sup>1,2,4</sup>

リチウムイオン二次電池では、初回充電時に負極/電解液界面で電解液の還元分解が起こり不動態被膜 (SEI) が形成される。SEI は Li イオン導電性を持つ一方で電子導電性を持たないため電解液の還元分解を抑制し、リチウムイオン二次電池は安定したサイクル特性を示すようになる。エチレンカーボネート (EC、図 1) 系の電解液に数 wt% のビニレンカーボネート (VC、図 1) を添加すると電池特性が向上することが知られており、その役割解明のため分子レベルでの還元分解反応の計算が実施されてきた ([1,2])。しかしこれらは、クラスターモデルによる計算で溶媒を頭に取り扱わないものや、溶媒を頭に取り扱ったとしてもエネルギーに基づく議論は行われていないものであった。そこで本研究では、頭に溶媒のダイナミクスを考慮した自由エネルギーに基づく平衡状態および反応自由エネルギー解析を行い、EC や VC の還元後の反応過程を明らかにし、SEI 形成における VC の役割について知見を得ることを目的とした。

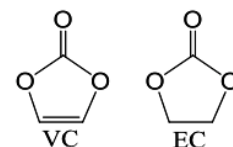


図 1 : VC および EC の分子構造

周期的境界条件を課した一辺  $15.24 \text{ \AA}^3$  の立方体のスーパーセルを用いた CPMD コードによる DFT 分子動力学計算を行った。k 点としては  $\Gamma$  点のみを用い、交換相関汎関数には PBE を用いた。平面波基底のエネルギーカットオフは  $90 \text{ Ry}$  に設定し、ダイナミクスについては Nose thermostat を用いて  $353 \text{ K}$  の NVT アンサンブルを取った。これらの計算条件を用いて、 $\text{Li}^+$  イオンを含む EC 単独系および VC が添加した EC/VC 系の 1 電子還元、2 電子還元およびラジカル攻撃反応の平衡構造計算を行った。更に主要な還元分解過程およびラジカル攻撃後の  $\text{CO}_2$  生成過程については Blue-moon ensemble 法を用いて化学反応自由エネルギー変化の計算も行った。

VC および EC の還元分解反応について検討した結果、EC からは 1 電子還元により開環反応が進行してアニオンラジカル ( $\text{o}_E\text{-EC}^-$ ) を生成し、また 2 電子還元により  $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{C}_2\text{H}_4$  や  $\text{CO}$  が生成した。一方、1 電子還元された VC については、文献[1]で報告されている開環反応よりも、 $\text{CO}$  脱離の反応が優位であることが分かった。続いて、還元反応により生成したラジカル種の後続反応としてラジカル種と EC、VC との反応を検討した。 $\text{o}_E\text{-EC}$  は EC とは反応しないが、 $\text{o}_E\text{-EC}$  や VC アニオンラジカルは VC と反応し、さらに分解して VC 添加系での特徴である  $\text{CO}_2$  が脱離することが分かった (図 2)。一方、VC の還元分解により生成したアニオンラジカルは EC や VC との反応が起こらず、反応性に乏しいことが分かった。本検討により得られたガス生成物 ( $\text{CO}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ) は、観測されている主な生成物 [3] と一致した。以上の結果から、VC の SEI 形成における本質的な役割は自身が還元分解されることではなく、EC ラジカル種を不動態化することで 1 電子還元で SEI 素材を形成できる点にあることが分かった[4]。

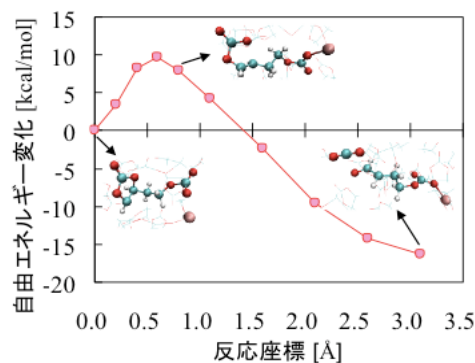


図 2. Blue-moon ensemble 法による EC ラジカルアニオンと VC の重合反応における自由エネルギー曲線

[1] Y. Wang, *et al.*; J. Am. Chem. Soc., **124**, 4408 (2002). [2] K. Leung, *et al.*; Phys. Chem. Chem. Phys., **12**, 6583 (2010). [3] H. Ota, *et al.*; J. Electrochem. Soc. **151**, A1659 (2004). [4] K. Ushirogata, K. Sodeyama, Y. Okuno, Y. Tateyama; J. Am. Chem. Soc., **135**, 11967 (2013).



## 非平衡量子伝導理論の展開：ナノエレクトロニクスから熱マネジメント材料へ

産総研 浅井美博、中村恒夫、Marius E. Bürkle

本特別支援課題では、発表者グループの一連の研究：①非平衡量子伝導理論それ自身の開拓研究、②その第一原理化、③それらを用いた精密実験計測との協力を通じた検証研究と機構解明研究、④これらの成果を踏まえた材料探索スクリーニング研究の内、②と③の研究の一部（高速化、大規模計算）を実施している。①～③の研究の概要を以下に示す。

表題の中の【ナノエレクトロニクス】に関しては精密な実験計測研究が著しく進展しており検証研究の良いパートナーとなり得る「分子エレクトロニクス」分野及び、high-K材料を用いた抵抗変化型ランダム・アクセス・メモリ（ReRAM）をターゲットとした研究を行っている。前者の研究では分子ワイヤーや原子ワイヤーのブレーク・ジャンクションにおける量子弾道電流に対する電子・フォノン散乱効果、特にその非弾性成分の電圧特性及びその材料依存性[1]や、電子・フォノン散乱とフォノン熱伝導による局所加熱と熱散逸過程[2]、整流機構とそれに対する電子相関効果[3]などに関連した理論計算を行い、計測実験との検証研究や機構解明研究等が今まで成功裡に行われてきた[4]。ReRAMの研究では、メモリ・オン/メモリ・オフ比の低電圧領域から立ち上がり性能を向上する為の（低電圧駆動）電極材、チャンネル材の良い組み合わせを探索する為の、計算プロトコルを確立した。[5]【熱マネジメント材料】の研究に関しては数十ナノメートル程度までの膜厚材料や原子、分子ワイヤー、ナノワイヤー、ナノ接合系における精密計測実験との比較検証研究を行いながら、コンポジット材料などの実用材料への展開も視野に入れた研究も行っている。ゼーベック係数、伝導度、熱伝導度、及びそれらから見積もられる熱電変換の材料性能指数である figure of merit  $ZT$  の温度依存性、サイズ（膜厚）依存性、材料依存性等の理論計算を行っている。後者に関しては nanoscale-thermocouple integrated scanning tunnelling probes (NTISTP)における熱計測測定と詳細な一致を得ており[6]、フラーレン化合物の単分子ブレーク・ジャンクションを用いた計測実験結果を定量的に説明する為にはイメージ・ポテンシャル補正を第一原理電子状態計算に加える必要がある事も見出した[7]。前者においては金属錯体の分子多層膜の  $ZT$  が中心金属種と膜厚の双方に大きく依存している事を示した[8]。原子、分子ワイヤーの場合、ワイヤの電子準位とフェルミ準位の相対位置が共鳴的になるある場合に、Widemann-Franz 則が大きく破れる事が理論的に解っている。この事と関係して変換効率は電子準位差のみならず、サイズ（長さ、厚み）に大きく依存する事が示されており[9]、第一原理計算結果はその結果と良く一致する。

文献) [1] 浅井美博、中村恒夫、島崎智実、**固体物理**、46, 777 (2011) 及びその引用文献。[2] Y. Asai, **Phys. Rev. B**, 84, 085436-1-7 (2011). [3] H. Nakamura, Y. Asai, J. Hihath, C. Bruot, and NJ Tao, **J. Phys. Chem. C**, 115, 19931-19938 (2011); Y. Asai, H. Nakamura, J. Hihath, C. Bruot, and NJ Tao, **Phys. Rev. B** 84, 115436-1-5 (2011). [4] S.K. Lee, R. Yamada, S. Tanaka, G.S. Chang, Y. Asai, and H. Tada, **ACS Nano**, 6, 5078-5082 (2012); J. Hihath, C. Bruot, H. Nakamura, Y. Asai, I. Díez-Pérez, Y. Lee, L. Yu, and NJ Tao, **ACS Nano**, 5, 8331-8339 (2011); Y. Asai, **Phys. Rev. B** 86, 201405(R)-1-4 (2012). [5] T. Miyazaki, H. Nakamura, K. Nishio, H. Shima, H. Akinaga, and Y. Asai, in preparation. [6] L. A. Zotti, M. Bürkle, F. Pauly, W. Lee, K. Kim, W. Jeong, Y. Asai, P. Reddy, and J.C. Cuevas, **New J. Phys.**, in press. [7] M. Bürkle, S.K. Lee, R. Yamada, H. Tada and Y. Asai, in preparation. [8] H. Nakamura, T. Ohto, T. Ishida, and Y. Asai, **J. Am. Chem. Soc.**, 135, 16545-16552 (2013). [9] Y. Asai, **J. Phys. Cond. Matt.** 25, 155305-1-5 (2013).

# CMSI 研究課題発表（第5部会）

12月13日（金） 13：20～15：25

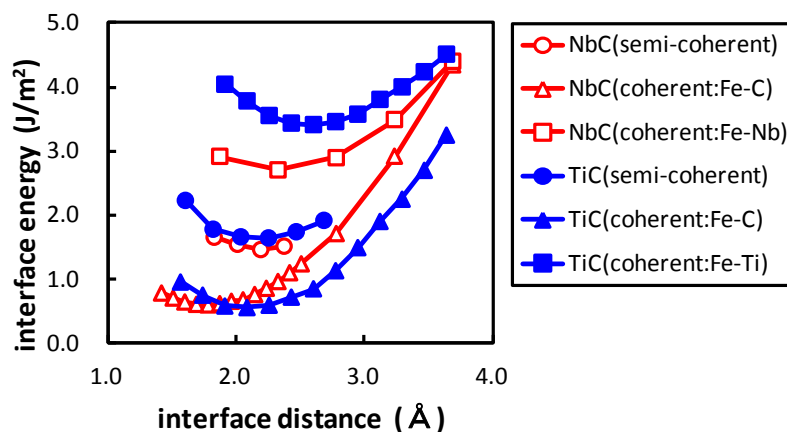
## 鋼中析出物界面の第一原理計算

新日鐵住金<sup>1</sup>、北陸先端大<sup>2</sup> 澤田英明<sup>1</sup>、谷口俊介<sup>1</sup>、川上和人<sup>1</sup>、尾崎泰助<sup>2</sup>

鋼の強化など諸々の特性に対して重要な役割を果たす鋼中析出物の1つである NaCl 型析出物は、析出物の成長に伴って整合界面から部分整合界面へと遷移すると考えられている。整合析出物と部分整合析出物では析出物がもたらす諸々の物性が異なる可能性があり、整合状態から部分整合状態へ遷移する大きさを知った上で制御することが重要になっている。そこで、整合界面と部分整合界面の界面エネルギーと歪エネルギーを第一原理計算のオーダーN法[1]などを用いて算出し、析出物が整合状態から部分整合状態に遷移する大きさを見積ることを考え、これまでに bcc-Fe 中の析出物 NbC に対する計算結果を報告してきた[2]。

今回、bcc-Fe 中の析出物 TiC に対して計算を行った結果について報告する。TiC と NbC では最外殻の d 電子数などの電子状態や、格子定数に違いがある。しかし、その界面エネルギーの違いや整合界面から部分整合界面に遷移するサイズの違いについては、実験的に不確かな部分があり、理論的に決定することが求められていた。図 1 に、第一原理計算によって求められた TiC の部分整合界面の界面エネルギーを示すが、NbC に比べて僅かに大きいことが分かる。これは、整合界面の計算で Ti, Nb と Fe が近接する場合の界面エネルギーが NbC に比べて TiC の場合に大きいことに起因していると考えられる。また、Ti, Nb と Fe が近接する場合の整合界面では、最外殻電子が1つ多い Nb の方が Fe 原子との結合を強固にしやすいたことが界面エネルギーの違いに結びついている。

更に、Fe と TiC の格子定数の違いによって生じる Fe 相の歪エネルギーの計算を実施し、上記の界面エネルギーに加えることによって、整合界面から部分整合界面に遷移する大きさを求めた。本研究会ではその結果についても議論する。



(図 1) 界面エネルギーの相間距離依存性

文献

[1] T. Ozaki, Phys. Rev. B **74**, 245101 (2006)

[2] H. Sawada *et al.*, Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. **21**, 045012 (2013)

## 電子論に基づく Fe-Si 合金のマクロな機械的特性の予測

阪大院基礎工 譯田 真人、君塚 肇、尾方 成信

Si は鉄鋼材料の添加元素として用いられている。Fe 結晶に Si 原子を添加することで、塑性変形の素過程である転位運動のすべり系の限定、降伏応力の変化、さらには塑性変形時の加工硬化率の増加が生じることが実験により報告されている。これらの塑性変形特性の変化は、固溶 Si 原子が Fe 結晶中の転位（特に bcc-Fe 結晶ではらせん転位）の運動に影響を与えることで生じると考えられているが、そのメカニズムの詳細については現在でも明らかではない。

我々の研究グループでは、現在までに、原子間の相互作用を経験的なモデルポテンシャルで記述した原子モデリングの枠組みを用いて、Fe 結晶中のらせん転位と Si 原子の相互作用について研究を行ってきた。これの研究から、らせん転位と Si 原子間に引力的な相互作用が働くことや、らせん転位がキンク対を形成しながら移動する際のエネルギー障壁が、らせん転位近傍に存在する Si 原子によって変化することを明らかにした。また、これらの原子論的知見によって、実験によって観察されている Fe-Si 合金の降伏応力の Si 濃度依存性、温度依存性を定性的に説明できることを示した。しかしながら、経験的なモデルポテンシャルの信頼性には未だ検討の余地があり、例えば、転位運動のすべり系の変化など、らせん転位の転位芯構造の変化の詳細が重要と考えられている現象のメカニズムを明らかにしようとする場合には、bcc 結晶から大きく乱れた転位芯構造を正確に再現する必要があるが、経験的モデルポテンシャルでは転位芯構造が精度よく再現できず定性的にも異なる結果を導く危険性がある。

そこで本研究では、まず固溶 Si 原子が Fe 結晶中のらせん転位の転位芯構造とらせん転位がキンク対を形成しながら移動する際のエネルギー障壁に与える影響を第一原理計算に基づき獲得し、Fe-Si 合金中の各すべり系の個々のらせん転位の運動特性を明らかにする。本研究で用いるらせん転位を 2 本含む bcc-Fe 結晶モデルを図 1 に示す。らせん転位と Si 原子の相互作用を適切に評価するためには、少なくとも 1000 原子程度を含む原子モデルが必要となり、この第一原理計算は従来の計算機の能力では実行が容易ではなかった。本研究では、計算コストが原子数に比例するために大規模モデルの計算に適した第一原理計算ソフトである OpenMX[1]を用いて計算を行うことによりこれを可能とする。この第一原理計算の枠組みから得られた個々の転位の運動特性を、複数の転位の運動から多結晶材料のマクロな応力-ひずみ応答を予測する計算手法の枠組みに導入することで、Fe-Si 合金のマクロな機械的特性の予測が可能な計算機解析の枠組みを構築する。

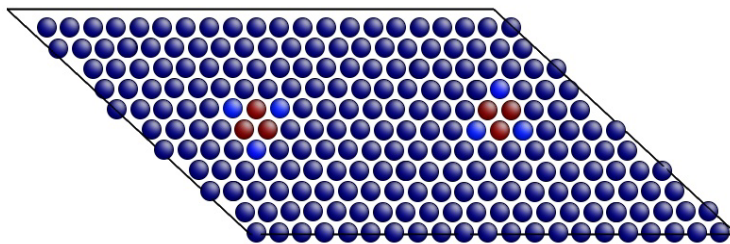


図 1. 第一原理計算によりらせん転位と Si 原子の相互作用を評価するための解析モデル。

文献

[1] <http://www.openmx-square.org/>

## 多分散レナード・ジョーンズ系における相図の粒度分布と温度依存性

東北大金研 CMRI<sup>1</sup>、Boston Univ. Dept. of Chem.<sup>2</sup> 寺田弥生<sup>1</sup>、T. Keyes<sup>2</sup>、J. Kim<sup>2</sup>

材料科学における結晶材料（単結晶・多結晶）とガラス材料の特性の違いは、広く知られている。しかしながら、多結晶などの内部組織を含むマイクロからマクロにいたるマルチスケールの材料の構造や、多結晶などの複雑なダイナミクス、液体相からガラス相へと遷移する途中過程である過冷却液体状態で見られる複雑な緩和現象を伴うガラス相の形成過程のような時空間におけるマルチスケールにわたる材料科学の諸問題と材料特性の関係性についてはいまだ本質的な理解がなされていないところが多い。そこで、本公演では、よく知られている 12-6 レナード・ジョーンズ(LJ)タイプの粒子間相互作用を用いたモデルシステム系でのシミュレーションによって気体・液体・結晶・ガラス相の相図について議論する。特に、粒子にコロイド粒子などでよく見られるガウス型の粒度分布（粒子サイズの分散）を与えることによって結晶化をさけた場合に、粒子の大きさの違いのみ（図1）で、粒度分布と温度に対して、相転移点や相図などがどのように変化するのかを明らかにする。

相図を効率的に求めるために、一次相転移近傍などの不安定なエネルギー状態にアクセス可能な一般化されたレプリカ交換法[1]を用いた圧力一定の系のシミュレーションを行い、エンタルピー・自由エネルギー・体積などの物理量を求めた。シミュレーションの結果得られた臨界点と三重点の間の粒度分布-温度空間の相図の典型例（圧力  $P=0.10$  と  $0.01$ ）を図2に示す。高温領域では、気体-液体の相転移点に粒度分布と圧力の影響が強く見られる。一方、低温側では、液体-結晶相転移点とガラス相転移点にはほとんど圧力差は見られず、粒度分布の増大による結晶相転移点の消失は、圧力によらず、粒度分布の標準偏差  $0.15 < s < 0.20$  の間に存在することが明らかになった[2]。なお、研究会での講演では、臨界点以上の相図についても議論を行う。

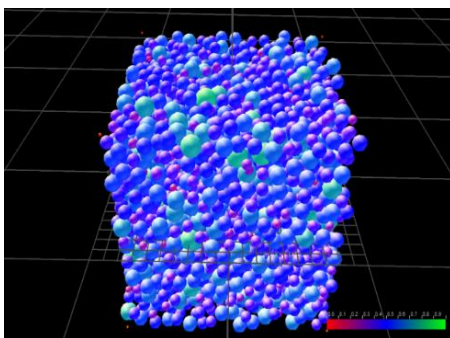


図1 標準偏差  $s=0.25$  の粒度分布を持つ LJ システムのアモルファス状態のスナップショット

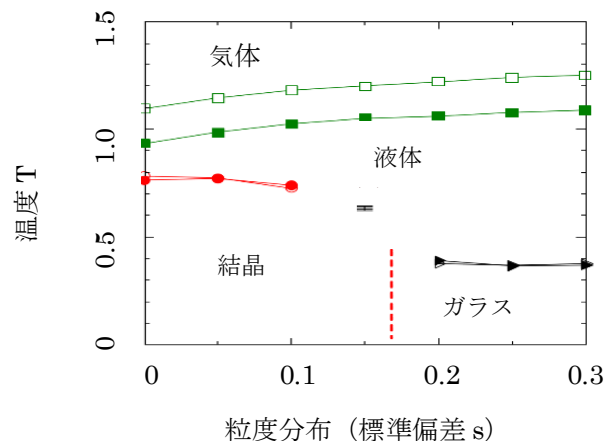


図2 粒度分布-温度に対する相図

白抜シンボル :  $P=0.10$  中塗シンボル :  $P=0.01$

文献

[1] J. Kim, T. Keyes and J. E. Straub, **JCP** vol.132, 224107(2010).

[2] Y. Terada, T. Keyes, J. Kim and M. Tokuyama, **AIP Conf. Proc.** vol.1518, p.776 (2013).

# 合金凝固組織の高精度制御を目指したデンドライト組織の大規模数値計算 —大規模分子動力学法による高温物性値の導出と固液界面挙動解析—

東大<sup>1</sup>, 京工繊大<sup>2</sup>, 北大<sup>3</sup> 澁田靖<sup>1</sup>, 高木知弘<sup>2</sup>, 大野宗一<sup>3</sup>

合金材料の更なる高機能化・高品質化を達成するため、製造プロセス初段階の凝固過程における材料組織の高精度制御が強く求められている。しかし凝固現象はダイナミクスを直接観察することが難しいこと、流動・伝熱・溶質拡散等のマルチ・フィジックスが関与ことから、凝固組織を制御することは大変困難である。よって凝固現象理解のためのシミュレーション研究も盛んであるが、当該分野における強力な手法であるフェーズフィールド・モデルが現状で扱えるシステム・サイズは、デンドライト数本のレベルに限定される。一方、凝固組織制御の主眼は、デンドライト間の相互作用とその統計的挙動にあるため、シミュレーションの大規模が不可欠である。本特別支援課題では、フェーズフィールド・モデルによるデンドライト組織形成の大規模シミュレーションを実行し、デンドライト集団の競合過程（規則性、淘汰則、偏析挙動）の解明を試み、合金の凝固組織に対する高精度制御法の発展を目指している。具体的には

- (1) 分子動力学法(MD)による原子レベルの凝固現象の解析と高温物性値の算出 (澁田)
- (2) フェーズフィールド・モデルの高精度化 (大野)
- (3) フェーズフィールド・シミュレーションの大規模化 (高木)

の三つの課題に取り組んでいる。今回の発表では、全体の概要及び(2), (3)の進捗を説明した後、(1)の内容について紹介する。具体的に(1)では、100原子程度のMD法解析により純鉄凝固核の異方性発現過程を解析し、固液界面エネルギーや界面キネティクス係数などの高温物性値及びその方位異方性の直接導出を試みている。計算は領域分割法によるMD法アルゴリズムをCUDAにより開発、GPUに実装、GPU搭載計算機を用いて数値解析を行っている。手法の詳細は文献[1,2]を参照されたい。図1に{100}面及び{110}面で切り出されたbcc結晶(固相核)を液相中に配置し融点以下(過冷度300K)に保持して得られた凝固核を示す。また図2にその凝固核半径の方位依存性を示す。固相核は{100}面方向に優位に成長し4回対称の異方性形状が確認できる。本研究により金属系古典MD法解析において100万原子程度以上の容易に取り扱えるようになり、曲率を持った界面やその異方性など、これまで取り扱いが困難であった凝固核の異方性発現過程を直接解析できるようになった。MD法解析から導出される固液界面エネルギー及び界面キネティクス係数をフェーズフィールド・パラメータと対応させ、フェーズフィールド・シミュレーションと原子スケール解析とを正しく関連付けることが本研究のねらいの一つである。

[1] Y. Shibuta et al. ISIJ Int. **52**, 2205 (2012).

[2] 小口・澁田・鈴木, 日本金属学会誌, **76**, 462 (2012).

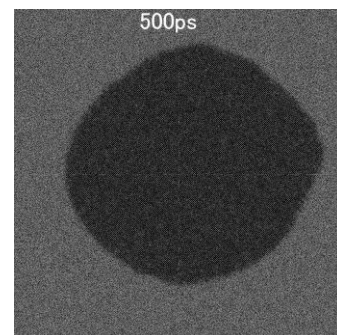


Fig. 1 Snapshot of solid nucleus with anisotropy with four-fold symmetry.

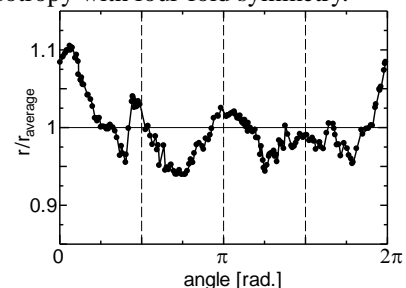


Fig. 2 Radius anisotropy in solid nucleus.

## 強誘電体の電気熱量効果の分子動力学計算

東北大金研<sup>1</sup>、アイオワ州立大学<sup>2</sup> 西松毅<sup>1</sup>、Scott P. Beckman<sup>2</sup>、Jordan A. Barr<sup>2</sup>

近年の気相成長技術の発達により、均質で膜中の欠陥の少ない強誘電体薄膜が作られるようになりつつある。欠陥の少ない薄膜には今までは不可能であった強い電場をかけることができ、そのON/OFFにより大きな電気熱量効果 (electrocaloric effect) が期待できる。固体冷却装置などへの応用が期待されている。

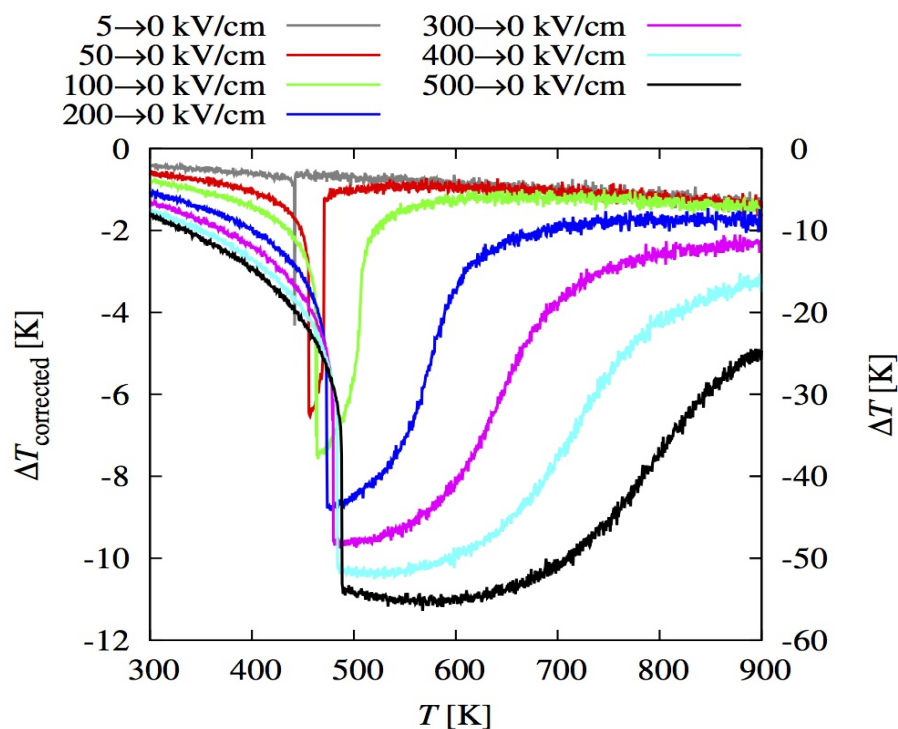
さきごろ、われわれは、われわれが開発を続けている強誘電体に特化した分子動力学計算プログラム **feram** (<http://loto.sourceforge.net/feram/>) により BaTiO<sub>3</sub> の電場下の分子動力学計算を行い、電気熱量効果を見積った[1]。そこでは、しかしながら、熱力学的な関係式を使って  $dP_e/dT$  から間接的に電気熱量効果  $\Delta T$  を見積っていたため、 $dP_e/dT$  が発散する、外部電場  $E_z$  が小さな場合にはその見積りに困難があった。

今回、有限の外部電場  $E_z$  下でカノニカル・アンサンブル計算を行い、その後  $E_z=0$  としてマイクロ・カノニカル・アンサンブル計算を行うことにより直接的に分子動力学計算により電気熱量効果  $\Delta T$  を見積ることができた[2]。ただし、分子動力学計算で用いている粗視化 (coarse graining) により系の比熱が過小評価され、その結果  $\Delta T$  が過大評価されるので、粗視化の度合いに応じた補正が必要である。図の計算結果より比較的弱い外部電場  $E_z$  でも相転移温度  $T_c$  付近で大きな  $\Delta T$  が得られるが、 $T_c$  以上のある程度の温度範囲で大きな  $\Delta T$  を得るためにはより強い  $E_z$  が必要なることがわかる。

### 参考文献

- [1] S. P. Beckman, L. F. Wan, Jordan A. Barr and Takeshi Nishimatsu: Materials Letters **89**, 254 (2012).  
[2] Takeshi Nishimatsu, Jordan A. Barr and S. P. Beckman: J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 114605 (2013).

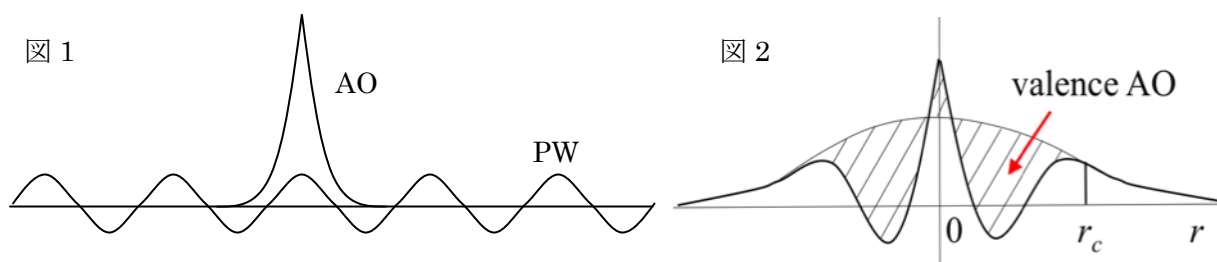
図: 分子動力学計算によりえられた BaTiO<sub>3</sub> の電気熱量効果  $\Delta T$ .



## ナノクラスターから結晶までの機能性材料の全電子スペクトルとダイナミクス

横浜国大工<sup>1</sup>、アクセルリス（株）<sup>2</sup>、東大物性研<sup>3</sup>、物質・材料研究機構東<sup>4</sup>、東北大未来科学<sup>5</sup>  
大野かおる<sup>1</sup>、小野頌太<sup>1</sup>、桑原理一<sup>1,2</sup>、野口良史<sup>3</sup>、佐原亮二<sup>4</sup>、川添良幸<sup>5</sup>

我々はナノクラスターから結晶までの機能性材料の全電子スペクトルとダイナミクスを調べることを目的にして、既存の第一原理計算手法の欠点を補う汎用性の高い全電子混合基底法プログラム TOMBO の開発を進めている。現在用いられている殆どの第一原理計算手法は欧米で開発されたものである。それぞれ一長一短があり、万能ではない。例えば、1 電子軌道を原子軌道関数基底のみで表す方法には基底の不完全性の問題や基底関数重なり誤差 (BSSE) の問題がつきまとう。平面波基底のみで表す方法には芯電子の取り扱いの不完全性や擬ポテンシャルの不完全性の問題があり、水素のイオン化 (プロトン化) も扱えない。マフィンティンを用いる方法では、結晶以外 (真空領域) を扱うことが出来ない。全電子混合基底法は、これらの欠点を補う計算手法として、1 電子軌道を数値原子軌道関数 (AO) と平面波 (PW) の線形結合として表す (図 1)。さらに図 2 のように AO を重ならない原子球内に制限することにより、AO-AO 重なり行列の評価が必要なくなり、BSSE の問題も起こらず、overcompleteness の問題も起こり難くなっている。TOMBO は、孤立系から結晶系までの芯電子から自由電子までの全軌道を 1 電子ハミルトニアン の完全固有状態として記述できる他に類を見ない、我が国が世界に誇ることのできる純国産の第一原理計算手法である。



我々はこれまで TOMBO を用いて、全電子の枠組みで DFT や TDDFT に基づくダイナミクス計算を行って化学反応や電子励起反応を調べるとともに、バンドギャップやバンド構造を正しく再現できる GW 近似に基づく XPS, UPS スペクトル計算を行い、Bethe-Salpeter 方程式を解く精密な光吸収スペクトル、オージェ・スペクトル計算を行ってきた。

このプログラムは MPI + openMP ハイブリッド並列化、メモリ分散化されており、超並列大規模計算が可能である。本年度は、TOMBO の LDA 部分のソース公開を目指して、SCF 計算の高速化に取り組んでいる。特に、Chebyshev 多項式を用いたポテンシャル・フィッティングによる高速化、3次元フーリエ級数から原子球内へのフーリエ変換の高速化など独自の技術も開発した。また、今まで幾つかのバージョンに分かれていた独立なプログラムを統合し、iterative 対角化や Broyden charge mixing 手法などを含む all-in-one program package として完成させる予定である。それと並行して、GW 法などの高度な計算手法を取り入れ、全エネルギー計算にも着手している他、これまでの反磁性帯磁率計算ルーチンを局所応答に拡張することで、NMR 化学シフト計算を可能とするようにプログラムを改良中である。



# CMSI 支援課題

12月13日（金） 15：40～17：40

# フラストレート磁性体の計算科学的研究 ---スピン空間に異方性のない系でのスピフロップ現象---

兵庫県立大学物質理<sup>1</sup>、原子力機構 SPring8<sup>2</sup> 中野博生<sup>1</sup>、坂井徹<sup>1,2</sup>

磁性体に磁場を印加することで得られる磁化過程には、磁性体ごとの特徴が様々な形で現れる。その一つに磁化ジャンプがあり、その起源の一つとしてスピフロップ現象が知られている。このスピフロップ現象は、反強磁性体がスピンの異方性を有する場合に発現する基礎的な磁性現象であると広く認識されている。

この現象に関わる事例として、我々は、図1に示した square-kagome 格子[1]の  $S=1/2$  ハイゼンベルク反強磁性体の磁化過程を調べた[2]。2次元フラストレート系ゆえに信頼できる計算方法に制約がある中で、出来るだけ大きな系の結果を得るため、数値対角化法の計算を大規模に並列化した形でスーパーコンピュータの上で行い、得られた結果からその振舞を検討した。この格子は、正三角形が頂点共有を有しながら2次元ネットワークを形成していて、その点では良く知られたカゴメ格子と共通である。しかしながら、ネットワークのパターンが異なっており、全てのスピンサイトが等価なカゴメ格子に対して、この格子の各サイトは、その形状から2種類の異なるスピンサイトのグループに分類される。この違いが、2次元フラストレート系の磁化過程という舞台でどのような振舞の違いを生み出すか、という問題を中心に検討を進めた。

その結果、図1の格子では、飽和磁化の3分の1の高さに磁化プラトーが発生し、その高磁場側の端で磁化ジャンプを発現して、より高い磁化へと移っていくことが分かった。この振舞は、同じ高さでジャンプのない典型的な磁化プラトーを発現している三角格子の場合と明らかに異なり、また、そこでの振舞に議論が続いている通常のカゴメ格子とも異なっている。我々は、磁化ジャンプの前後のスピン状態を調べることで、スピンの向きが一斉に変化する様子を明瞭に捉え、スピフロップ現象が起こっていることを見出した。この系はスピン空間に異方性を持たない磁性体となっており、スピン間相互作用のフラストレーションが元でスピフロップ現象が起こっている。本研究は、スピフロップ現象の発現機構の理解に対して再検討の必要性を示唆する結果となった。

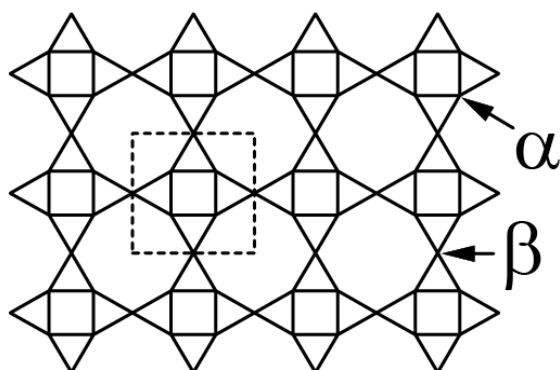


図1：正三角形が頂点共有で2次元ネットワークを形成する square-kagome 格子の形状。破線が示す単位胞はスピンサイト6個を含む。スピンサイトは $\alpha$ サイトと $\beta$ サイトの2種類にグループ分けされる。

文献

- [1] R. Siddharthan and A. Georges: Phys. Rev. B **65**, 014417 (2001).
- [2] H. Nakano and T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 083709 (2013)

## 界面活性剤系のマルチラメラ高次構造形成の大規模粗視化分子動力学計算

東大物性研<sup>1</sup>、ユーリッヒ研究センター<sup>2</sup> 芝隼人<sup>1</sup>、野口博司<sup>1</sup>、Gerhard Gompper<sup>2</sup>

水環境中における非イオン性界面活性剤が示す、多層ラメラの高次構造が、90年代から実験的に着目されている。中でもオニオン相と呼ばれる、剪断流下で典型的なたまねぎ状の100 $\mu\text{m}$ スケールは長年に渡り、ソフトマターの構造形成の大きな問題として議論されてきた。関与する空間スケールは巨大であるため、従来シミュレーションは困難であった。

我々は高度に粗視化された分子模型を作成しその大規模シミュレーションを行うことで、高次構造に迫ろうとしている。現在、物性研システムBの1024コア規模のプロダクトランを通じて、オニオン構造の中間状態の実空間像を示すことに成功している(図)。また、相図の高次構造形成領域の両側に、ラメラ相がリエントラントに現れる性質も再現された。[1,2] レオロジー性質のコントロールに向けた熟浴の改良、定常状態の可逆性などの問題が残っており、同規模の計算を継続している。それと同時に、オニオン構造の実現には、計算している系のサイズが不足している。これ以上の問題の階層分離は困難であり、計算規模を飛躍的に増した計算が最終的に必要である。

我々はオリジナルのスクラッチコードの開発を通じて、京コンピュータを含めた1億粒子~10億粒子スケールの大規模シミュレーションを視野に、プログラムの改善を行ってきた。技術的困難も含め、この現状報告も行う。

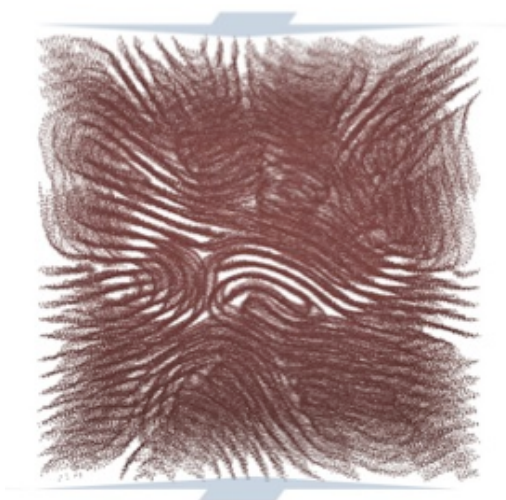


図:同心状に不安定化したマルチラメラ状態。  
剪断流れは紙面に垂直な方向を向いている。

### 文献

- [1] H. Shiba, H. Noguchi, and G. Gompper: *J. Chem. Phys.*, **139**, 014702/1-11 (2013).
- [2] 芝隼人, 野口博司 分子シミュレーション研究会会誌「アンサンブル」**16-1** 掲載予定 (2014).

## フラストレート磁性体におけるトポロジカル励起の秩序化

東大物性研 大久保毅、川島直輝

近年の磁性体に関する研究では、フラストレーションという概念に興味が集まり、それが引き起こす様々な新奇現象に興味が持たれている。フラストレーションとは、複数の最適化条件が競合することにより、系がそれら全てを同時に満たすことができなくなっている状態であり、磁性体に限らず、様々な状況で現れる概念である。フラストレート磁性体では、最適化条件の微妙なバランスにより低温まで秩序化が抑制されているため、その秩序化と物性の理解には、低温での励起構造や新しい自由度の影響を解明することが重要となる。

本講演では、フラストレーションが存在する二次元のハイゼンベルグスピン系で生じる、右巻き・左巻きの区別がない特殊なトポロジカル励起 ( $Z_2$  ボルテックス) に注目した研究を紹介する。1984年に川村らによって、この  $Z_2$  ボルテックスの解離・凝集により、スピン相関長が有限に保たれたまま、自由な  $Z_2$  ボルテックスの有無のみが変わるというトポロジカル相転移、 $Z_2$  ボルテックス転移の存在が提案されている。しかし、典型的なモデルである三角格子ハイゼンベルグモデルでは、予想される相転移温度でのスピン相関長が数千格子間隔になるため、この長さを超える十分に大きな系での数値シミュレーションが困難であり、提案から30年経った現在でも、 $Z_2$  ボルテックス転移の有無について、完全な決着には到っていない。

本研究では、期待される転移温度でのスピン相関長を超える非常に大きな系の解析を目指し、二次元三角格子ハイゼンベルグ反強磁性体の局所的なオーダーパラメータである  $SO(3)$  の回転行列が  $L \times L$  の正方格子上で相互作用する有効モデル[2,3]における、 $Z_2$  ボルテックス転移の有無を考察した。大規模並列クラスターアルゴリズムを用いたモンテカルロシミュレーションにより、 $L=4096$  までの系を平衡化して解析した結果、 $Z_2$  ボルテックス転移のオーダーパラメータに、相転移を示唆する変化を確認できたが、その振る舞いから外挿した推定転移温度でのスピン相関長は、およそ5千から1万格子間隔程度であり、 $L=4096$  は未だ十分に大きい系とは言えないことも明らかとなった。講演では、より大きな  $L=8192$  や  $L=16384$  での計算の展望についても触れ、大規模数値計算により  $Z_2$  ボルテックス転移に決着をつけられる可能性を議論したい。

### 文献

- [1] H. Kawamura and S. Miyashita, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 4138 (1984).
- [2] H. Kawamura and M. Kikuchi, Phys. Rev. B **47**, 1134 (1993).
- [3] M. Caffarel, P. Azaria, B. Delamotte, and D. Mouhanna, Phys. Rev. B **64**, 014412 (2001).

## ナノサイズ分子の新規構造及び機能の探索 -大規模並列計算プログラムの効率的な開発-

分子研 TCCI、石村和也

### [目標・目的]

非共有結合などいわゆる弱い相互作用や大きな置換基による立体障害の多用により、小さな分子やモデル化ではなく、巨大分子をまるごと扱うことで初めて得られる新規構造や機能をもつナノサイズ分子の設計を行う。そのために並列効率及び実行性能の高い量子化学計算アルゴリズムの開発と実装を行う。さらに、開発したプログラムはオープンソースライセンスで公開し多くの研究者が自由に使えるようにする。

### [研究手法]

これまでに開発した高速2電子積分計算アルゴリズム[1]と Hartree-Fock 計算の MPI/OpenMP ハイブリッド並列アルゴリズム[2]を基に、京コンピュータで得たノウハウを設計段階から取り入れながら、様々な方法のエネルギー計算及びエネルギー微分計算の大規模並列アルゴリズムの開発と実装を行っている。行列対角化以外の計算は、初期値計算も含めてすべてノード間・ノード内並列化をしている。1,2 電子積分などよく使われる計算ルーチンはライブラリ化し抜き出せる構造にして、開発コストの低減を図った。

### [具体的な成果]

京コンピュータで(C<sub>150</sub>H<sub>30</sub>)<sub>2</sub>(cc-pVDZ 基底, 4500 次元, 16 SCF cycles)の B3LYP エネルギー計算を行い、初期軌道計算を含めた全計算時間の並列加速率を図 1 に示す。10 万 CPU コアレベルでも 50%以上の並列化効率、13%以上の実行性能を達成した。98304 コアで 148 秒であり、数百原子(数千基底)系の計算がスーパーコンピュータを用いて容易に行えるようになった。

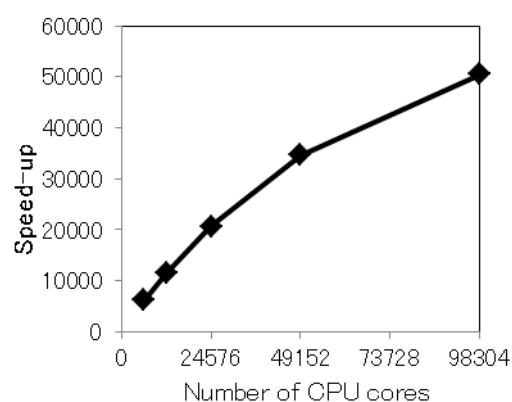


図 1 B3LYP エネルギー計算の並列加速率

### [考察・今後の計画]

ノード間並列化された行列対角化ライブラリの組み込み、ECP(Effective Core Potential)計算などの実装を行い、より実用的なプログラムにして、ナノサイズ分子やクラスターの化学反応の解析・予測をするとともに、今後マニュアルや入力形式の整備も進めてプログラムを公開する予定である。

### [文献]

[1] K. Ishimura, S. Nagase, *Theoret. Chem. Acc.* **120**, 185-189 (2008).

[2] K. Ishimura, K. Kuramoto, Y. Ikuta, S. Hyodo, *J. Chem. Theory Comp.* **6**, 1075-1080 (2010).

## Screened KKR 法による永久磁石材料の第一原理電子状態計算

東大物性研 土居抄太郎

密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算は、これまでに様々な物質を対象として行われ成功を収めてきた。近年、より大規模かつ複雑な系を対象とした第一原理電子状態計算の必要性が高まっており、計算量が系の原子数  $N$  に比例する性質を持つオーダー  $N$  計算法の開発が進められている。その中で、Screened KKR 法は、全電子第一原理電子状態計算法である KKR Green 関数法のオーダー  $N$  版として提案された。現在、元素戦略磁性材料研究拠点では、希少元素に依らない次世代永久磁石材料の創製を目指して研究が進められているが、我々は、Screened KKR 法による大規模系を対象とした第一原理電子状態計算を通じて、磁性発現機構の解明及び新奇永久磁石材料の探索につなげるという可能性を検討している。

KKR Green 関数法では、Kohn-Sham 方程式を自己無撞着に解いて有効ポテンシャルを計算する際に、Kohn-Sham 波動関数を求めるための固有値問題を回避し、系の一電子 Green 関数を直接計算して複素エネルギー積分することにより電子密度分布を計算する。系の一電子 Green 関数は、任意の参照系を元にした Dyson 方程式を解くことで計算され、 $N$  に比例する次元を持つ正方行列の逆行列計算に帰着する。通常の KKR Green 関数法ではポテンシャル散乱体の存在しない自由空間を参照系としているが、Screened KKR 法においては、参照系として結晶の格子位置に斥力ポテンシャルを並べた系を採用する。このような参照系においては、斥力ポテンシャルよりも十分に低いエネルギー領域で Green 関数が実空間で指数関数的に減衰する。この場合、扱う行列が零要素の多い疎行列の形になり、効率的な疎行列ソルバーと組み合わせることにより、対象が金属・絶縁体であるかを問わず計算精度を損なうことなく大幅な高速化が実現できる。

これまでに Screened KKR 法は、二次元周期性を仮定し一次元方向に拡張された多層膜に対して広く適用されてきた。多層膜の場合、疎行列は単純なブロック 3 重対角の形になり、LU 分解を用いる逆行列計算により、計算量が層の厚さに対し正確にオーダー  $N$  となることが示されており、1 万層を超える多層膜に対する電子状態計算が問題なく実行可能である。

より一般的に、三次元方向に拡張された大規模スーパーセルの場合、一般的な形の疎行列を扱う必要がある。疎行列ソルバーとしては LU 分解を伴わない反復法の選択が有効である。反復法により逆行列を各列ごとに独立して計算するので、系の原子数に対する並列化が容易であり、高精度な全電子オーダー  $N$  計算法として有望であると期待される。また、問題に応じて適切な前処理を選択することにより、反復法の収束を大幅に加速することができる。

我々は、フルポテンシャル KKR プログラムをベースに、反復法により逆行列計算を行う大規模スーパーセルを対象とした Screened KKR プログラムを開発した[1]。本講演では、開発したプログラムによる種々のテスト計算の結果や、永久磁石材料に対して電子状態計算を適用する試みについて報告する。

[1] S. Doi, M. Ogura and H. Akai; J. Phys.: Conf. Ser. **454**, 012019 (2013).

## HPC を用いた次世代電池の反応機構の解明

株式会社日産アーク 茂木昌都、久保潤啓、荒尾正純、浅田敏広、今井英人

### はじめに

再生可能エネルギーを主体としたスマートエネルギー社会の基幹テクノロジーとして、より高性能な電池の開発が進められている。現在は、低容量ではあるが性能が安定している Li 正極、例えば  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  (理論容量: 148mAh/g) が実用化されており、当面はこういった既存 Li イオン二次電池の改良をベースに開発が進められる見込みである。更なる高容量を目指して、Li 過剰正極材料 ( $\text{Li}_2\text{MO}_3$ : M = 1 種類以上の遷移金属。理論容量: 約 460mAh/g) の研究が精力的に行われているが[1]、不可逆容量や劣化機構の解明が課題となっている。これらの複雑な構造を持つ材料の課題解明には、高度先端解析技術を用いた *in situ* 構造解析に加え、そのスペクトルを理論的に予測して精度を高めた解釈を実施することや、大規模シミュレーションによる反応解析が有力であると期待される。これらの解析には、高負荷、且つ大規模な計算が必要となり、HPC は重要な役目を担う。本発表では、我々の最近の取り組みの一つとして、母材である  $\text{Li}_2\text{MnO}_3$  に対して行った放射光をもちいた *in situ* XAFS の測定結果と第一原理計算による XANES スペクトルのシミュレーション、およびそれに基づく電子状態解析の結果について報告する。

### 実験および結果

Mn K 端における *in situ* XANES の測定は  $\text{Li}_2\text{MnO}_3$  を正極、Li 金属を負極とするラミネートセルを作製し、SPring-8 BL16B2 において透過法で測定した。  $\text{Li}_x\text{MnO}_3$  ( $x = 2.0, 1.5, 1.0$ ) の電子状態計算および K 吸収端 XANES のシミュレーションは、VASP および WIEN2k を用いて行った。

### 結果

図 1 に Mn-K 端の *in-situ* XANES およびシミュレーションスペクトルを示す。ピークトップは徐々にシフトするが、立ち上がり位置はシフトしないなど複雑な挙動が見られた。シミュレーションの結果は実験スペクトルの特徴を再現した。この状態における電子状態をみると、Mn の価数は、ほとんど変化していないことが判明した。 $\text{Li}_x\text{MnO}_3$  の  $x$  が異なると、 $\text{Li}_{1.5}\text{MnO}_3$  の Mn 4p PDOS の形状は方向毎に異なっており、Mn まわりの局所的な電荷分布に変化が起こっていることが示唆された。

今後原子欠損や格子欠陥を考慮した計算、エネルギー障壁計算、長時間 STEP 第一原理 MD 計算に取り組む。これまでに行った第一原理 MD と移動エネルギー計算について報告する。  
文献

[1]K. Kubobuchi, et al., 224th Electrochemical Society Meeting, San Francisco, 2013.

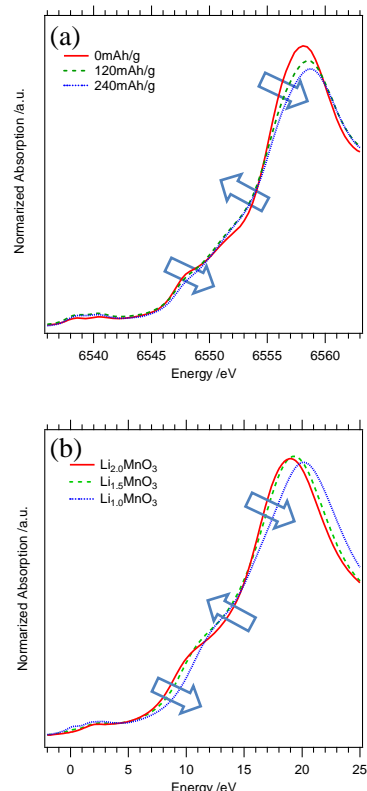


図 1 XANES スペクトル  
(a) 測定、(b) シミュレーション

# ポスターセッション

12月11日（水） 16：05～18：20

物性研究所 6階 ラウンジ



## 冷却原子系の量子モンテカルロ・シミュレーション

東大院工<sup>1</sup>、兵庫県立大<sup>2</sup>、東大物性研<sup>3</sup> 大越孝洋<sup>1</sup>、鈴木隆史<sup>2</sup>、川島直輝<sup>3</sup>

2002年に Greiner らが超流動・モット絶縁体転移を観測して以降[1]、光格子中にトラップされた冷却原子系の実験が目覚ましく発展している。そのような系は、有効的にボーズ・ハバードモデルで記述され、モデルパラメータを制御できるという特徴がある。そのため、ボーズ・ハバードモデルにおいて理論的に予言される新規な物理現象を実験で実現するための格好の舞台として、理論・実験ともに精力的に研究されている。特に、近い将来磁気双極子相互作用が大きい原子系において、超流動と固体の共存状態である超固体の観測が期待されている。

このような背景から、我々は高精度の計算手法である量子モンテカルロ法を用い、超固体をはじめとするボーズ・ハバードモデルにおける新量子相の数値的研究を行ってきた。我々のモデルでは、磁気双極子相互作用に起因した最近接相互作用やさらに長距離の相互作用を取り入れている。通常の超固体は、固体に粒子またはホールをドーピングすることによって発現されることが知られていた。ところが、我々の数値計算の結果、ドーピングなしで発現される超固体の存在を確認した[2,3]。このような超固体は、コメンシュレートな粒子占有率で現れる新しいタイプの超固体（コメンシュレート超固体）である（図1）。この他にも、化学ポテンシャルの関数としての粒子数密度に多段プラトーが現れる相[4]やネスト構造をもつ固体相[5]といった新規な相を発見したので、これらの結果を本発表にて報告する。

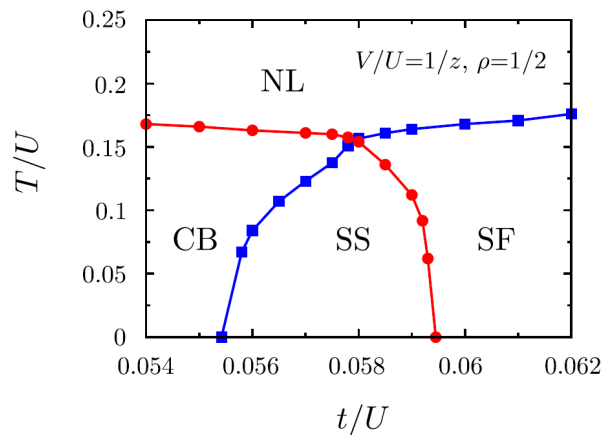


図1. コメンシュレートな粒子占有率  $1/2$  における有限温度相図。  
CB, SS, SF, NL は、それぞれチェッカーボード型固体相、超固体相、  
超流動相、無秩序相を表す。

文献

- [1] M. Greiner *et al.*; Nature, **415**, 39 (2002)
- [2] T. Ohgoe, T. Suzuki, and N. Kawashima; Phys.Rev. Lett., **108**, 185302 (2012).
- [3] T. Ohgoe, T. Suzuki, and N. Kawashima; Phys.Rev. B, **86**, 054520 (2012).
- [4] T. Ohgoe, T. Suzuki, and N. Kawashima; Phys.Rev. A, **86**, 063635 (2012).
- [5] T. Ohgoe, T. Suzuki, and N. Kawashima; in preparation

## 多くの励起状態と輻射場が関わる超高速非断熱化学過程と 多階層構造を有する分子系における電子動力学の追跡に向けた計算手法の開発

(東大院総合文化、CMSI、TCGI) 米原文博、高塚和夫

1) **目的**：当グループは、任意の電子状態空間で起こり得る新しい化学反応の発見を目指している。また、分子中の電子運動を含めた、化学過程における超高速動力学の観測技術の目覚ましい発展を受け[1, 2]、電子の動力学を包含した化学反応理論の構築を進めている。最終目標は、様々なレーザー場と電子の非断熱性に誘起される化学反応場を利用し、分子の状態分布を制御すること、そして電子動力学の可視化等の理論解析を通じ、得られた知見を化学過程の理解にフィードバックすることにある。

2) **擬縮重電子系**：電子状態の縮退は化学において普遍的に存在する。物質系の性質の転換や化学反応サイクルに関与する、ダイナミックな電子エネルギー移動が関わる化学過程では特に重要な役割を果たす。[3]縮退電子状態が関わる化学反応過程は各種非断熱遷移に伴う電子状態の複雑な変化を伴う。電子から原子核の時間スケールに渡り時間変動する分子内電子の局在性・非局在性は、構成原子の電子特性に応じ時間、空間的に多様な電荷・分極分布揺らぎを生み出す。これは化学活性の高い反応場の発現や、揺らぎを通じた各種相互作用がもつ階層構造の自発的転換を想起させる。電子特性の異なる状態の個々の近接領域では顕著な電荷移動のみならず、緩い外場を通じた制御を期待できる。

3) **ボロンクラスター**：平衡構造から十分外れ運動するボロンクラスターの電子波動関数は分子の構造変化に対し鋭敏に応答する。構成要素であるボロン原子の電子的特徴は価電子欠損性と価電子軌道半径の小ささにあり、これは、ボロン原子の無機有機化学における多くの応用につながっている。[4, 5]特に、この電子特性に起因し、クラスターは電子励起状態に擬縮重性と結合性を持つ。構造変化に伴い絶え間なく起こる非断熱電子動力学により、励起状態空間に活性の高い化学反応場が出現することが期待される。

4) **本発表の内容**：非断熱化学過程のレーザー制御に向け、当グループで開発を進めている、非ボロンオープンハイマー(NBO)化学の電子動力学を記述できる半古典軌道表示法を紹介する。[6-11]この手法は光による電子遷移と非断熱遷移の共存を容易に取り扱える上、部分的な平均化手続きを用いつつ、非断熱分岐過程を記述する為、多数の電子状態の関与する縮退系の非断熱化学過程における電子動力学の扱いにとり有利である。本発表では、多自由度多準位模型を用いてその効率性と高速化の可能性について示した後、次に示す事例を取り上げ、動力学の特徴について議論を行う。(a) 顕著な非断熱電荷移動ダイナミクス(Na+Cl) (b) 構造転移に伴う複雑な電子動力学を通じた電子場の活性化( $H_2@B_{12}$ ) (c) 非断熱衝突における反応・非反応性のレーザー制御( $B_{12}+H_2$ ) [12] (d) 縮退に関連し、円錐交差での電子動力学と干渉性に関する研究[13]。

[1] *Attosecond Physics*, (Eds.) L. Plaja, R. Torres and A. Zaier (2013) Springer

[2] *Quantum Dynamic Imaging*, (Eds.) A. D. Bandrauk and M. Ivanov (2011) Springer

[3] *Adv. Chem. Phys., The Role of Degenerate States in Chemistry* (Vol. 124), (Eds.) M. Baer and G. D. Billing (2003) John Wiley & Sons.

[4] *Boron Science*, Ed. N. S. Hosmane (2012) CRC Press

[5] R. B. King, *Chem. Rev.* **101**, 1119 (2001)

[6] T. Yonehara, K. Hanasaki and K. Takatsuka, *Chem. Rev.* **112**, 499 (2012)

[7] T. Yonehara and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **132**, 244102 (2010)

[8] K. Takatsuka and T. Yonehara, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 4987 (2011)

[9] T. Yonehara and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **128**, 154104 (2008)

[10] K. Takatsuka and T. Yonehara, *Adv. Chem. Phys.* **144**, 93 (2010)

[11] T. Yonehara and K. Takatsuka, *Chem. Phys.* **366**, 115 (2009)

[12] T. Yonehara and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **137**, 22A520 (2012)

[13] T. Yonehara and K. Takatsuka, *J. Phys. Chem. A* **117**, 8599 (2013)

# Dynamical energy landscape theory for the force-generation process in actomyosin motor

Qing-Miao Nie<sup>1,2,3</sup>, Masaki Sasai<sup>1</sup>, Tomoki P. Terada<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Dept. of Comp. Sci. Eng., Nagoya Univ., Chikusa-Ku, Nagoya 464-8603, Japan; <sup>2</sup>Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan; <sup>3</sup>Dept. of Applied Physics, Zhejiang Univ. of Tech., Hangzhou 310023, China

The actomyosin molecular motor, converting chemical energy into mechanical work, is driven by the interaction between actin filament and myosin II. The conventional lever-arm model shows that the mechanical force is generated by the conformational change of the myosin head which is strongly bound to the actin filament. In contrast, the unidirectional Brownian motion of the myosin head, while keeping weakly bound to the actin filament, is found in a single molecule observation [1]. Furthermore, a molecular-dynamics-simulation study of interactions between the nucleotide-free cleft-closed myosin and actin filament has been performed, which has suggested that the unidirectional Brownian motion is indeed possible due to the asymmetric slope of the energy landscape arising from the electrostatic interaction between actin and myosin [2]. However, the contribution of ligand release and conformational changes in the force-generation process has not been investigated in depth. We investigate roles of changes in the nucleotide state and conformational changes in the force-generation process by using a coarse-grained model of actomyosin. The free-energy landscape is calculated for different conformational and nucleotide states and kinetic transitions among states are simulated by stochastic jumps among free-energy landscapes. We found that the free-energy landscape is much affected by both the conformational change of myosin and change in electrostatic interactions between actin and myosin, and the jumps among these landscapes explain how the lever-arm and the biased Brownian motion contribute to force generation.

## References

- [1] K. Kitamura, M. Tokunaga, A. H. Iwane & T. Yanagida; *Nature*, **397**. 129 (1999).
- [2] M. Takano, T. P. Terada, & M. Sasai; *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **107**. 7769 (2010) .

# 磁気双極子相互作用に基づくナノ構造 Fe の磁化過程のシミュレーション

電機大理工 小畑修二

近年、各種の磁性体に於いてバルク構造とナノ構造の磁性は全く異なることが実験的に示される様になった。こうしたナノ構造 Fe での実験結果は、本研究での全系に渡る古典磁気双極子モーメントの相互作用に基づくエネルギー状態のシミュレーションを用いて見事に説明される。このシミュレーション結果は磁区形成、バルクハウゼン効果、磁化曲線を再現し、磁性体の磁化が全系に渡る磁気双極子相互作用に基づくことを決定付ける。しかし、このシミュレーションは、膨大な計算能力資源が必要で、ここ数年の計算機の恐るべき発展により実行可能になったと言える。このため、近年までのこうした報告は皆無である。

プランク定数を  $h$ , 電子質量を  $m$ , 電荷を  $e$  とすると, ボア磁子  $\mu_B = eh/4\pi m = 9.274 \times 10^{-24}$  [Am<sup>2</sup>] が磁気モーメントの最小単位となる。  $g$  はランデの因子で電子スピンの場合は  $g \sim 2$  ( $\mu_{1/2} = \mu_B$ ), その他は 1 となる。原子に局在する  $n_b$  個のボア磁子は長さ  $\delta$ , 磁束  $\Delta\phi$  の等価板磁石:  $\mu_B^0 = \mu_0 \mu_B = \delta \Delta\phi$ ,  $n_b \mu_B^0 = \delta \Delta\psi$  [NA<sup>-2</sup>Am<sup>2</sup>, J m/A] として見立てることができる。鉄の場合は 911°C まで体心立方格子構造 ( $a = 2.86 \times 10^{-10}$  m) で, 1 格子体積当たり 2 原子, 1 原子当たり  $n_b \sim 4$  (2.22) の d 電子スピンを有する。理想的な鉄は  $a^3$  の体積に  $2n_b \mu_B^0$  の磁気モーメントを持つ。任意の磁気モーメントをベクトル表現で  $\mu_i$  及び  $\mu_j$  と表し, その方向単位ベクトルを  $b_i$  と  $b_j$  で表そう。これらの  $d_{ij} = d_{ij} e_{ij}$  だけ離れた磁気モーメント間の相互作用エネルギーは,

$$W_{ij} = \frac{1}{4\pi\mu_0 d_{ij}^3} \left\{ (\mu_i \cdot \mu_j) - 3 \frac{(\mu_i \cdot d_{ij})(\mu_j \cdot d_{ij})}{d_{ij}^2} \right\} \quad (1)$$

と表される。これを用いて, モーメント  $\mu_j$  に対するエネルギーについてモーメント  $\mu_i$  の系の総てに渡った和を取り, エネルギー最小の状態となるモーメントの向きを定める。基底状態のモーメント向きは  $X, Y, Z$  の座標軸方向に揃う傾向を持ち, 磁区が形成される。外場  $H$  を変化させながらこれを繰り返せば磁化特性が求まる。これを用いた 18×18×18 格子ナノ構造 Fe の磁化曲線と磁区構造のシミュレーション結果を図 1 と図 2 に示す。

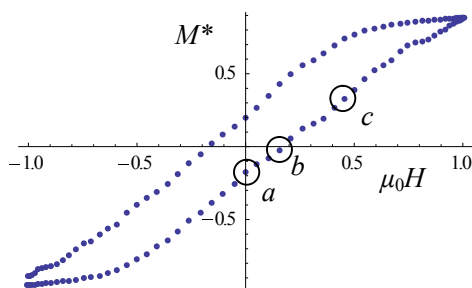


図 1 ナノ Fe 磁化曲線

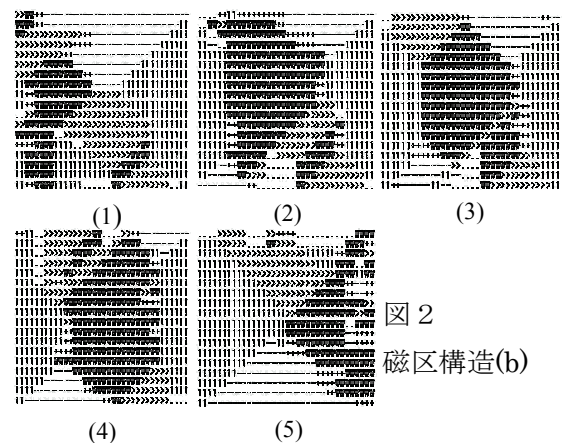


図 2 磁区構造(b)

文献

- [1]S. Obata: Mater. Trans. **54** No 9 1661-1677 (2013).
- [2]S. Obata: IEEJ Trans. FM, **133** No 9489-499(2013).

## 虚時間離散化インスタントン法の虚時間範囲に対する新しい取り扱い方法

分子研<sup>1</sup>、金大理<sup>2</sup> 河津励<sup>1,2</sup>、三浦伸一<sup>2</sup>

虚時間離散化インスタントン法を用いたトンネル分裂計算では、その精度は積分範囲である虚時間 $\beta$ と時間間隔 $\Delta\tau$ の二つのパラメータにより決まる。長い $\beta$ と短い $\Delta\tau$ においてより厳密な解を得るが、この二つは計算コストとしてトレードオフの関係にあり、両方を同時に満たすのは難しい。そこで、短い $\beta$ で計算したインスタントンを用いて、無限に長い $\beta$ を用いるのと等しいトンネル分裂を解析的に導くことで、計算精度向上と計算コストの削減を両立する方法を提案する。

プロトン移動やアンモニア傘反転など、軽い元素が介在する場合の分子運動では、トンネル効果の寄与が無視できず、低温における分光においてトンネル分裂としてしばしば観測される。このようなトンネル分裂を計算する方法の一つに経路積分インスタントン法がある。中村らはインスタントン法を分子系に適用し、基底関数の和として計算したインスタントン経路の係数と基底関数を両方最適化することで、インスタントンとトンネル分裂を求めている[1]。また、Althorpeらは、虚時間離散化経路積分法とインスタントン法を組み合わせ、その経路を作る虚時間ポリマーを分子動力学と同じ要領で構造最適化することで、インスタントンを求めている[2]。このとき、トンネル分裂は、次式のように虚時間範囲 $\beta$ の極限を用いて表される。

$$\Delta\epsilon = \lim_{\beta \rightarrow \infty} 2\hbar K e^{-S_{inst}/\hbar} \quad (1)$$

上述のAlthorpeらは、いくつかの $\beta$ の値を用いて計算を行い、その収束をチェックして十分に長い $\beta$ を見積もり、その値でトンネル分裂を近似した。我々は以前、Althorpeらの方法を基に、虚時間スライスポリマーを両端に継ぎ足して計算することで、構造最適化の計算コストを抑えつつ $\beta$ を延長する方法を提案した[3]。しかし、単に長い $\beta$ を用いて計算する方法では、計算コストと計算誤差が共に増大する危険がある。また、今回明らかになったことであるが、図1にあるように、従来の計算方法ではトンネル分裂のエラーは $1/\beta$ 程度の減衰であるため、計算精度を高めるためにはかなり長い $\beta$ を使う必要がある。

そこで、本研究では、式1の $K$ の $\beta$ 依存性を解析的にキャンセルすることで、式1を $\beta$ に拠らない表記に書き換えた。それにより、図1に示すように、インスタントン経路を過不足なく表現できる最小の $\beta$ でも、無限に長い $\beta$ を用いるのと同等の計算結果を得る方法を開発した。

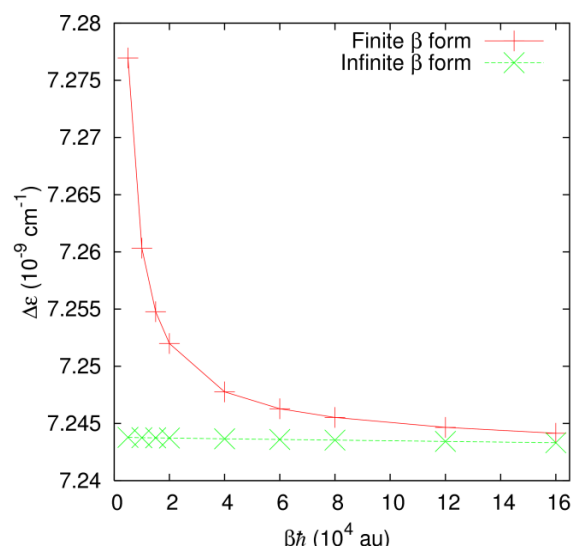


Fig.1 従来の方法(Finite  $\beta$  form)と新しい方法(Infinite  $\beta$  form)の $\text{HO}_2$ 分子の水素移動トンネル分裂 $\Delta\epsilon$ の虚時間幅 $\beta$ に対する依存性の比較。

### 文献

- [1] G. V. Mil'nikov, H. Nakamura, J. Chem. Phys. 2001, 115 6881.
- [2] J. O. Richardson, S. C. Althorpe, J. Chem. Phys. 2011, 134 054109.
- [3] T. Kawatsu, S. Miura, J. Phys. Conf. Ser. 2013, 454 012030.

## 実空間密度汎関数法に基づいた Car-Parrinello 法(RS-CPMD)の開発

東大院工, 阪大基礎工<sup>A</sup>, IPCMS<sup>B</sup>, 小泉健一, 重田育照<sup>A</sup>, 岩田潤一, Mauro Boero<sup>B</sup>, 押山淳

Car-Parrinello(CP)分子動力学は 1985 年、物理分野を母体として誕生したが、爾来、その有効性は化学、生物分野もその範疇としながら発展して来た。この方法は量子論に基づいているため、化学結合の組み替えを必要とするシミュレーションを可能にする。しかし、計算時間の問題から現実的なモデルを用いた計算は難しい。固体表面のシミュレーションなどをリアルなモデルで可能にするためには 1000-10000 原子のシミュレーションを行う必要があり、これには超並列コンピュータの利用が必須になる。このような環境によく対応した実空間密度汎関数法コード”RSDFT コード”[1]をベースにした CP 法(RS-CPMD)を開発することにより、飛躍的な効率で計算を行うことを目標とする。まず、第一段階として stable なプログラムを作成することができた。216 原子サイズのシリコンを用いた 50 万ステップに及ぶ計算にも安定に作動することを確認した。また、1000~1500K の高温下において計算したシリコンの拡散係数は平面波基底のものを良く再現することを確認した。現在、第二段階として京コンピュータ上での高速化を行い、以前からボトルネックであることが突止められていた擬ポテンシャルを空間にマップするルーチンの高速化を行い、さらに細かい変更を行う事で徹底的に計算時間を削る事で高速化が完了した。このためシリコン 1000 原子系の MD を 1step あたり最高で 3.5 秒で行える様になった。こちらの京コンピュータ上での平面波基底のコードでの測定では最高でも 18.5 秒かかることがわかっている。さらに現在、これらの改良を行って来た結果、擬ポテンシャルの Local 部分や力の Local 部分を扱うルーチン及び Hartree ポテンシャルを求めるルーチンに幾つか残っている高速フーリエ変換(FFT)の部分が新たなボトルネックとなってきたことが判ったため、筑波大学において開発された二次元分割並列版 FFT(FFTE)[2]を組み込むことでさらなる高速化を行った。また、擬ポテンシャル、力の計算の Non-local 部分に若干のスレッド並列化を行うことで高速化を図ってきた。現在、300K など低温状態での有効性を確認するために Blue-Moon の自由エネルギー・サンプリング法 [3,4]を導入することで、分子系のテスト計算を行い自由エネルギーのプロファイルが再現できることを確認した。当日は、現在までのベンチマークテストの結果及び計算された物理量の妥当性についても発表したい。

### 文献

[1] Iwata *et al.* J. Comput. Phys. 229, 2339 (2010)

[2] Copyright(C) 2000-2004,2008-2011 Daisuke Takahashi : <http://www.ffte.jp/>

[3] Carter *et al.* Chem. Phys. Lett. 156, 472, (1989)

[4] Sprik and Ciccotti, J. Chem. Phys. 109, 7737, (1998)

## 球状ベシクルに内包されたベシクルの形状決定機構の解明

東大物性研<sup>1</sup>、お茶大物理<sup>2</sup>、東北大理 坂下あい<sup>1,2</sup>、今井正幸<sup>3</sup>、野口博司<sup>1</sup>

近年生体膜研究はより複雑な系へと展開されている中、我々はミトコンドリアに注目した。ミトコンドリアはほぼ全ての細胞に含まれる細胞小器官であり、外膜と内膜の二重の生体膜から成る。主な機能は生体活動に必要なエネルギーの生産で、内膜に特殊な陥入構造をとることで生産効率を高めている。

従来この陥入構造はタンパク質によって制御されているものと考えられてきたが、我々は外膜の存在こそが形状決定の鍵を握っていると考えた。

そこで本研究では、球状ベシクルに他のベシクルが内包されているマルチラメラベシクルの変形過程を実験的に撮影し、それを元にシミュレーションを用いて形状決定機構の解明を目指した。我々が用いた手法は動的三角格子モデル(1)であり、現在実験と最も良く一致する ADE model (2, 3)の効果を取り入れている。

その結果、先行研究(4)のシミュレーションで予測されていた二重の stomatocyte 状の陥入構造に加えて、新たにミトコンドリアで見られるようなひだ状の構造や、細胞分裂の初期に見られる胚のような区画構造を観察することに成功した。これらの形状は全て動的三角格子モデルを用いたシミュレーションによって再現することができた。また、単純な形状を仮定した理論モデルによって、判定的に形態変化を説明できることを示したため、合わせて報告する(5)。

### 参考文献

- (1) H. Noguchi and G. Gompper, Phys. Rev. E 72, 011901 (2005).
- (2) S. Svetina and B. Žekš, Eur. Biophys. J 17, 101 (1989).
- (3) A. Sakashita, N. Urakami, P. Ziherl, and M. Imai, Soft Matter 8, 8569 (2012).
- (4) O. Kahraman, N. Stoop, M. M. Müller, Nes J. Phys. 14 095021 (2012).
- (5) A. Sakashita, M. Imai, and H. Noguchi, arXiv:1309.3426v1 (2013)

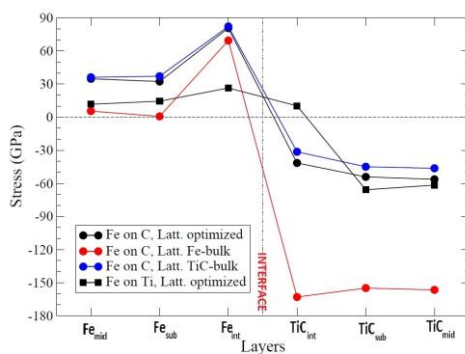
# Local Mechanical Properties of Iron –Precipitate Coherent Interfaces Using First-Principles Calculations

Vikas Sharma<sup>1</sup>, Shingo Tanaka<sup>1</sup>, Yoshinori Shiihara<sup>2</sup> and Masanori Kohyama<sup>1</sup>

<sup>1</sup>UBIQEN, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Ikeda, Osaka,

<sup>2</sup>Institute of Industrial Science, University of Tokyo, Meguro-ku, Tokyo

Transition-metal carbides or nitrides are used to improve the strength and mechanical properties of steel by precipitation or coating. Hence, it is important to understand the microstructural properties of iron/precipitate interfaces. In the present study, coherent interface between Fe and MC (M=Ti, Nb) with the orientation of  $\{001\}_{\text{Fe}}//\{001\}_{\text{MC}}$  and



$[100]_{\text{Fe}}//[110]_{\text{MC}}$  are dealt with. The calculations are performed using density-functional theory (DFT) employing the projector augmented wave (PAW) method<sup>1</sup>, implemented by QMAS (Quantum Materials Simulator) package<sup>2</sup>. Our main focus remains on the local-stress and local-energy distribution at the interface by using *ab initio* local-energy and local-stress schemes<sup>3</sup>. The local-energy and local-stress are

computed in the layer-by-layer regions parallel to the interface for the first time in such kind of interfaces. The distribution of local stress with respect to layers parallel to interface in the structures is found different in case of interface and corresponding surface cases. A large stress variation was observed around the interface region. Further, local elastic properties are obtained by analyzing the distribution of externally applied strain and local stress. The interfacial adhesion between the iron and MC slabs is examined for Fe-C and Fe-M bonding cases. Other basic properties viz. magnetic moment, density of states etc. are compared with earlier studies<sup>4-6</sup>

## References

- [1] P. E. Blöchl, *Phys. Rev. B*, **50** 17953 (1994); G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B*, **59** 1758 (1999)
- [2] <http://qmas.jp>
- [3] Y. Shiihara, M. Kohyama and S. Ishibashi, *Phys. Rev. B*, **81** 075441 (2010)
- [4] A. Arya and E. A. Carter, *J. Chem. Phys.*, **118** 8982 (2003)
- [5] T. Shishidou, J.-H. Lee, Y.-J. Zhao, A. J. Freeman and G. B. Olson, *J. Appl. Phys.*, **93** 6876 (2003)
- [6] J.-H. Lee, T. Shishidou, Y.-J. Zhao, A. J. Freeman and G. B. Olson, *Phil. Mag.*, **85** 3683 (2005)



## 酸化タングステン表面上での水素吸着・拡散機構の解析

阪大院工<sup>1</sup>、阪大院工付属アトミックデザインセンター<sup>2</sup>

岡 耕平<sup>1</sup>、中西 寛<sup>1</sup>、Wilson Agerico Diño<sup>1,2</sup>、笠井 秀明<sup>1,2</sup>

酸化タングステン(WO<sub>3</sub>)は水分解反応や水素生成をはじめとする様々な光触媒反応が観測され、注目を集めている[1]。これらの反応は、表面への水素の吸着・拡散反応が基本となっている。そのため、WO<sub>3</sub>表面での水素の吸着・拡散の挙動を理解することは、反応効率などを改良するうえで必要不可欠である[2]。

WO<sub>3</sub>表面など表面上の水素に関する研究は、一般には水素の電子状態のみに着目したものが多く、核の運動状態に関しては古典力学に基づく分子動力学による取り扱いがほとんどであった。しかし、水素の様な軽い元素では、非局在化やトンネル効果等の量子効果が顕著に働き[3,4,5]、これらの反応を解析することは従来の古典論に基づく認識では困難である。本研究では、水素の示す量子効果に着目し、解析を行った。量子効果を取り込んだ水素のシミュレーションにおいて、第一原理計算手法を電子状態計算に援用しつつ、開発中の原子核の量子状態計算コード[NANIWA]を用いた[6,7,8]。

まず、表面に飛来した水素原子-表面系の自由度を抽出し、その座標の関数として電子系のトータルエネルギーを、密度汎関数法をベースにした第一原理計算で算出して、水素原子-WO<sub>3</sub>表面のポテンシャルエネルギー超曲面(PES)を作成した。吸着サイトとしてO-O bridge サイトが最も安定的に吸着し、hollow サイトが最も不安定であることがわかった。次に、作成されたPESを用いて、原子核の量子性を取り込んだシミュレーションを行った。シミュレーションの結果、ゼロ点振動の影響により、O-O間の拡散は起こりうるが、bridge サイト-W間の拡散は低温では起こりにくいことがわかった。講演では、これらの電子論的起源についても述べる予定である。

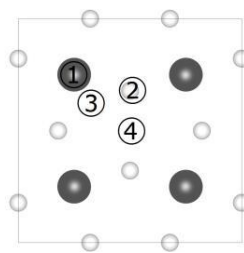


Fig 1 酸化タングステン(001)表面 黒丸:W,白丸:O

- ① W-top サイト
- ② O-top サイト
- ③ hollow サイト
- ④ O-O bridge サイト

文献

- [1]Wang J. et al, J. Am. Chem. Soc. 131, 12290 (2009)
- [2]Takeo A. et al, J. Phys. Chem. C, 111, 7574 (2007)
- [3]N. Ozawa. et al, J. Phys.: Condens. Matter 20 355006 (2008)
- [4]Y. Kubota. et al, J. Phys. Soc. Jpn, 79 014601 (2010)
- [5]Allan A. B. P. et al, J. J. Appl. Phys, 50 045701 (2011)
- [6] K. Nobuhara. et al, Sur. Sci 493 271 (2001)
- [7] K. Nobuhara. et al, J. Appl. Phys 96 5020 (2004)
- [8] N. Ozawa. et al, Surf. Interface. Anal. 40 1108 (2008)

## 原子球内ポテンシャル計算における高速高精度 Fourier 変換法の開発

横浜国大院工 小野頌太、大野かおる

我々は 3 次元の Fourier 成分から原子球内の球対称ポテンシャルを求める高精度近似計算法を提案し、第一原理計算プログラム TOMBO(本年度内に LDA 部分のソースコード公開予定)の高速化を行った。TOMBO の特徴は、Kohn-Sham(KS)波動関数を原子軌道(Atomic Orbital: AO)関数と平面波(Plane Wave: PW)関数の重ね合わせで表現する点にある。この特徴のため、孤立系および結晶系の電子構造計算において、基底数の少ない高効率計算が可能となる。一方、AO 関数が関与する行列要素計算を行うために、原子球内で定義される球対称ポテンシャル  $V_j(r_j)$  [ $r_j = |\mathbf{r} - \mathbf{R}_j|$  ( $\mathbf{R}_j$ は  $j$  番目の原子核位置)]を計算する必要がある。 $V_j(r_j)$ は、 $\mathbf{G}$ を逆格子ベクトル、 $\tilde{v}(\mathbf{G})$ を KS ポテンシャルの滑らかな成分の Fourier 成分とするとき、次式で定義される。

$$V_j(r_j) = \sum_{\mathbf{G}} \tilde{v}(\mathbf{G}) \exp(i\mathbf{G} \cdot \mathbf{R}_j) \frac{\sin|\mathbf{G}|r_j}{|\mathbf{G}|r_j} \quad (1)$$

現在のプログラムでは、Fourier 空間内のメッシュ数が  $64^3$ 、原子球内の動径方向のメッシュ数が 621 なので、式(1)の計算に必要な演算数は 1 原子当たり  $64^3 \times 621$  である。このため、例えば  $\text{N}_2$  分子の電子状態計算を行うとき、式(1)の計算にかかる時間は総計算時間の 80%以上を占める(表 1)。

我々は計算時間を短縮させるために、式(1)の  $\mathbf{G}$ に関する和を  $\mathbf{G}$ の角度に関する和と  $\mathbf{G}$ の絶対値に関する和の 2 つに分け、次式で与えられる球対称ポテンシャルを導出した。

$$V_j(r_j) \approx \sum_i \left[ \sum_{\mathbf{G}'} \tilde{v}(\mathbf{G}') \exp(i\mathbf{G}' \cdot \mathbf{R}_j) \right] \frac{\sin G_i r_j}{G_i r_j} \quad (2)$$

ここで、内側の和は  $G_i \leq |\mathbf{G}'| \leq G_{i+1}$  [ $G_i = G_0 + i\Delta G$  ( $G_0$ と  $\Delta G$ はパラメータ)]を満たす  $\mathbf{G}'$  について、外側の和は  $i = 1$ から  $n$ ( $\approx 4000$ )まで取られ、それぞれ  $\mathbf{G}$ の角度に関する和と絶対値に関する和に対応する。式(2)の演算数は  $n \times 621$  程度と見積もられるため、式(2)を用いる場合の計算時間は、式(1)を用いる場合に比べて大幅に減少する。

式(2)の近似表式の有効性を検証するため、 $\text{N}_2$  分子の全エネルギーと結合長を見積もった。計算には FUJITSU-PRIMEHPC FX10 (1core/16threads)を利用した。表 1 に示されるように、式(2)を用いることで、球対称ポテンシャル計算に必要な時間が 10 分の 1 程度に減少し、計算時間が大幅に短縮した。さらに、式(1)と式(2)を用いて評価した全エネルギーおよび結合長の値との差は、0.01%の誤差の範囲内で一致した。本成果によって、プログラム TOMBO の実用化に近づいた。

表 1: 式(1), (2)の表式を用いた場合の  $\text{N}_2$  分子の電子状態計算に必要な時間と全エネルギーと結合長

|                  | 式(1)         | 式(2)         |
|------------------|--------------|--------------|
| $V_j(r_j)$ の計算時間 | 1035 s       | 97 s         |
| 総計算時間            | 1191 s       | 254 s        |
| 全エネルギー           | -108.3841 eV | -108.3914 eV |
| 結合長              | 1.1500 Å     | 1.1497 Å     |

## 高性能蓄電デバイス開発に向けた理論的基盤研究

日産自動車<sup>1</sup>、北陸先端大<sup>2</sup>、産総研<sup>3</sup> 大協創<sup>1</sup>、T.V.T. Duy<sup>2</sup>、尾崎泰助<sup>2</sup>、大谷実<sup>3</sup>

【目的】リチウムイオン電池 (LIB) の性能支配因子の中で、電極・電解質界面における分子レベルでの構造や現象は電極のサイクル耐性や出力、充電速度に大きな影響を及ぼす要因である。例えば、電極表面に生成する被膜構造は電池の充放電特性や劣化に、また、界面におけるリチウムイオンの溶媒和構造変化は充放電速度に大きな影響を与える。それら電気化学現象の機構解明は、より戦略的な高性能電池開発を界面デザインに基づいて推進する上で強く求められる要件である。本研究では、第一原理分子動力学 (FPMD) シミュレーションに基づいて電極・電解質界面での現象を分子スケールで解明するべく、必要なシミュレーションツールの整備・開発を行い、更に、開発したツールに基づいて LIB の各種界面系についての動力学シミュレーションを実行した。

【方法】大規模 FPMD 計算に基づく電気化学系シミュレーションを実現するため、我々はこれまでに ESM 法[1]の O(N)法への導入[2]や複数熱浴に基づく MD 計算の温度制御法の導入、並列計算の高効率化を第一原理計算コード OpenMX[3]に基づいて行ってきた。今回は更に、大規模系計算に適用可能な電子状態解析手法の開発を行った。また、開発したツールに基づき、Li 金属負極表面における被膜生成反応や Si 系負極・電解質界面における Li イオンの挙動のシミュレーション (電解質はいずれもプロピレンカーボネート (PC) + LiBF<sub>4</sub>) を「京」で行った。

【結果】(1) 大規模系計算に適用可能な電子状態解析手法の開発 : FPMD 計算で確認された反応の機構を詳細に解析することは、一般的に計算規模の増大に伴って困難となる。我々は、O(N)法のスキームに基づいて Natural Bond Orbital (NBO) [4]を系内の任意の領域において計算する手法を開発し、大規模サイズモデルにおける局所領域の電子状態を効率的に抽出してシミュレートされた反応の機構を軌道相互作用の観点から効率的に解析することを可能とした[5]。

(2) Li 金属負極表面における被膜生成反応 : 実験で確認されている主な被膜成分および副生成物の生成過程がシミュレートされた。特に PC 分子の分解による CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>イオンの生成機構を NBO 解析に基づいて詳細に解析し、Li 負極由来の還元電子が同分子の分解反応を引き起こす過程を明らかにした。

(3) Si 系負極・電解質界面における Li イオンの挙動 : SiO<sub>2</sub>被覆された Si 負極の場合、充電条件下で脱溶媒和して SiO<sub>2</sub>表面に吸着した Li が、その後 SiO<sub>2</sub>の結合を組み替えながら拡散していく複雑な挙動をシミュレーションで確認した。これは充電過程における負極の lithiation や被膜生成過程の機構がその負極表面の状態に大きく依存する可能性があることを示唆するものである。

【文献】[1] M. Otani and O. Sugino, Phys. Rev. B **73**, 115407 (2006). [2] T. Ohwaki, M. Otani, T. Ikeshoji, and T. Ozaki, J. Chem. Phys. **136**, 134101 (2012). [3] <http://www.openmx-square.org/> [4] A.E. Reed, L.A. Curtiss, F. Weinhold, Chem. Rev. **88**, 899 (1988). [5] T. Ohwaki, M. Otani, and T. Ozaki, to be submitted.

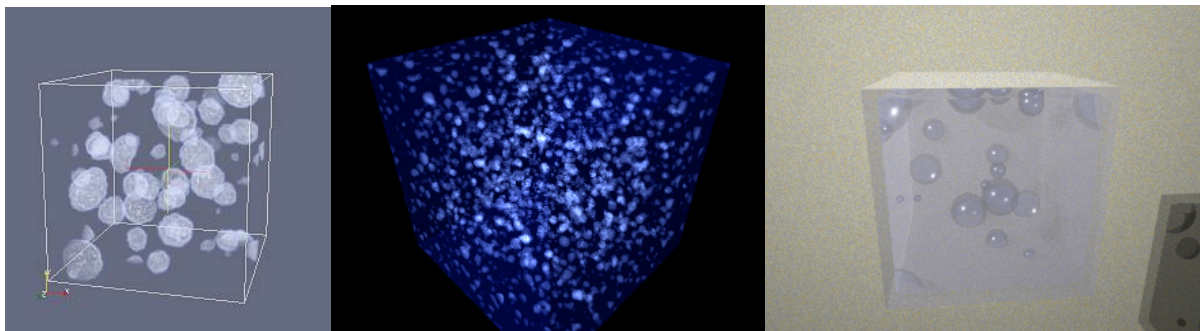
## 気泡の可視化 ～「無い」ものを可視化する～

東大物性研 渡辺宙志

数値計算において、データの可視化は起きている物理現象の直感的な理解を助け、時には新たな現象発見のきっかけになるなど重要な問題であるが、問題に応じて適切な可視化手段を選ぶ必要があり、そこに一般的な指針はない。また、大規模計算においては扱うデータ量も膨大となり、全てのスナップショットのデータを保存するのは現実的ではないため、なにがしかの粗視化を *on the fly* で行い、粗視化されたデータを保存することで後の可視化に供することになる。従って、大規模計算実行時にはどのような可視化を行うかもあわせて決めておく必要がある。

我々は急減圧液体における多重気泡生成の全粒子計算を行っているが、その気泡生成過程の可視化には様々な困難が伴う。特に全粒子計算においては我々が保持する情報は全粒子の運動量と座標のみであり、その情報から気泡を可視化するためには、どこが気相でどこが液相かを定義する必要があり、さらに、気相/液相の判定後の可視化方法も非自明である。

本講演では、気泡の可視化について様々な試行錯誤を繰り返した経験と、現在行っている可視化方法について紹介を行う。



可視化の例：

(左) ParaView による、簡易界面検出+ボリュームレンダリング

(中央) POV-Ray による、発光型ボリュームレンダリング

(右) POV-Ray による、クラスタリングによる気泡同定+レイトレーシング

文献

[1] H. Watanabe, M. Suzuki, and N. Ito, Phys. Rev. E **82**, 051604 (2010)

[2] H. Watanabe, M. Suzuki, and N. Ito, Comput. Phys. Commun. in press.

**Fe フタロシアニンにおける d 電子配置：  
単一分子から基板吸着、結晶化に至る電子構造と遷移**

三重大院工<sup>1</sup> 北岡幸恵<sup>1</sup>、坂井俊夫<sup>1</sup>、中村浩次<sup>1</sup>、秋山亨<sup>1</sup>、伊藤智徳<sup>1</sup>

低消費・高効率な次世代電子デバイス開発に向け、これらの性能要求に耐え得る素子材料の探索・合成と共に、バルク材料では到達しえない性能向上のための原子・分子素子に向けてのダウンサイジング化が加速されている。その有力な材料候補のひとつとして有機金属錯体が挙げられ、固体基板上の単一分子や分子結晶における物性とその制御が重要な鍵を担うものと考えられている。我々は、優れた構造安定性と $\pi$ 共役による基板吸着性の利点を持つ金属フタロシアニンに注目しており、この分子は、さらに、遷移金属種置換により電気的・光学的・磁気的性質が制御可能な有機金属錯体として知られている。本発表では、d 電子軌道の多様性を持つ Fe フタロシアニン (FePc) に対して、単一分子状態、基板吸着した単一分子状態、分子結晶における電子構造の第一原理計算結果について報告する。FePc 分子は、フタル酸イミドが窒素原子で架橋された構造をもつ環状の  $D_{4h}$  平面分子であり、中心に配位する  $Fe^{2+}$  イオンが錯形成をする。分子軌道はこの  $Fe^{2+}$  に依存し、 $Fe^{2+}$  の d 電子配置による多重項構造が物性を決定する重要な電子構造因子となっている。しかし、基底状態における電子配置として、 ${}^3E_g$ ,  ${}^3B_{2g}$ ,  ${}^3A_{2g}$  の 3 つの構造が実験のみならず第一原理計算においても、研究者により別々に提案されるなど不明な点が未だ残されている。そこで我々は、電子配置の安定性を第一原理全エネルギー計算により決定することを目的として、ラグランジュ未定乗数法を導入した拘束密度汎関数法に基づき、種々の電子配置の全エネルギーをセルフコンシステントに求める FLAPW 計算手法[1-3]を開発し、FePc 系に適用した。単一分子では、全エネルギーの比較から、分子軌道論から推測される  ${}^3A_{2g}$  が基底状態となることを示した。MgO(001)基板上では、MgO 基板の O 2p 軌道と FePc の Fe 3d 軌道間に生じる弱い軌道混成により、基底状態が  ${}^3B_{2g}$  に遷移すること、特に、この電子配置軌道は MgO バンドギャップ中の局在軌道として現れ、STM/STS 実験による観測が可能であることを示唆した。引き続き、FePc 結晶における電子配置決定を試みた。これまでの実験で確認された 2 種の  $\alpha$  と  $\beta$ -結晶構造に対して、本計算でも、基底状態がそれぞれ  ${}^3E_g$ 、 ${}^3A_{2g}$  構造となり、実験結果を再現することができ、結晶構造変化 (構造多形) による電子配置の遷移が  $Fe^{2+}$  イオンの分子内及び隣接分子から生じる配位子場に起因することを明らかにした。

[1] K. Nakamura, Y. Kitaoka, T. Akiyama, T. Ito, M. Weinert and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **85**, 235129 (2012).

[2] Y. Kitaoka, K. Nakamura, T. Akiyama, T. Ito, M. Weinert and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **87**, 205113 (2013).

[3] Y. Kitaoka, T. Sakai, K. Nakamura, T. Akiyama and T. Ito, J. Appl. Phys. **113**, 17E130 (2013).

# ナノ構造体光励起ダイナミクス並列計算プログラム GCEED の開発とその応用

分子研<sup>1</sup> 野田真史<sup>1</sup>、石村和也<sup>1</sup>、信定克幸<sup>1</sup>

## [目的]

光・電子機能を持った量子デバイスの例として、プラズモン導波路、化学・バイオセンサー、光触媒や太陽電池などが挙げられる。これらの機能の理解には、数～数十 nm 程度のナノ構造体における光照射後の電子ダイナミクスの解明が重要な役割を果たすと考えられるが、第一原理計算によってその詳細を明らかにした研究例は殆ど存在しない。そこで我々は電子ダイナミクスの大規模並列計算プログラムを開発し、ナノ構造体光励起ダイナミクスに適用することを目指す。

## [研究手法]

これまで我々が開発してきた実時間・実空間密度汎関数理論に基づく電子ダイナミクス法では、差分法によって一電子 Kohn-Sham 方程式を解き、また時間発展は簡便なテーラー展開を用いている。このため、固有値対角化や高速フーリエ変換を必要とせず、大規模並列化に適している。MPI/OpenMP ハイブリッド並列計算アルゴリズムを開発、実装し、超並列計算プログラム GCEED(Grid-based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics)を作成した[1]。

## [結果]

京コンピュータを用いて 1920 原子からなる fcc-C<sub>60</sub> クラスターの光学応答を計算した。図 1 に全実行時間および演算時間についての並列加速度を示す。全実行時間については比較的良いスケーラビリティを示している。演算については 7680 ノードでもほぼ均等に分散できているため、全実行時間の並列加速度の理論値からの差異は通信に起因する。特にデータ量がノード数に依存しない通信が、ノード数の増加とともに大きな割合を占めるためである。また、計算された吸収スペクトルは実験値[2]と良い一致を示した。コアシェル型のナノ構造体や金クラスターの光励起ダイナミクスについての研究も、現在進行中である。

## [謝辞]

本研究の一部は筑波大学の矢花一浩教授、朴泰祐教授と共同で進められているものである。

## 文献

[1] M. Noda, K. Ishimura, K. Nobusada, K. Yabana, T. Boku; submitted to J. Comput. Phys.

[2] S. Kazaoui, R. Ross, N. Minami; Solid State Commun., **90**, 623 (1994).

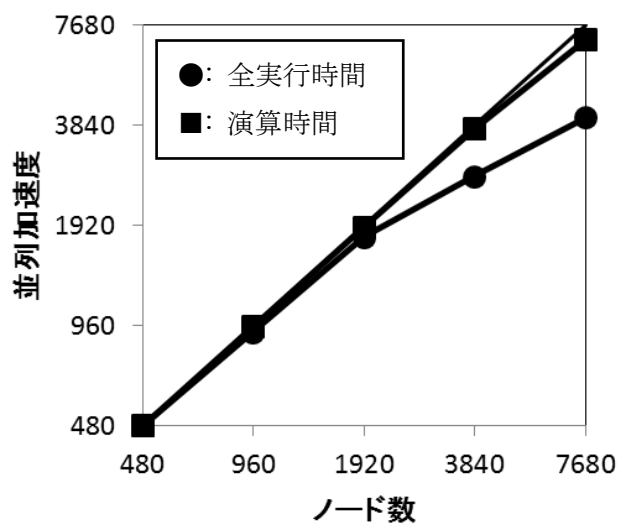


図 1: fcc-C<sub>60</sub> クラスターの光学応答計算に関する並列加速度。

## Na<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub> に対する有効スピン模型の2次元密度行列繰り込み群法による研究

京大基研<sup>1</sup>、理研計算科学研究機構<sup>2</sup> 新城一矢<sup>1</sup>、曾田繁利<sup>2</sup>、遠山貴己<sup>1</sup>

スピン軌道相互作用はそれが重要な役割を果たすトポロジカル絶縁体の発見以降、大きな注目を集めているが、従来広く議論されてきたのは電子相関がない場合についてである。これは、トポロジカル絶縁体状態の発現そのものには電子相関が本質的でないからであり、半導体の系を扱うにはそれで十分であった。しかし、電子相関とスピン軌道相互作用が競合する候補物質として Ir 酸化物系が提案されて、その両者の競合によってスピン液体を含む新奇な量子相が現れることがわかり、重要な研究課題になっている。

例えば、層状 Ir 酸化物 A<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub>(A=Li,Na)では 5d 遷移金属 Ir がハニカム格子を形成し、そのスピン模型として Kitaev-Heisenberg 模型が提案されている[1-3]。この模型は等方的な Heisenberg 型の相互作用項と異方的な Kitaev 型の相互作用項をもち、後者はスピン軌道相互作用によってスピンの SU(2)対称性が壊れた、新しいタイプのフラストレーションを導入する。Kitaev 項はスピン液体基底状態を生み出し、十分大きい極限では厳密なスピン液体状態となる[4]。Heisenberg 項が大きくなるに連れて基底状態はストライプ型反強磁性相に移り、さらに大きくなるとネール反強磁性相になる。帯磁率の温度変化や X 線散乱、中性子散乱の実験結果から Na<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub> の基底状態の磁気構造はジグザグ型反強磁性である可能性が高いことが示された[5-7]。しかし、このような磁気秩序は理論的に Kitaev-Heisenberg 模型によって説明できない。そこで、最近接を超えた相互作用や Ir 周りの酸素八面体の trigonal distortion を導入する必要がある。我々は、これらの効果を取り入れた拡張された Kitaev-Heisenberg 模型を 2次元密度行列繰り込み群法を用いて研究している。スピン相関関数の計算から、ネール型、ストライプ型、ジグザグ型の反強磁性相の基底状態が現れることを確認し、Na<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub> に対応するパラメータ領域でジグザグ型反強磁性秩序が現れることがわかった。

### 文献

- [1] G. Jackeli and G. Khaliullin; Phys. Rev. Lett. **102**, 017205 (2009).
- [2] A. Shitade *et. al.*; Phys. Rev. Lett. **102**, 256403 (2009).
- [3] J. Chaloupka *et. al.*; Phys. Rev. Lett. **105**, 027204 (2010).
- [4] A. Kitaev; Ann. Phys. (N.Y.) **321**, 2 (2006).
- [5] Y. Singh and P. Gegenwart; Phys. Rev. B **82**, 064412 (2010).
- [6] F. Ye *et. al.*; Phys. Rev. B **85**, 180403 (2012).
- [7] S. K. Choi *et. al.*; Phys. Rev. Lett. **108**, 127204 (2012).

## 遷移金属酸化物における Rashba 効果の第一原理計算

金沢大理工<sup>1</sup>、金沢大自然<sup>2</sup> 石井史之<sup>1</sup>、大西峰志<sup>2</sup>、西田美穂<sup>2</sup>、小鷹浩毅<sup>2</sup>、斎藤峯雄<sup>2</sup>

電場に起因したスピン分裂を引き起こす Rashba 効果は、電界効果スピントランジスタ (Spin-FET) などのスピントロニクス応用の観点から注目されており [1,2]、物質表面や反転中心を持たない結晶で発見されている [3]。そのようなスピン分裂を示す候補物質の一つとして強誘電体がある。強誘電体は自発的な電気分極を有するため、温度変化によるラシュバ効果の消失・出現が期待される。また、電気分極の方向は外部電場や圧力によって制御可能であり、様々なスピントロニクス応用が期待される。我々はこれまで、スピン軌道相互作用を考慮した第一原理電子状態計算と波数空間でのスピン解析 [4] によって、 $\text{PbTiO}_3$  バルクの X 点において Rashba 効果を確認し、Rashba 係数  $\alpha$  の電気分極依存性を明らかにした。

本発表では、密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算を用いて、 $\text{BaTiO}_3$  バルクに対して、電気分極の大きさや方向を変化させた際の電子状態を調べた結果を報告する。 $\text{BaTiO}_3$  は電気分極を生ずると、図(a), (b)に示したように、価電子帯の  $\Gamma$  点で3つのバンドがそれぞれスピン分裂し、波数空間で複雑なスピン分布を示す。また、分極方向を  $\langle 001 \rangle \rightarrow \langle 011 \rangle \rightarrow \langle 111 \rangle$  と変化させた際、波数空間の  $k_x$ - $k_y$  面におけるスピン分布に  $z$  成分が現れることが確認された。さらに群論的考察を踏まえ、より詳しくスピン分布に関して議論した。また、遷移金属酸化物人工超格子である  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  界面や  $\text{LaMnO}_3/\text{SrTiO}_3$  界面における反転対称の破れが誘起する Rashba 効果についても調べたのでそれらについても報告する。

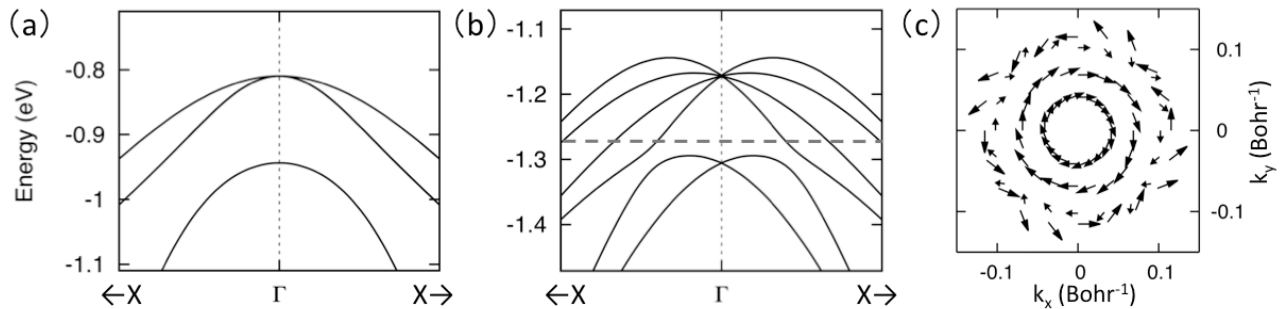


図 1.  $\text{BaTiO}_3$  のバンド構造と  $k$  空間でのスピン分布。

- (a) : 電気分極がない時の  $\Gamma$  点付近のバンド図、(b) : 電気分極  $\langle 001 \rangle$  がある時  
(c) : (b) の破線における等エネルギー面でのスピン分布

文献

- [1] E. I. Rashba, Sov. Phys. Solid State **2**, 1109 (1960).  
[2] S. Datta and B. Das, Appl. Phys. Lett. **56**, 665 (1990).  
[3] K. Ishizaka et al., Nature Mater., **10**, 1038 (2011).  
[4] H. Kotaka, F. Ishii, and M. Saito, Jpn. J. App. Phys., **52**, 035204(2013).



## スラブ系電子構造計算の開発と応用

金沢大学理工、小田竜樹、小幡正雄、中村慎、Van-Minh Vo、石井史之、斎藤峯雄

スピントロニクスへ貢献するナノサイズの電子デバイス材料を対象とした理論研究は、第一原理からの大規模計算を実現し、物理量を予測する成果を得ることで、開発研究において本当の意味で実験と対等で互いに補完的関係を確立して、新規デバイス開発の手がかりを供給することができる。低消費電力社会で必要とされる電界駆動型の磁気メモリ開発等において、磁気異方性エネルギー(MAE)計算などの理論計算が必要不可欠であることが証明されることは、パイロット的研究期間を圧縮する新しい開発形態を生み出すと期待される。また極性半導体の電子構造について、スラブによる解析を開始した。

電界駆動型の磁気メモリ材料の設計指針を得るために、電界印加を可能にした密度汎関数法に基づいた計算コードを用いて、界面電子状態あるいは接合系薄膜の電子状態に関する高精度の知見を得ることを目的とする。界面(磁性合金層/誘電体層)系または磁気トンネル接合(磁性合金層/誘電体層/磁性合金層)系において、磁気メモリの柱となる磁気異方性とその電界変調量の見積りにより材料探索を遂行する。そのために計算で得られる MAE の定量性を実証することが一つの一里塚となる。また電界印加により面直磁気と面内磁気に移り変わり得るが、その閾値電界を予測することにより材料の有用性を判断する知見となる[1]。

次世代デバイス材料の候補である ZnO は、極性ワイドギャップ半導体として知られ、酸化物エレクトロニクス研究の圧電(ピエゾ)素子や光学素子としても有望である。また Mg を混入した MgZnO との界面を作ることにより良好な2次元電子系を創製することに成功している[2]。そこでこのような界面をスラブによりモデル化するため、ZnO の電子構造計算を実施した。スラブにてモデル化することで接合材料の計算科学的アプローチを行い易くする可能性があり、実際の実験条件を模倣した計算を導入し易くなると考えられる。計算は、密度汎関数法を用いて行った。ZnO 表面層と内部層に相当するスラブ内バンド図や状態密度を評価した。内部層においては、結晶のバンドギャップに相当するエネルギーギャップが存在していることを確認した。またウルツ鉱型構造を反映した電気分極を見出した。

文献

[1] M. Tsujikawa, S. Haraguchi, T. Oda, J. Appl. Phys., **111**, 083910 (2012).

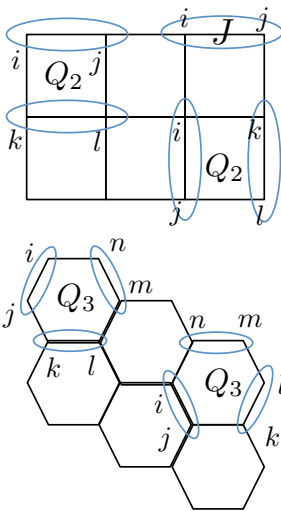
[2] A. Tsukazaki et al., Nature Material **9**, 889 (2010).

## SU(N)一般化ハイゼンベルク模型の有限温度転移

兵庫県立大工<sup>1</sup>、京大情報<sup>2</sup>、RIST<sup>3</sup>、東大物性研<sup>4</sup>

鈴木隆史<sup>1</sup>、原田健自<sup>2</sup>、松尾春彦<sup>3</sup>、藤堂眞治<sup>4</sup>、川島直輝<sup>4</sup>

2次相転移は、転移点前後で系の持つ対称性の一部が自発的に破れることで特徴付けられる。近年このルールに沿わない量子連続相転移（脱閉じ込め転移）[1]の可能性が指摘され注目を集めている。この脱閉じ込め転移が期待される模型として、磁性相-Valence Bond Solid(VBS)相間を直接転移する模型が候補として知られている。これまで脱閉じ込め転移の検証として、多体相互作用を含む2次元SU(N)ハイゼンベルク模型（SU(N)一般化ハイゼンベルク模型）に対する量子モンテカルロ(QMC)計算が数多く行われている[2]。絶対零度の振る舞いに着目した研究と同様、本模型の有限温度の振る舞いについても一部調べられている[3]。本模型ではVBS相への有限温度相転移が存在し、転移点で格子の回転対称性破れに関連する臨界現象が見られると期待されている。正方格子かつSU(N)スピンの自由度Nが2の場合は、Z<sub>4</sub>（90°回転対称性を破る）場を持つ古典2次元XY模型と同じ臨界現象を示すことがQMC計算から確認されている[4]。



図：正方格子（上）、蜂の巣格子（下）上のSU(N)一般化ハイゼンベルク模型

本研究では正方格子、蜂の巣格子で4体、6体相互作用を持つSU(N)一般化ハイゼンベルク模型に注目し、N=3, 4についてVBS相への有限温度転移について調べた。ハミルトニアンはそれぞれ

$$H = -J \sum_{\langle ij \rangle} C_{ij} - Q_2 \sum_{\langle ijkl \rangle} C_{ij} C_{kl} \quad (1)$$

$$H = -J \sum_{\langle ij \rangle} C_{ij} - Q_3 \sum_{\langle ijklmn \rangle} C_{ij} C_{kl} C_{mn} \quad (2)$$

で記述される。ここで $C_{ij}$ は*i, j*格子上の2スピンに対する1重項状態への射影演算子で、SU(N)スピンに対する演算子 $S_i$ を用いて $C_{ij} = 1/4 \cdot S_i S_j$ で定義される。SU(N)スピンの自由度Nや格子形状を変えた場合や、 $Q/J$ を脱とじ込め転移が期待される量子臨界点に近づけた場合にVBS相への有限温度転移の臨界現象がどのように変化するかについて、QMC計算から見積もった。その結果、有限温度転移に関する臨界現象は、(1) 正方格子の場合：Nに依らず $Q/J$ の比に応じて $\nu$ が変化する古典XY+Z<sub>4</sub>模型、(2) 蜂の巣格子の場合：3状態Potts模型、

であることを明らかにした。

文献

[1] T. Senthil, et al., Science **303**, 1490 (2004); M. Levin and T. Senthil, Phys. Rev. B **70**, 220403(R) (2004). [2] A. W. Sandvik, Phys. Rev. Lett. **98**, 227202 (2007); R. G. Melko and R. K. Kaul, Phys. Rev. Lett. **100**, 017203 (2008); J. Lou, A. W. Sandvik, and N. Kawashima, Phys. Rev. B **80**, 180414 (2009); R. K. Kaul and A. W. Sandvik, Phys. Rev. Lett. **108**, 137201 (2012); K. Harada, et al., arXiv:1307.0501.など [4] S. Jin and A. W. Sandvik, Phys. Rev. B **87**, 180404(R) (2013).

## ハイブリッド量子古典シミュレーションによるシリカガラス中の水分子反応

東大物性研<sup>1</sup>、名工大院<sup>2</sup> 河野貴久<sup>1,2</sup>、尾形修司<sup>2</sup>

シリカ(SiO<sub>2</sub>)ガラス中に含まれる水分子は、ガラスの強度を弱めたり劣化を促進したりすることが知られている。引張応力下において H<sub>2</sub>O と -Si-O-Si- が反応し、-Si-OH と HO-Si- を作り -Si-O-Si- 結合を切断することが推測されている。結合切断による物性への影響やクラック初期過程の解明として、応力下のシリカガラスにおいて水分子による -Si-O-Si- 結合の切断の反応過程を調べることも重要である。

本研究では、シリカガラス中に含まれる水分子の移動と水分子による -Si-O-Si- 結合の切断反応をハイブリッド量子古典シミュレーションで調べた。ハイブリッド量子古典法では、シリカガラス中の水分子とその周辺領域は量子計算領域とし、残りの領域は古典計算領域として扱った。各領域の接続方法は、buffered-cluster 法[1]を用いた。量子計算領域は、実空間密度汎関数法(RGDFT コード)を用いた。古典計算領域の SiO<sub>2</sub> ポテンシャルは Tadaka ポテンシャル[2]を用いた。シリカガラスの初期構造は古典 MD 計算により求めて、ガラス中に水分子を入れ、圧縮・引張応力下において水分子反応を調べた。また比較のため、シリカ結晶( $\alpha$ -quartz)においても同様に水分子反応を調べた。

シミュレーション結果では、シリカガラスの場合、空隙で 2 つの水分子が会合し、系の圧縮により水分子間でプロトン移動(H<sub>2</sub>O + H<sub>2</sub>O → OH<sup>-</sup> + H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>)が起こり、-Si-O-Si- 結合の切断 (-Si-O-Si- + OH<sup>-</sup> + H<sub>3</sub>O<sup>+</sup> → -Si-OH + HO-Si- + H<sub>2</sub>O)が起こることが観察された。一方、シリカ結晶の場合は水分子による結合破壊は見られなかった。今後、シリカガラスの員環構造や空隙サイズなどを含めた解析を行う予定である。

文献

[1] S. Ogata; Phys. Rev. B 77 045348 (2005)

[2] A. Takada, et al.; J. Non-Cryst. Sol., 354 181-187 (2008)

# A decomposition method with minimum communication amount for parallelization of multi-dimensional FFTs

Truong Vinh Truong Duy<sup>1,2</sup>, Taisuke Ozaki<sup>1</sup> JAIST<sup>1</sup>, University of Tokyo<sup>2</sup>

We present a decomposition method for the parallelization of multi-dimensional FFTs with two distinguishing features: adaptive decomposition and transpose order awareness for achieving the smallest communication amounts compared to previously proposed methods.

In our method, the FFT data is decomposed based on a row-wise basis that maps the multi-dimensional data into one-dimensional data, and translates the corresponding coordinates from multi-dimensions into one dimension so that the one-dimensional data can be divided and allocated equally to the processes using a block distribution. As a result and different from previous works that have pre-defined dimensions of decomposition, our method can adaptively decompose the FFT data on the lowest possible dimensions depending on the number of processes to minimize the communication amount in the first place. In addition, this row-wise decomposition offers plenty of alternatives in data transpose, and different transpose order results in different amounts of communication. By analyzing all possible cases for transpose order, we find out the best transpose orders with the smallest communication amounts for 3-D, 4-D, and 5-D FFTs [1,2].

Based on the method, we develop a general parallel software package for the most popular 3-D FFT called OpenFFT [3], which has its roots in OpenMX [4]. Theoretical and numerical results show good performance and scaling properties of our package in comparison with other parallel packages (Figs. 1 and 2).

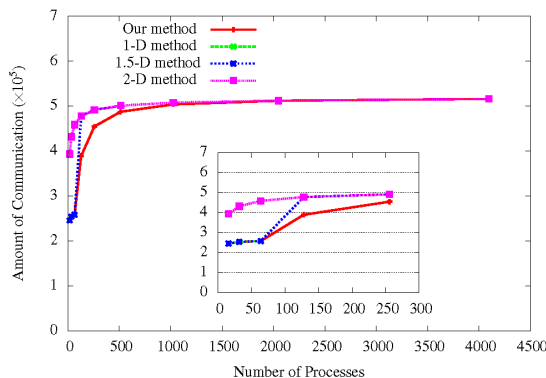


Fig. 1. Theoretical comparison of amount.

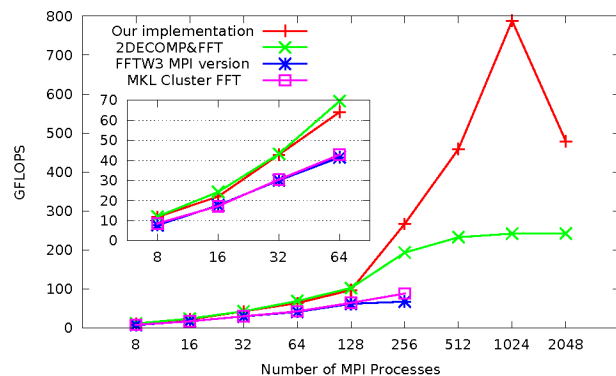


Fig. 2. Numerical comparison of GFLOPS.

## References

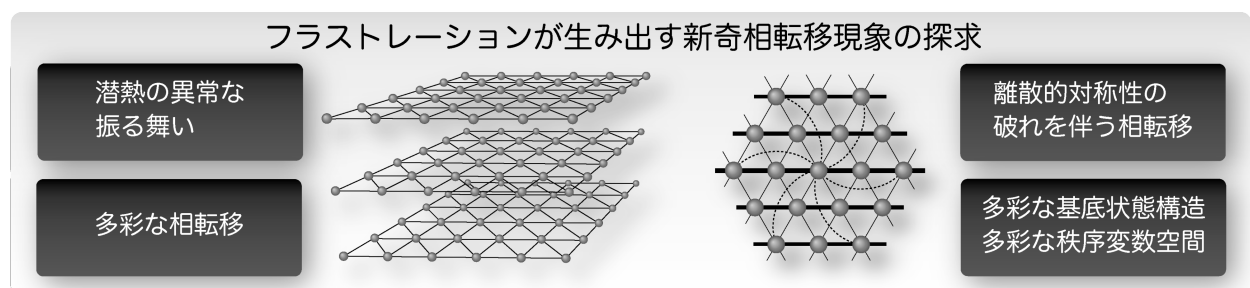
- [1] T.V.T. Duy, T. Ozaki; *Comput. Phys. Commun.* 185, 153-164 (2014).
- [2] T.V.T. Duy, T. Ozaki; *Comput. Phys. Commun.* (accepted).
- [3] OpenFFT: Open source parallel library for 3-D FFTs, <http://www.openmx-square.org/openfft>.
- [4] OpenMX: Open source package for Material eXplorer, <http://www.openmx-square.org/>.

## フラストレーションが生み出す新奇相転移現象の探求

東大院理<sup>1</sup>、物材機構<sup>2</sup>、東大物性研<sup>3</sup> 田中 宗<sup>1</sup>、田村 亮<sup>2</sup>、川島 直輝<sup>3</sup>

フラストレーション系における相転移やダイナミクスは統計物理学や物質科学における興味深い現象の一つである。最近になり、フラストレーション系特有の秩序構造を起源とした、新しい機能性(マルチフェロイクスやスキルミオン格子など)が実験的にも観測されている。そのため、新奇相転移現象を大規模数値計算で探求することは、理論物理学の興味にとどまらず、実験科学にとっても重要な課題である。

我々は、三角格子反強磁性ハイゼンベルク模型を例として、特徴的な磁気構造と相転移現象の関係を探求してきた。第一に、最近接相互作用と第三近接相互作用のある2次元三角格子反強磁性ハイゼンベルク模型に1軸性歪みを導入した場合に見られる、 $Z_2$ 渦転移と2回対称性の破れを伴う2次相転移の同時発生現象が挙げられる[1]。この模型の秩序変数空間は $SO(3) \times Z_2$ であり、それぞれの秩序変数空間に対応する欠陥が起因となった相転移が同じ温度で生じることを見出した。第二に、競合する複数の相互作用が存在する積層三角格子反強磁性ハイゼンベルク模型に見られる特異な潜熱の振る舞いである[2]。系の有効的な相互作用が強くなると潜熱が大きくなることが期待されるが、本模型ではこれと逆の振る舞いを観測した。またこの模型の秩序変数空間は $SO(3) \times C_3$ であり、一つの温度で $SO(3)$ 対称性と $C_3$ 対称性が同時に破れていることを確認した。第三に、上記で見られる新しいタイプの離散的対称性の破れを伴う相転移を記述する基礎模型(透明状態のあるPotts模型)の構築[3-6]である。連続スピン系における励起構造を表現する一つの方法として透明状態を提案した。論文[6]では、離散的対称性の破れを伴う相転移を引き起こす三角格子反強磁性ハイゼンベルク模型と透明状態のあるPotts模型の対応を検討した。



文献

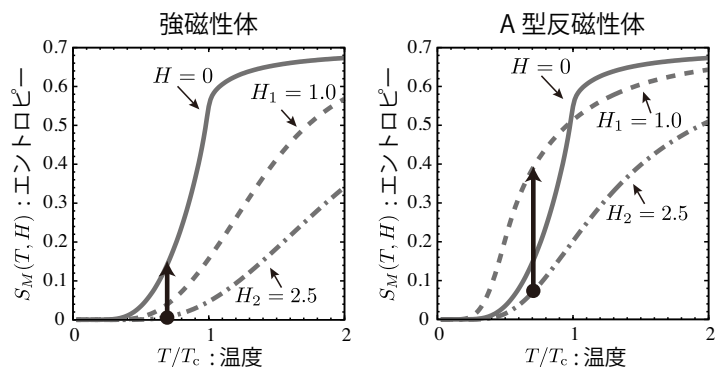
- [1] R. Tamura, S. Tanaka, and N. Kawashima; Phys. Rev. B, **87**, 214401 (2013).
- [2] R. Tamura and S. Tanaka; to appear in Phys. Rev. E.
- [3] R. Tamura, S. Tanaka, and N. Kawashima; Prog. Theor. Phys., **124**, 381 (2010).
- [4] S. Tanaka, R. Tamura, and N. Kawashima; J. Phys.: Conf. Ser., **297**, 012022 (2011).
- [5] S. Tanaka and R. Tamura; J. Phys.: Conf. Ser., **310**, 012025 (2011).
- [6] R. Tamura, S. Tanaka, and N. Kawashima; to appear in Proceedings of the 12th Asia Pacific Physics Conference.

## 反強磁性体における磁気熱量効果の特徴

物材機構 田村亮, 大野隆央, 北澤英明

磁気冷凍は磁性体を用いた冷凍技術である。磁性体に磁場を印加すると、磁気モーメントは磁場と平行に揃い、磁気エントロピーが減少する。一方で、磁場を切ると、磁気エントロピーは増加する。このように、磁性体に印加する磁場を制御することにより、磁気エントロピー変化を引き起こすことができ、外界と磁性体との間で熱量のやりとりが起こる（磁気熱量効果）。これを冷凍技術として応用する試みが磁気冷凍である。できるだけ小さな磁場によって、大きな磁気エントロピー変化を示す磁性体が磁気冷凍で用いる動作材料として適している。大きな磁気エントロピー変化は強磁性体の Curie 温度近傍で得る事ができ、強磁性体を用いた磁気冷凍がこれまで主に研究されてきた。近年、反強磁性体も磁気冷凍の動作材料として使用できる可能性を示す実験結果が報告された[1-3]。反強磁性体の Néel 温度近傍において大きな磁気エントロピー変化が観測されたのである。しかし、反強磁性体の磁気熱量効果の微視的特徴については、ほとんど調べられておらず、磁気冷凍の動作材料として反強磁性体にどのような利点があるのかについては分かっていない。

我々の目的は、統計力学的模型を用いた理論研究から、反強磁性体の磁気熱量効果の微視的特徴を明らかにする事である。強磁性秩序および、反強磁性秩序を示す立方格子上 Ising 模型の磁気エントロピーの温度依存性を Wang-Landau 法[4]を用いたモンテカルロシミュレーションにより計算した（下図）。通常、磁気冷凍では、有限磁場下におけるエントロピーと零磁場下におけるエントロピーの差を磁気エントロピー変化として評価している（左図中矢印： $H_2 \rightarrow 0$ ）。強磁性体では、この評価方法で得られる磁気エントロピー変化がどの温度であっても最も大きい。一方で、反強磁性体の Néel 温度以下では、温度を固定した際、ある有限の磁場で磁気エントロピーが最大となる。そのため、磁場を完全に切ってしまうのではなく、有限の磁場で留めることによって最大の磁気エントロピー変化を得ることができる（右図中矢印： $H_2 \rightarrow H_1$ ）。この磁場印加手順を用いることによって、反強磁性体は Néel 温度近傍に比べて、Néel 温度以下の温度において磁気冷凍材料として効果的であることが分かった[5]。



文献

- [1] T. Samanta, I. Das, and S. Banerjee; Appl. Phys. Lett., **91**, 082511 (2007).
- [2] W. J. Hu, J. Du, B. Li, Q. Zhang, and Z. D. Zhang; Appl. Phys. Lett., **92**, 192505 (2008).
- [3] L. Li, K. Nishimura, and H. Yamane; Appl. Phys. Lett., **94**, 102509 (2009).
- [4] F. Wang and D. P. Landau; Phys. Rev. Lett., **86**, 2050 (2001).
- [5] R. Tamura, T. Ohno, and H. Kitazawa; in preparation.

## ワーム更新による並列化量子モンテカルロアルゴリズム

東大物性研<sup>1</sup>、兵庫県立大工<sup>2</sup>、京大情報<sup>3</sup> 正木晶子<sup>1</sup>、鈴木隆史<sup>2</sup>、原田健自<sup>3</sup>、  
藤堂眞治<sup>1</sup>、川島直輝<sup>1</sup>

我々は幅広い量子格子モデル(ボーズ・ハバードモデルや負符号問題が出ない量子スピン系)に適用可能な、ワーム更新による量子モンテカルロ法の新しい並列化アルゴリズムを開発した。具体的には、ハミルトニアンに外場  $\eta$  を付加し調節することで複数ワームを挿入し、さらに配位空間にドメイン分割を施すことで、これまで困難とされてきた、非自明なワームアルゴリズムの並列化に成功した。

ベンチマークとして、2次元正方格子拡張ハードコア・ボーズ・ハバードモデルにこの手法を適用したところ、ほぼ100パーセントの高い並列化効率( $T_n$ を $n$ プロセッサ用いたときのCPU時間とした時、 $E(n) \equiv nT_1/T_n$ で定義)が得られた。また、計算緩和時間は並列数が増えるに従い緩やかに大きくなるが、従来のアルゴリズムと大きくは変わらない結果が得られた。ベンチマーク計算では最大で $10240 \times 10240$ 格子点の系を用いたが、これはシングルプロセッサのアルゴリズムでは実現しえないサイズであり、今後ヘリウム系や冷却原子系の実験などとの定量的比較に役に立つものと期待できる。本講演では有限温度での2次元正方格子拡張ハードコア・ボーズ・ハバードモデルのボーズ・アインシュタイン凝縮秩序変数の $\eta$ 及びシステムサイズ依存性の計算結果を紹介する。[1]

文献

[1] Akiko Masaki, Takafumi Suzuki, Kenji Harada, Synge Todo and Naoki Kawashima, arXiv:1307.0328 (2013).

## プラズモン支援超伝導のための密度汎関数理論: 転移温度計算手法開発とその応用

東大院工<sup>1</sup>、PRESTO<sup>2</sup> 明石遼介<sup>1</sup>、有田亮太郎<sup>1,2</sup>

超伝導物質はその組成・構造に応じて様々な超伝導転移温度( $T_c$ )を示すが、この物質ごとに異なる  $T_c$ を一貫した理論・計算手法で記述することは極めて難しい。超伝導機構は一般に物質中の電子・格子および電子・電子相互作用の込み入った協調・競合に基づくが、それらの相互作用の性質は物質の電子構造・格子構造に強く依存する。よって  $T_c$ を与える理論手法には機構そのものの正しい記述だけではなく電子・格子構造の精密な取り扱いが不可欠である。

近年の超伝導密度汎関数理論(SCDFT[1])の進展により、フォノン起源の標準的な超伝導機構については、物質ごとの  $T_c$ を電子・格子構造に基づいて統一的に記述する計算手法が確立しつつある。SCDFTに基づく  $T_c$ 計算スキームにおいては、フォノン起源超伝導理論(Migdal-Eliashberg理論)の要素である電子・格子および電子・電子相互作用は第一原理計算によって物質構造から正確に与えられ、それから得られる  $T_c$ 理論値は Nb や MgB<sub>2</sub>などの典型的フォノン機構超伝導体については数ケルビンの誤差で実験  $T_c$ と一致する。しかしさらに広い範囲の物質の取り扱いを可能にするためには、他の超伝導機構を取り込んでいく拡張が必須である。

我々は最近、非フォノン超伝導機構の一つであるプラズモン機構を取り込むよう SCDFT の  $T_c$ 計算スキームを拡張した[2]。プラズモンにより強い周波数依存性をもった電子間遮蔽クーロン相互作用が超伝導を引き起こすという機構は過去には希薄電子ガスについて論じられたが[3]、この機構はフォノン起源引力和協力的に働きうるため、当初の想定より広範な物質においても「フォノン機構と協力して  $T_c$ をさらに上昇させる」という形で大きな役割を果たしていることが期待される。我々の拡張手法は、様々な物質中のプラズモン機構とフォノン機構が  $T_c$ へ与える影響を単一の枠組みで議論することを可能にする。

講演においては、定式化のあらましおよび新手法を高圧下リチウムへ応用した結果[2]を紹介する。リチウムは数十ギガパスカル程度の圧力下で  $T_c \sim 10$  ケルビン程度の超伝導を示す[4]が、フォノン機構のみを考慮した場合  $T_c$ 理論値は実験値の半分程度である。一方、プラズモンの寄与を取り込むと  $T_c$ 計算値は2倍程度に増大し、実験値との一致は系統的に改善する。これは高圧下リチウムにおける超伝導発現がフォノン機構とプラズモン機構の協力によることを示している。

文献

[1]M. Luders *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 024545 (2005); M. A. L. Marques *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 024546 (2005); A. Floris *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 037004 (2005).

[2]R. Akashi and R. Arita, Phys. Rev. Lett. **111**, 057006 (2013).

[3]Y. Takada, J. Phys. Soc. Jpn. **45**, 786 (1978).

[4]K. Shimizu *et al.*, Nature (London) **419**, 597 (2002).



## タンパク質の膜内安定性に関する自由エネルギー解析

分子研<sup>1</sup>、京大化研<sup>2</sup> 水口朋子<sup>1,2</sup>、松林伸幸<sup>2</sup>

膜貫通タンパク質の膜内における配置は、生体膜がその機能を発揮する上で重要な役割を果たしている。タンパク質の膜内配置は、タンパク質、脂質、水などの複雑な分子間および分子内相互作用から決定されるため、全原子型のアプローチによる分子レベルでの解析が不可欠である。

膜タンパク質の大規模運動の一つに、タンパク質が膜内でその結合の向きを 180 度変えるフリップ-フロップ運動がある[1]。フリップ-フロップ運動は、生体膜の再構成や膜を通した物質の輸送に関係していると考えられるが、その仕組みはほとんど分かっていない。本講演では、タンパク質のフリップ-フロップ運動に関連した膜内配置をいくつか用意し、全原子型のシミュレーションを行って、それぞれの配置における自由エネルギーを計算する。膜内タンパク質の安定性を分子レベルで議論し、フリップ-フロップ運動に理論的な解釈を与えることが、本研究の目的である。

脂質分子には 1,2-dimyristoyl-*sn*-glycero-3-phosphatidylcholine (DMPC) を用いて、242 個の DMPC 分子による脂質二重膜を構成した。タンパク質としては Glycophorin A (GpA) の膜貫通部分 23 残基のみを用いた。水分子には TIP3P モデルを採用し、脂質二重膜の上下に 10000 個の水分子を配置した。分子動力学計算には NAMD2.8, 分子力場には CHARMM を用いた。定温定圧アンサンブルにより、温度を 303 K、圧力を 1 bar に設定した。また、自由エネルギーの計算にはエネルギー表示法を用いた[2]。

平衡状態はタンパク質が膜を貫通している状態であり、そこからのフリップ-フロップ運動の経路として、タンパク質が単純に膜内で回転する経路が考えられる(図1)。回転途中の配置を複数準備し、それぞれの配置におけるタンパク質の溶媒和自由エネルギーを、回転中心の位置を変えて計算した。その結果、膜-水界面付近で界面と平行になる配置を取るような経路が好まれることが分かった。タンパク質が膜内部から外部へと移動するに従って、溶質-溶媒相互作用エネルギーは減少するが、排除体積効果による斥力が強まるため、結果的にタンパク質は界面付近で安定化する。本講演では、より詳細な解析を通して、タンパク質の膜内安定性を決定する要因について議論する。

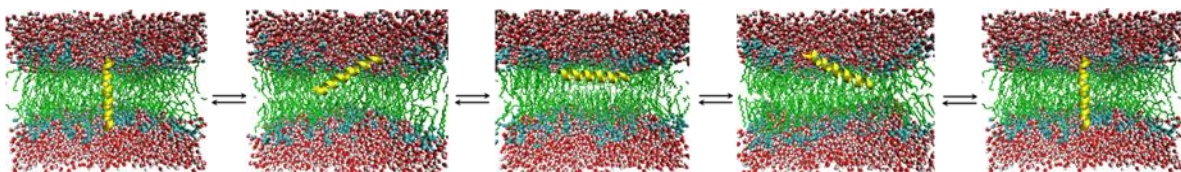


図1. タンパク質のフリップ-フロップ運動。仮定された1経路。

文献

[1] S. Jayasinghe, M. Barranger-Mathys, J. F. Ellena, C. Franklin and D. S. Cafiso, *Biophys. J.* **74**, 3023 (1998).

[2] N. Matubayasi and M. Nakahara, *J. Chem. Phys.* **117**, 3605 (2002); *J. Chem. Phys.* **118**, 2446 (2003).

## DC-DFTB 理論の高度並列化と Hessian への理論展開

分子研<sup>1</sup>, 早大理工研<sup>2</sup>, 早大先進理工<sup>3</sup>, CREST<sup>4</sup>, ESICB<sup>5</sup>, 名大院理<sup>6</sup>  
西澤宏晃<sup>1,2</sup>, 中井浩巳<sup>2,3,4,5</sup>, Stephan Irle<sup>6</sup>, 横川大輔<sup>6</sup>

電子構造の変化が重要な系に対して、電子の自由度をあらわに取り扱うことができる大規模分子動力学計算手法の開発は非常に重要である。本研究ではこの化学反応を伴う大規模分子動力学計算に対して、半経験的手法の1つである電子密度強束縛 (DFTB) 法[1, 2]を用いる。DFTB 法は DFT に基づいたパラメータを用いることで、計算コストを低く保ったまま AM1, PM3 などのほかの半経験的手法に比べて高精度な結果を得ることが可能である。DFTB 法を大規模系に適用する際のボトルネックは対角化であり、実際に DFTB を用いた報告は 1,000 原子程度の系にとどまっている。

この問題を解決するために、これまでに中井らにより開発が進められてきた分割統治 (DC) 法[3, 4]を DFTB 法に適用し、DC-DFTB 法の開発を行ってきた。DC-DFTB 法により、たとえば 20,000 原子程度の系でも数分で計算を行うことが可能となった。同時に大規模系に対する分子動力学計算を行うために、スーパーコンピュータ「京」での実行をめざした並列化も行ってきた。しかし、これまでこの並列化による並列化効率は 30%程度と十分な効率は出ておらず、その原因が DC 法における共通の Fermi 準位の決定であることが確認されていた。

そこで本研究では Fermi 準位決定の際に近似を用いる手法を提案し、そのコストを削減することで並列化効率の向上を目指した。また、ピーク実行効率についても改善を行った。その結果、図 1 に示すように各計算手続きにおいて計算コストを大幅に改善することに成功し、水 40,000 分子系の計算では「京」5,000 ノードを利用して 0.7 秒以下、ピーク実行効率 16%以上の数値を得ることに成功した。本発表ではこの Fermi 準位の近似的決定方法と、ピーク実行効率向上のために行った手続きに関して報告する。さらに理論展開として DC-DFTB 法に対する Hessian 行列の導出と実装も行ったので併せて報告する。

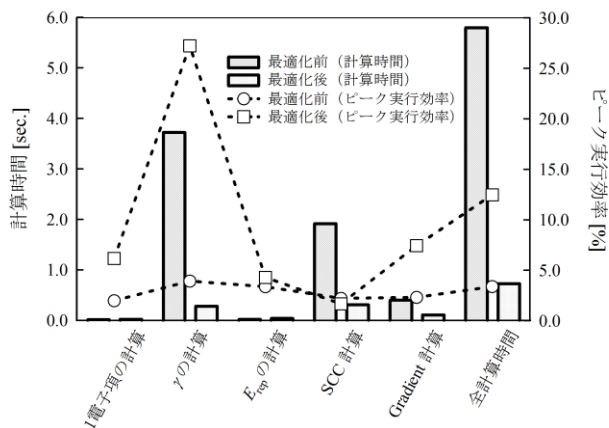


図 1. C<sub>50000</sub>H<sub>50002</sub> 分子の計算時間とピーク実行効率

文献

- [1] D. Porezag, Th. Frauenheim, Th. Köhler; Phys. Rev. B, **51**, 12947 (1995).
- [2] M. Elstner, D. Porezag, G. Jungnickel, J. Elstner, M Haugk, Th. Frauenheim, S. Suhai, G. Seifert; Phys. Rev. B, **58**, 7260, (1998).
- [3] M. Kobayashi, H. Nakai; in Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics (Springer, 2011), pp. 97-127.
- [4] M. Kobayashi, H. Nakai; Phys. Chem. Chem. Phys., **14**, 7626 (2012).

## ゲージ固定ベリー接続の有限サイズスケーリング解析

東大院工<sup>1</sup>、東大物性研<sup>2</sup> 本山裕一<sup>1</sup>、藤堂眞治<sup>2</sup>

反強磁性量子スピン系の、非古典的な基底状態および低励起状態を理解するための有効なツールとして、ヴァレンスバンド描像がある[1]。これは、スピンの大きさ  $S$  をもつ局所スピンを、 $2S$  個のスピン  $1/2$  のサブスピンの足しあわせとみなし、それぞれのサブスピンが他の局所スピンのサブスピンとシングレット対（ヴァレンスバンド）を組んでいる、と考える描像である。この描像を用いることで、整数スピン 1 次元鎖における有限ギャップを持った非磁性基底状態（ハルデイン相）[2]をはじめとする、非古典的な基底状態が理解されてきた。また、系を空間的に 2 つに分割した際に、その境界面を貫くヴァレンスバンドの本数を見ると、量子相転移に伴ってその偶奇が移り変わることがわかっており、梯子系などの基底状態相図の理解にもヴァレンスバンド描像が使われてきた[3]。この「境界面を貫くヴァレンスバンドの本数の偶奇」を調べるための、計算可能な物理量としてストリング秩序変数[4]やひねり秩序変数[5]などがあるが、これらは 1 次元系でのみよく定義される量となっている。

局所離散化ベリー位相[6]は、あるバンドにおけるヴァレンスバンドの本数の偶奇を測る事ができる、トポロジカル秩序変数である。系の内部自由度の対称性によって、有限サイズ系でも値がよく離散化されていることと、空間次元によらず定義できることが強みである。我々は、これまでに局所離散化ベリー位相を量子モンテカルロ法で計算する手法を提案し、1 次元梯子系においてデモンストレーションを行ってきた。また、ゲージ固定ベリー接続のサイズ依存性が転移点直上でなくなることを見出し、これを用いて転移点を精度よく求められることを提案してきた[7]。

今回の発表においては、ベリー曲率のスケーリング則[8]を用いることで、ゲージ固定ベリー接続のスケーリング則を与える。その結果、有限サイズスケーリング解析における相互作用のスケール変換の指数が、一般の解析における  $1/\nu$ 、つまり相互作用に対する相関長の臨界指数の逆数、ではなく、 $1/\nu + 1/\nu' - d$  となることがわかった。ここで  $\nu'$  はベリー接続を定義する際のパラメータ変化に対する相関長の臨界指数で、 $d$  は空間次元である。1 次元梯子系と 2 次元正方格子上での  $S=1/2$  ハイゼンベルグ模型のゲージ固定ベリー接続を計算することにより、この 2 つの模型において  $\nu'$  が統計誤差の範囲内で、共に 1 となることがわかった。

[1] I. Affleck, T. Kennedy, E. H. Lieb, and H. Tasaki, PRL **59**, 799 (1989).

[2] F. D. M. Haldane, PRB **25**, 4925 (1982).

[3] M. Munehisa, S. Todo, M. Nakamura, C. Yasuda, and H. Takayama, Physica B **329-333**, 1010 (2003).

[4] M. den Nijs and K. Rommelse, PRB **40**, 4709 (1989).

[5] M. Nakamura and S. Todo, PRL **89**, 077204 (2002).

[6] Y. Hatsugai, JPSJ **75**, 123601 (2006).

[7] Y. Motoyama and S. Todo, PRE **87**, 021301(R) (2013).

[8] L. C. Venuti and P. Zanardi, PRL **99**, 095701 (2007).

## 量子臨界点における有効アスペクト比への有限サイズ補正とその起源

東大院工<sup>1</sup>, 東大物性研<sup>2</sup> 安田真也<sup>1</sup>, 藤堂眞治<sup>2</sup>

相互作用が空間的に異方的なパターンを持つ2次元量子 Heisenberg スピン系の量子臨界現象は、その相互作用パターンによって大きな有限サイズ補正を伴うものが存在する。例えば、columnar dimer 模型においては通常の有限サイズスケーリングにより3次元古典 Heisenberg ユニバーサリティクラスの臨界指数を得るが、staggered dimer 模型はその大きな有限サイズ補正から臨界指数の計算が困難であった [1]。これを受けて Fritz らは場の理論的な考え方から、staggered dimer 模型のようなスケーリングに対する補正の大きいモデルは実効的な作用に“cubic term”と呼ばれる irrelevant な項が付与されることを見だした [2]。しかし、cubic term と有限サイズ補正の直接の関係についてはよく理解されてこなかった。

我々はこの問題に対して、相関長( $\xi$ )で測った格子の大きさ( $L/\xi$ )が空間・虚時間の全方位で等しくなるようにモンテカルロ・シミュレーションの最中に自動的に調整する手法を提案し、先に述べたような異方的な系でも実効的に等方的な系をシミュレーションすることを可能にした。この結果、staggered dimer 模型は、実空間方向の有効アスペクト比(y方向とx方向の長さの比)が強いサイズ依存性を持つことが明らかになった。この結果を受けて、各方位に対するスケール因子と cubic term をあらわに考慮した有効作用に対して次元解析を行うことで、

1. 有効アスペクト比が長さの逆数の次元に対して1よりも小さいべきで振る舞うこと
  2. 有効アスペクト比の補正がy方向のみに現れ、虚時間方向には現れない
- ことを示した。さらに、cubic term をもつと考えられる別の異方的なモデル(下図に示す herringbone 模型)に対してもアスペクト比に対する補正が同様の振る舞いを見せることを示した [3]。

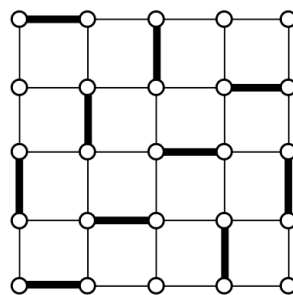


図: herringbone dimer 模型. 線の太さは結合定数の強さに対応する.

文献

- [1] S. Wenzel, L. Bogacz, and W. Janke; Phys. Rev. Lett., **101**, 127202 (2008)  
[2] L.Fritz, R. L. Doretto, S. Wessel, S. Wenzel, S. Burdin, and M. Vojta; Phys. Rev. B, **83**, 174416 (2011)  
[3] S. Yasuda and S. Todo; arXiv:1307.4529 (2013)

## ファン・デル・ワールス密度汎関数法の磁性物質への適応

金沢自然<sup>1</sup>、物材機構 WPI-MANA<sup>2</sup>、金沢大理工<sup>3</sup> 小幡正雄<sup>1</sup>、中村慎<sup>1</sup>、濱田幾太郎<sup>2</sup>、小田竜樹<sup>1,3</sup>

ファン・デル・ワールス(vdW)力を精度良く記述することは分子・結晶構造を知る上で重要な鍵となる。Dion[1]らによって、非局所相関項を用いてvdW力を非経験的に取り入れるvdW密度汎関数(vdW-DF)が開発され、分子複合体、層状物質、吸着系などの幅広い物質群へ適用されている。Román-PérezとSolerがvdW核関数を2つの内挿関数を用いて変数分離する手法を提案し[2]、自己無撞着なvdW-DF計算が容易となった。この方法は電荷密度が0になる点の取り扱いに不十分な点があったが、Wuらによって改善が行われている[3]。

我々は、このような手法を従来の第一原理計算コードに実装し、vdW力の効果が顕著に現われる系での計算を行なった。自己無撞着な計算を行うことにより、分子間力及び圧力の計算が可能となる。それらの計算結果について報告する。vdW-DFは、局所密度近似(LDA)もしくはGGAよりvdW力の記述を改善するが、目的としている系によっては、精度に問題があることが分かっている。そのため元々のvdW-DF提案以降、交換エネルギー及び相関エネルギーの見積もりを改善することにより、様々なvdW-DFが提案されている[4]。本研究では、それらの方法による計算結果の違いについても調べた。

これまでvdW-DFは実質的に磁性物質へ適応されたことはなかった。そこで我々は磁性物質へvdW-DFを適応する実質的な手法を2種類提案した[5]。1つは交換項および局所相関項をコリニア磁性へ拡張するもの(第1の方法)である。この方法では、非局所相関項に磁性によるエネルギーが含まれていない。そこで我々はGGAの相関項を利用することで、スピンの非局所相関項への寄与を見積もる方法(第2の方法)を考案した。これらの方法の有用性を調べるために酸素分子対(H-type)の計算を行った。酸素分子は基底状態で磁化しており、その分子対は運動交換相互作用により反強磁性状態が安定となる。また分子間の距離は実験では3.56Åであると報告されており[6]、vdW力とスピンの依存する力が共存していると考えられる。今回提案した方法を用いることで、GGAの結果を改善し、実験値および量子化学計算の結果を良く再現する結果が得られた。また、強磁性状態の酸素分子対の計算を行なうことで、スピンの起因するエネルギーを見積もった。これにより酸素分子対に働くvdW力とスピンによるエネルギーが同等程度であることがわかった。GGAの結果と比較することで、今回提案した方法の精度を議論する。

### 文献

- [1] M. Dion *et al.*; Phys. Rev. Lett., **92**, 246401 (2004)
- [2] G. Román-Pérez and J. M. Soler; Phys. Rev. Lett., **103**, 096102 (2009)
- [3] Jun Wu and François Gygi; J. Chem. Phys., **136**, 224107 (2012)
- [4] I. Hamada and M. Otani; Phys. Rev. B, **82**, 153412 (2010)
- [5] M. Obata, M. Nakamura, I. Hamada, and T. Oda; J. Phys. Soc. Jpn., **82**, 093701 (2013)
- [6] V. Aquilanti *et al.*; Phys. Rev. Lett., **82**, 1 (1999)

## 第一原理 GW+Bethe-Salpeter 法の開発と最近の応用例

東大物性研 野口良史

多体の摂動論に基づいた第一原理グリーン関数法は密度汎関数理論(DFT)に基づいた通常の第一原理では計算することが難しい現実物質の各種励起スペクトルを高精度に求めることのできる手法である。しかしこの手法は、DFT に比べて膨大な計算量が必要となることからこれまで取り扱うことのできる系は少数原子系に限られてきた[1]。そこで近年、最近のスーパーコンピュータの能力を最大限活用することでより大規模な系の取り扱いを目指し、超大規模並列計算が可能な全電子第一原理グリーン関数法プログラムを開発してきた。図 1 には Fujitsu FX10 で測定した際の GW法の並列効率 (weak scaling) を示す。1536MPI 並列時に約 97%の効率で実行ができるまでに開発が進んでおり、その結果 100 原子を超える系に対しても全電子の第一原理 GW+Bethe-Salpeter 計算が行えるようになっている。

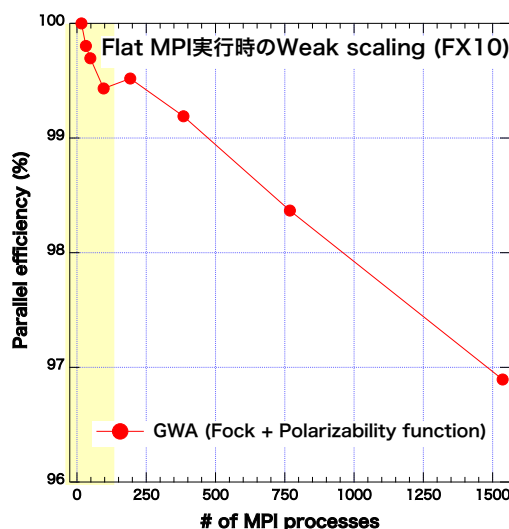


図 1。Fujitsu FX10 で測定した GW 法の並列効率。Flat MPI で 1536 並列までの効率を測定している。

本研究では、並列計算向けに開発をした第一原理 GW+Bethe-Salpeter プログラムを  $M^+@C_{60}$  ( $M=H, Li, Na, K$ ) に適応した[2]。特に  $Li^+@C_{60}$  結晶は近年実験的に生成され、その光学特性などが測定されており、空の  $C_{60}$  よりもアクセプター分子としての特性が優れていることから有機太陽電池などへの応用が期待されている物質である。そこで本研究では、 $M^+@C_{60}$  分子の 1 粒子励起スペクトルや光吸収スペクトルを計算した。さらにこれら計算結果を実験と比較をしつつ内包された  $M^+$  が構造の安定性や電子状態に与える影響などを調査した。ポスター発表では本プログラムの開発状況やベンチマーク結果などを示しつつ、 $M^+@C_{60}$  の構造安定性や光学特性を詳細に議論する予定である。

文献

- [1] Y. Noguchi, O. Sugino, M. Nagaoka, S. Ishii, and K. Ohno, J. Chem. Phys., **137**, 024306 (2012).
- [2] Y. Noguchi, O. Sugino, H. Okada, and Y. Matsuo, J. Phys. Chem. C, **117**, 15362 (2013).

## 第一原理計算による触媒援用表面エッチングプロセスの解明

阪大院工 稲垣耕司、木谷直隆、Pho Van Bui、森川良忠

固液界面での反応は、電池の電極反応やエッチングによる表面加工などにおいて科学的・工学的に重要な課題である。本研究では、ワイドバンドギャップ電子デバイス用半導体表面のエッチング平滑化加工法である触媒援用表面エッチング法（CARE 法）[1]における反応系を理解して技術開発に資するため、第一原理分子動力学法によりエッチング反応過程の解析を進めている。具体的には、HF 水溶液中での SiC 表面のエッチング反応、水中での GaN・SiO<sub>2</sub> のエッチング反応について研究を行っている。本発表では GaN 上での水分子の反応過程の解析について述べる[2]。GaN は CARE 法におけるエッチングによりステップ・テラス表面構造が得られている。これはステップ、特にキンク付近でのエッチングが起りやすいことを示していると考えられる。これを第一原理計算で解明するため、ステップとキンクでの水の解離吸着に要する活性化エネルギーを第一原理計算プログラム STATE により計算した。モデル化した反応経路上に配置した複数の原子構造（レプリカ）を出発点として、NEB 計算により鞍点を通る最適反応経路を求めた。NEB 計算には、京の大規模計算用に開発されたマルチレプリカ NEB 計算プログラムを用いた。このプログラムでは、一つの MPI 実行ユニットからサブワールドをスプリットし、それぞれで各々のレプリカの最適化計算を、原子構造を通信しながら行う。ステップモデルと擬キンク構造について水分子の解離吸着反応活性化エネルギーを比較したところ、キンク構造のほうの活性化障壁が 0.3eV 程度低く、キンクからのエッチングが起りやすいことが明らかとなった。

[1] 原英之、山内和人他：応用物理 77,168 (2006).

[2] M.Oue, K.Inagaki, K.Yamauchi Y.Morikawa, Nanoscale Research Lett., 8,232-1-12 (2013).

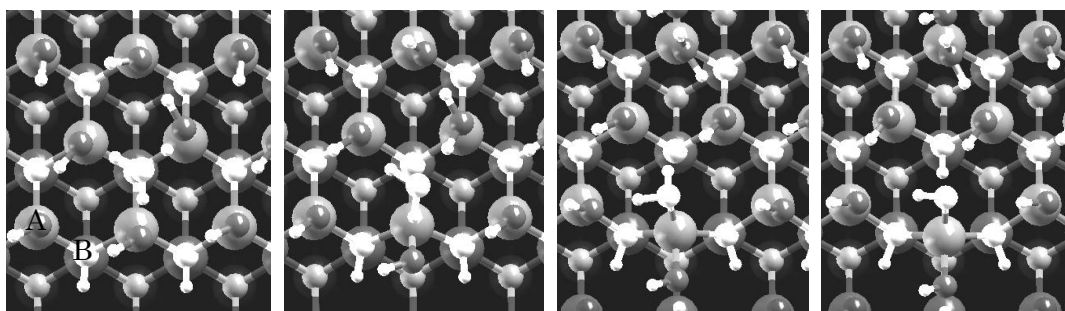


図 OH/H<sub>2</sub>O 終端 GaN ステップ・テラス表面上に表面への解離吸着過程。淡大球：Ga、淡（白）小球：N、濃小球：O、白小球：H である。GaN の表面は OH(被覆率 3/4)および H<sub>2</sub>O(同 1/4)で終端した。(奥の原子ほど濃く書かれている。) キンクモデルでは図中 A で示した Ga 原子が除かれており、B の N 原子が紙面鉛直方向を軸として回転することができるため、水分解離吸着反応の活性化エネルギーが下がる。

## 長距離相互作用系のあるイジング模型のユニバーサリティクラス

東大物性研<sup>1</sup>、東大院工<sup>2</sup> 堀田俊樹<sup>1,2</sup>、藤堂眞治<sup>1</sup>

長距離相互作用系とは、最近接格子に限らず全ての格子点の組が相互作用する系である。代表的な系としては、磁気双極子系や RKKY 相互作用を持つ系などがある。

長距離相互作用を考慮したスピン系のハミルトニアンは、次式のように表される。

$$H = - \sum_{i,j} J_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$$

ここで、 $i,j$  は全ての格子点の組について和をとる。相互作用の強さ  $J$  は、本研究では以下の様なものを考えている。

$$J_{i,j} = \frac{1}{|\vec{r}_j - \vec{r}_i|^{d+\sigma}}$$

$d+\sigma$  の値が無限の極限ではこの系は最近接相互作用系に一致し、零の極限では平均場系（無限レンジ模型）と一致する。従って、 $\sigma$  の値によって系は異なるユニバーサリティクラスに分類される。しかし、各  $\sigma$  の値毎のユニバーサリティクラスの分類については、正確なことはわかっていない。二次元イジング模型についてのユニバーサリティクラスの分類についての諸説を図 1 に示す。[1]

長距離相互作用系はその計算コストの大きさがボトルネックとなるが、本研究では Fukui-Todo の方法や（ベキの指数を実数領域まで拡張した）Ewald の方法などを用いる事で計算コストを軽減している。

本研究により得られた、各  $\sigma$  毎の転移点上の Binder ratio の値を図 2 に示す。ある閾値でユニバーサリティクラスが明白に分類されるのではなく、ユニバーサリティクラスの変化は連続的であり平均場及び最近接系への近づき方も漸近的である様子が見て取れる。

文献

[1] M.Picco. Critical behavior of the Ising model with long range interactions. arXiv:1207.1018v1

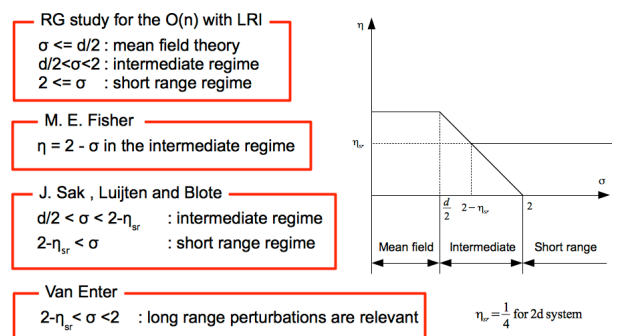


図 1 臨界指数の振る舞いの諸説

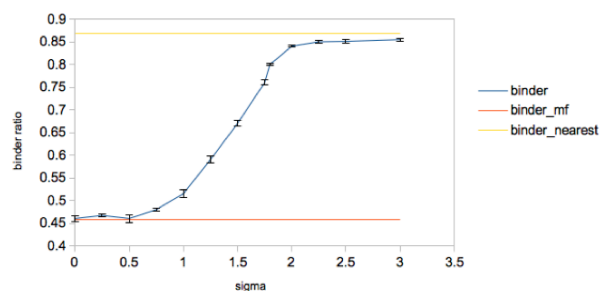


図 2 Binder ratio - T



## xTAPP と TAPIOCA の開発：統合入力ファイルへの拡張とソフトウェアの公開

東大物性研<sup>1</sup>、鳥取大工応数<sup>2</sup>、東大院理<sup>3</sup> 吉澤香奈子<sup>1</sup>、吉本芳英<sup>2</sup>、合田義弘<sup>3</sup>、常行真司<sup>1,3</sup>

我々は密度汎関数法に基づく第一原理計算コード xTAPP[1]と共に、xTAPP の利便性を高めるために、可視化グラフィカルユーザーインターフェース(GUI)ソフトウェア TAPIOCA の開発も行っている。TAPIOCA は、GUI による xTAPP の入力支援と、出力ファイルのデータから波動関数・電子密度・ポテンシャルなどの 3次元空間分布図を 3次元コンピュータグラフィックス (3DCG) で可視化するものである。今回 TAPIOCA に、xTAPP の入力形式だけでなく、同種のコード VASP[2,3] の入力形式を読み込み、xTAPP または VASP の入力ファイルを作成する機能を追加した。その際に VASP 以外のコードへの対応も可能にするため、下図のような統合パラメタを作成した。この統合パラメタは、一般的な電子状態計算 (エネルギー・構造最適化・バンド図・状態密度図) に必要となる最小限のパラメタ (電子状態に関するパラメタ・構造に関するパラメタ・k 点サンプリングに関するパラメタ・対称性に関するパラメタ) から構成される。これにより、xTAPP の入力ファイルから統合パラメタを経て VASP の入力ファイルへの変換、またその逆変換も可能になる。さらに、将来的には他の様々なコードの入力形式に対応させ、入力ファイル作成の簡便化を目指す。

また我々はコードの開発だけでなく、その普及のために、ソースコードの公開や講習会などを行っている。コードを物質科学シミュレーションのポータルサイト MateriApps[4]で紹介または公開することにより、利用者とのコミュニケーションが取りやすい環境を整えている。このような機会での利用者からのフィードバックをコードの開発に生かしている。

|   |  |   |
|---|--|---|
| <pre># main data &amp;tappinput scf_converge = 1.0E-10, scf_number_iter = 40, number_band = 28, lattice_factor = 9.2850, lattice_list = 1.0, 0.0, 0.0, -0.5, 0.866, 0.0, 0.0, 0.0, 1.1001, number_atom = 9, number_element = 2, /</pre> | <pre>&lt;?xml version="1.0" encoding="UTF-8"?&gt; &lt;Unified_DFT_Format&gt; &lt;Common_Parameters&gt; &lt;Calculation_Settings&gt;   &lt;Calculation_Type&gt; Energy &lt;/Calculation_Type&gt;   &lt;Continue&gt; No &lt;/Continue&gt;   &lt;Accuracy&gt; Normal &lt;/Accuracy&gt;   &lt;Energy_Converge&gt; 1.0E-10 &lt;/Energy_Converge&gt;   &lt;Electron_Max_Iteration&gt; 40 ron_Max_Iteration&gt;   &lt;Number_Band&gt; 28 &lt;/Number_Band&gt;   &lt;Smearing&gt; ON &lt;/Smearing&gt;   &lt;Symmetry&gt; ON &lt;/Symmetry&gt;   &lt;Force_Converge&gt; 1.0E-3 &lt;/Force_Converge&gt; &lt;/Calculation_Settings&gt;</pre> | <pre># SCF input for VASP SYSTEM = Quartz EDIFF = 0.1E-03 NELM = 60 NBANDS = 28 IMIX = 4 ISMear = 1 ISYM = 1 NSW = 0 EDIFFG = 0.1E-02</pre> |
|---|--|---|

図：各入力パラメタの概略 (左：xTAPP、中：統合パラメタ、右：VASP)

統合パラメタを経て xTAPP と VASP の間でパラメタを変換・逆変換する。

[1] 吉本芳英、TAPP コンソーシアム [tapp@cms.phys.s.u-tokyo.ac.jp](mailto:tapp@cms.phys.s.u-tokyo.ac.jp).

[2] G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).

[3] G. Kresse and J. Furthmüller, Comput. Mater. Sci. **6**, 15 (1996).

[4] [ma.cms-initiative.jp](http://ma.cms-initiative.jp)

## ナノ構造を持つ合金中の熱伝導計算

産総研ナノシステム<sup>1</sup>、阪大基礎工<sup>2</sup> 小西優祐<sup>1</sup>、福島鉄也<sup>2</sup>、佐藤和則<sup>2</sup>、浅井美博<sup>2</sup>、吉田博<sup>2</sup>

近年、排熱利用などの観点から熱を電気に変換する熱電材料に対して注目が集まっており、BiTeなどの半導体材料や高分子材料など様々な物質についての研究が行われている。他方、合金系においても、相分離によってナノ構造を形成したCuNi合金と金の接合系において大きなペルチェ効果が観測された[1]。これはナノ構造を持つCuNi合金が高いゼーベック係数を持つ事を示すもので、熱電材料の候補として期待させるものである。

ただし、高ゼーベック係数だけでは高効率の熱電材料としては十分ではない。熱電材料の効率は以下の式の無次元量  $ZT$  で表される。

$$ZT = \frac{\sigma S^2 T}{\kappa_{el} + \kappa_{ph}}$$

上式の  $\sigma$  は電気伝導度、 $S$  はゼーベック係数、 $T$  は温度、 $\kappa_{el}$  は電気による熱伝導度、 $\kappa_{ph}$  はフォノンによる熱伝導度である。これを大きくするには  $S$  を大きくするとともに、熱伝導のフォノンの寄与を小さくする必要がある。

本研究ではCuNi合金中のナノ構造が  $\kappa_{ph}$  に及ぼす影響を調べるため、非平衡分子動力学法による熱伝導シミュレーションを行った。合金中のポテンシャルとしてはEAMポテンシャル[2]を用いている。Reverse non-equilibrium molecular dynamics (RNEMD)法[3]によって系の中に温度勾配、熱流を生じさせて熱伝導度を計算した。サイズ、構造など様々な条件下における熱伝導度について論じる。

文献

- [1] A. Sugihara et al., Appl. Phys. Exp. **3**, 065204 (2010).
- [2] J. Cai and Y. Y. Ye, Phys. Rev. B **54**, 8398 (1996).
- [3] F. Müller-Plathe, J. Chem. Phys. **106**, 6082 (1997).

## STM トンネル接合における磁性分子の可逆的量子状態操作

東大新領域<sup>1</sup>、理研<sup>2</sup> 平岡諒一<sup>1</sup>、南谷英美<sup>2</sup>、川合眞紀<sup>1</sup>、高木紀明<sup>1</sup>

走査トンネル顕微鏡 (STM) の探針下におかれた分子は、基板と探針を2つの電極と見なすと、電極に接合した量子箱と考えることができる。探針-試料間の距離を変えることで、二つの電極と量子箱の相互作用を相対的に変化させ、2つの相互作用を非対称にしたり、競合状態にしたり、相互作用をチューンして分子の量子状態を操作することができる。探針-分子間距離が大きいトンネル領域では、分子と基板との相互作用が分子の量子状態を支配する。一方、探針が近づくと探針-分子間相互作用が強くなり、探針-分子間相互作用と基板-分子間相互作用が競合する。

Au(111)に吸着した鉄フタロシアニン (FePc) 分子について、探針-分子間の距離を変えながら、トンネルスペクトルを測定した。探針-分子間距離が大きいトンネル領域では、Au(111)基板の電子と FePc 分子の Fe<sup>2+</sup>イオンに由来する局在電子とが相互作用した近藤共鳴状態が観察される [1,2]。距離が近づくと、近藤共鳴状態のスペクトル形状は徐々に変化し、探針が分子とコンタクトした領域では Fermi 準位に関して対称的なエネルギー位置にステップ構造が現れる。近藤共鳴状態が消失し、分子スピンの由来する非弾性トンネル励起が観測されている。

観察されたスペクトル発展を理解するために、第一原理計算による解析を行った。W 探針は Au 原子で覆われていると考えられるため、探針をピラミッド形状の Au 原子でモデル化し、Au(111)上の FePc 分子に探針を近づけたときに分子の構造と電子状態がどのように変化するかを計算した。探針と分子がコンタクトしたとき、探針-分子間の相互作用が分子-基板間相互作用よりも強く、分子の量子状態は探針-分子間の相互作用により支配されることが分かった。第一原理計算をもとに、可逆的なスペクトル発展を説明するモデルを議論する [3]。

文献

[1] N. Tsukahara et al., ; Phys. Rev. Lett. 106, 187201 (2011).

[2] E. MInamitani et al.,; Phys. Rev. Lett. 109, 086602 (2012) .

[3] R. Hiraoka et al.,; in preparation

## 実時間密度汎関数法による シリセンナノリボンからのレーザー誘起電界電子放出

東京理科大学 理学部 樋口大志, 胡春平, 渡辺一之

シリセンはグラフェンと類似の構造を持ち、同じく Dirac 電子系に属する新物質である。グラフェンと似た物性を持ちながらもシリセン特有の歪み構造によりグラフェンにはない性質も期待される。他方、実験技術の発展により短パルスレーザーを用いた実験が可能となり、フェムト秒レーザーを照射した際の電子放出特性の研究は重要である。

そこで本研究では時間依存密度汎関数法を用いてシリセンナノリボン(SiNR)にフェムト秒レーザーを照射した時の電界電子放出シミュレーションを行った。その結果、同タイプのグラフェンナノリボン(GNR)を用いたレーザー誘起電界電子放出[1]と、放出機構や放出電流量が異なる事が明らかとなった。同じ強度・エネルギーのレーザーを照射した場合、GNR よりも SiNR の方が放出電流量が多くなった。エネルギー状態間のエネルギー差が全体的に GNR に比べて SiNR の方が小さいことから、SiNR では電子放出に寄与するチャンネルが多数存在し、それが主に電流量増加を引き起こしたと考えられる。SiNR におけるレーザーエネルギーと電流放出の関係性、GNR と SiNR の放出機構の違いについて議論する。

文献

[1] D. Utsugi, C. Hu, K. Watanabe : Appl. Phys. Express 5 (2012) 105101.

## Tamm-Dancoff 近似に基づいた TDDFT 法による非断熱結合係数の高精度計算

東理大理<sup>1</sup>、東大物性研<sup>2</sup>

胡春平<sup>1</sup>、杉野修<sup>2</sup>、渡辺一之<sup>1</sup>

電子・原子核系の運動は厳密には非断熱的に起こり、そのダイナミクスを追う非断熱量子シミュレーションを行うためには、断熱ポテンシャル面(PES)と非断熱結合係数(NAC)を同時に求める必要がある。時間依存密度汎関数法(TDDFT)は、励起エネルギーの計算効率に優れていることから PES の構築に広く用いられてきている。また、取り扱いが困難であった NAC に対して、過去十年間、TDDFT による計算手法が次々提唱されてきた。特に、我々は多電子系の動的分極率が TDDFT 線形応答理論で計算できることに着目し、分子の基底状態と励起状態の間の NAC の厳密な計算式を導出した[1, 2]。それによると、振動子強度の既存の計算法において、単に演算子を置き換えるだけで計算が可能になる。一方、励起エネルギーをより低コストで精度よく計算する方法として、励起と脱励起を decouple する Tamm-Dancoff 近似(TDA)が、TDDFT 計算に広く用いられている。しかし、TDA は一般的に振動子強度を十分な精度で計算できず、総和則も満たさないことが知られている[3]。そこで今回、NAC の TDDFT 計算において TDA の系統的な評価を行った。

プログラム実装に関しては、擬ポテンシャル・平面波基底パッケージ ABINIT に TDDFT/TDA を実装し、adiabatic LSDA を用い精度検証を行った。NAC の d-matrix formulation [2]と密度汎関数摂動論を用いた[4]。テスト計算は、Renner-Teller 系である NH<sub>2</sub>、HCCS、HC<sub>8</sub>S、Jahn-Teller 系である Na<sub>3</sub>、Na<sub>5</sub>、Na<sub>9</sub>、および偶然交差を持つ NaH<sub>2</sub> を用いた。その結果、いずれの系でも PES の交差点に近づくほど、TDDFT/TDA は総和則を満たしながら Full TDDFT より良い NAC の値を出すという予想外なことが判明した。その原因は、交差点の近傍で LSDA の性能が落ち、TDA がそれを補正する役割を果たすことにより起こる誤差の相殺にあると考えている。

### 文献

- [1] C. Hu, H. Hirai and O. Sugino, J. Chem. Phys. **127**, 064103 (2007); **128**, 154111 (2008).
- [2] C. Hu, O. Sugino, H. Hirai and Y. Tateyama, Phys. Rev. A **82**, 062508 (2010).
- [3] S. Hirata and M. Head-Gordon, Chem. Phys. Lett. **314**, 291 (1999).
- [4] C. Hu, T. Tsukagoshi, O. Sugino, and K. Watanabe, Phys. Rev. B **87**, 035421 (2013).

# First-Principles Study on the bonding and O diffusion in Amorphous-TaO<sub>x</sub>

School of Engineering, UTokyo, Bo Xiao and Satoshi Watanabe

Toward the understanding of the switching mechanism of Pt/amorphous-TaO<sub>x</sub> (a-TaO<sub>x</sub>)/Pt resistance switching devices, we have examined the structures, electronic properties and O self-diffusions in a-TaO<sub>x</sub> with various x by the density functional theory using the VASP code. In the case of a-TaO<sub>2.47</sub> (single O vacancy in the simulation supercell), the removal of O atom results in the formation of a Ta-Ta dimer structure, and the corresponding density of state shows an O vacancy state in the band gap region. Its energy position is 0.8 eV below the conduction band and 2.5 eV above the valence band, which agrees well with the experimental data.[1,2] The results for various a-TaO<sub>x</sub> ( $1 \leq x \leq 2.85$ ) generated by melt-quenching method (Fig. 1) reveal that the changes in the Ta coordination number and Ta-O bond length agree well with the experimental data.[3] With the increase of O vacancy concentration, Ta-Ta dimer structures tend to merge together, which suggests that the Ta-Ta bonding mainly contributes to the conduction path in Pt/a-TaO<sub>x</sub>/Pt resistance switching devices with  $x < 2.5$ .

The diffusion coefficients of O self-diffusion (Fig. 2) for a-TaO<sub>x</sub> ( $x = 2.47, 2$  and  $1.5$ ) at different temperatures, which have been evaluated using the Einstein relation  $\langle r^2 \rangle = 6Dt$ , show that at all temperatures examined, the O self-diffusion becomes faster with the decrease of its concentrations. The activation energy for O self-diffusion in a-TaO<sub>x</sub> is estimated to be 0.30 to 0.35 eV, which agrees well with the experimental results (from 0.29 to 0.44 eV).[4]

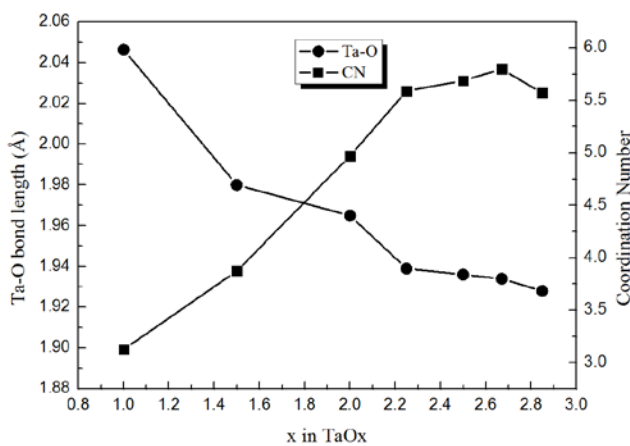


Figure 1. Ta-O bond length and O coordination number around a Ta.

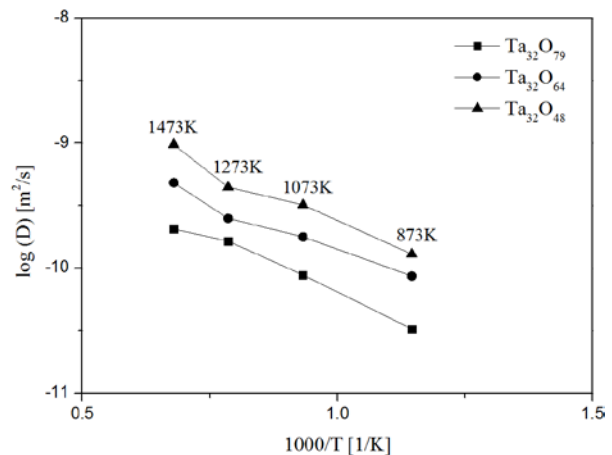


Figure 2. Temperature dependence of the diffusion coefficient for O self-diffusion.

## References

- [1] W. S. Lau et al. Appl. Phys. Lett, **83**, 2835 (2003).
- [2] M. V. Ivanov et al. J. Appl. Phys, **110**, 024115 (2011).
- [3] T. Tsuchiya, et al., Phys. Chem. Chem. Phys. **13**, 17013 (2011)
- [4] R. Chandrasekharan et al., J. Appl. Phys. **98**, 114908 (2005)

# Structural Models and FMO Analysis of Human and Avian Hemagglutinin Protein Interactions with Sialocide Ligands

Pavel V. Avramov and Kazuo Kitaura

*Kobe University, Graduate School of System Informatics*

Started from September 2013, the CMSI-guided development and study of structural models and binding mechanisms of sialocide ligands with avian and human hemagglutinine (HA) protein using fragment molecular orbital (FMO) method [1, 2] and efficient protein builder code FU [3] has been launched. Recent X-ray crystallographic protein structural data of HA proteins are under careful survey and analysis. The experimental structural data mistakes are analyzed and corrected using developing software and fragments of structurally related proteins.

After correction of the structural data and developing of initial structural models, the molecular dynamics simulations (MD) will be applied for preliminary optimization of HA proteins and their complexes with different sialocide ligands. The role of structural substitutions of the constituent aminoacid restudies during mutations will be studied. The high-quality atomic structure of HA proteins and their complexes with sialocide ligands will be obtained using *post*-Hartree-Fock MP2 FMO calculations using highly parallelized GAMESS code [4]. Based on FMO calculations the mechanisms of binding and binding affinities of sialocide ligands to the H1 domains will be estimated and interpreted.

## References

- [1] Kitaura, K.; Ikeo, E.; Asada, T.; Nakano, T.; Uebayasi, M. *Chem. Phys. Lett.* 1999, 313, 701.
- [2] Fedorov, D. G.; Kitaura, K. *J. Chem. Phys.* 2004, 120, 6832.
- [3] Will be presented at <http://ma.cms-initiative.jp/en> soon
- [4] Schmidt, M. W.; Baldrige, K. K.; Boatz, J. A.; Elbert, S. T.; Gordon, M. S.; Jensen, J. H.; Koseki, S.; Matsunaga, N.; Nguyen, K. A.; Su, S.; Windus, T. L.; Dupuis, M.; Montgomery, J. A. *J. Comput. Chem.* 1993, 14, 1347.

## 並列固有値ソルバの統一的インターフェースを用いた厳密対角化パッケージの開発

東大物性研<sup>1</sup> 坂下達哉<sup>1</sup>, 五十嵐亮<sup>1</sup>, 大久保毅<sup>1</sup>, 藤堂眞治<sup>1</sup>

ハイブリッド並列が施された密行列向け固有値ソルバとしては, ScaLAPACK に含まれるものが知られている. ScaLAPACK は多数のプロセス実行では性能が出ないため, Elemental[1]に含まれる MRRR, EigenExa[2], ELPA[3]といった超並列向けの固有値ソルバの開発が進められている. しかし, これらのソルバの利用者は非常に少ない. その原因として, 各固有値ソルバのインターフェースがばらばらであること, 下部のライブラリとの依存関係が複雑であるためインストール, コンパイル・リンクが難しいことが考えられる.

そこで, 我々は ScaLAPACK, Elemental, EigenExa, ELPA の実対称密行列向け固有値ソルバに対する C++による統一的なインターフェース Rokko[4]の開発を行い公開している. Rokko では, ユーザが使用するライブラリをその違いを意識することなくプログラム実行時に選択できるようになっている. また, FORTRAN や C から Rokko を呼び出せるようにインターフェースを整備した. リポジトリ[4]には, ソースコードの他, 京 / FX10 や Intel / GNU コンパイラを用いるスパコン/パソコンに対する固有値ソルバのインストールスクリプト, Rokko を用いたベンチマーク測定を自動で行うためのスクリプトも含め, ユーザの便宜を図っている.

量子スピン系の厳密対角化のパッケージとしては, TITPACK, KOBEPACK, SPINPACK が広く使われている. これらのパッケージでは, 逐次版またはスレッド並列版の固有値ソルバしか用いられていないため多数の CPU を持つスパコンの能力が発揮できておらず, この事が大規模なサイト数での計算を困難にしている. この状況を克服するため, 我々は Rokko を用いた厳密対角化パッケージ Barista[5]の作成を行っている. Barista では, ALPS (Algorithms and Libraries for Physics Simulations)と連携することで, 格子やハミルトニアンをパラメータで簡単に指定できるようになっている.

### 文献

- [1] Jack Poulson, Matthias Petschow, and Paolo Bientinesi: Elemental (Distributed-memory dense linear algebra). <http://code.google.com/p/elemental/>
- [2] 理研 AICS 大規模並列数値計算技術研究チーム: 高性能固有値ソルバ EigenExa. <http://www.aics.riken.jp/labs/lpnctr/EigenExa.html>
- [3] ELPA Consortium: ELPA (Eigenvalue solvers for Petaflop Applications). [http://elpa-lib.fhi-berlin.mpg.de/wiki/index.php/Main\\_Page](http://elpa-lib.fhi-berlin.mpg.de/wiki/index.php/Main_Page)
- [4] 坂下達哉, 五十嵐亮, 大久保毅, 藤堂眞治: 並列固有値計算ソルバの統一的インターフェース Rokko. <https://github.com/t-sakashita/rokko.git>
- [5] 坂下達哉, 五十嵐亮, 大久保毅, 藤堂眞治: 統一的インターフェースを用いた量子格子模型の厳密対角化パッケージ Barista. <https://github.com/t-sakashita/barista>



## アミノ酸の種類ごとに区別したタンパク質系力場の提案

名大理<sup>1</sup>, 分子研 CMSI<sup>2</sup>, 名大構造生物研<sup>3</sup>, 名大計算科学研<sup>4</sup>, 名大情報セ<sup>5</sup>

榮 慶丈<sup>1,2</sup>, 岡本 祐幸<sup>1,3,4,5</sup>

タンパク質を対象とした分子シミュレーションでは、古典力学を基にした分子モデルがよく用いられる。この分子モデルでは力場パラメータと呼ばれる、複数のパラメータを必要とし、これらは通常小分子の量子化学計算や実験データを基に決められている。この力場パラメータは数種類の代表的な力場 (AMBER, CHARMM, OPLS, GROMOS など) が存在し、通常シミュレーションをおこなう場合はこれらのうち一つを選択する。近年、複数の代表的な力場パラメータに対し、いくつかのペプチドを対象とした拡張アンサンブルシミュレーションによる、 $\alpha$ ヘリックスや $\beta$ シート構造などの二次構造の形成傾向について比較する試みがおこなわれている。この結果から、力場パラメータの種類によって二次構造形成に関して明らかに異なる傾向をもつことが明らかとなった。そこで本研究では新しい力場パラメータの改善法を提案する。これまでの代表的なタンパク質系の力場では主鎖 ( $\phi$ 角及び $\psi$ 角) に関する力場パラメータは、その多くがアミノ酸に共通のパラメータが用いられており、アミノ酸の違いを無視したものであった。そこで本研究ではアミノ酸ごとに個別のパラメータを決定することで力場の高精度化を試みた[1]。今回対象とした力場は AMBER ff03 であり、特に主鎖二面角の $\phi$ 角に注目した力場改良をおこなった。その後最適化した力場パラメータを用い、いくつかのペプチドや小タンパク質を用いた折り畳みシミュレーションをおこない、特に二次構造形成の傾向についてオリジナルの力場との比較をおこなった。

文献

[1] Y. Sakae and Y. Okamoto, J. Chem. Phys. **138**, 064103(8pages) (2013)

## Tensor Network Method on Finite Lattice with Periodic Boundary Condition

Hui-Hai Zhao<sup>1,2</sup>, Naoki Kawashima<sup>2</sup>, Masatoshi Imada<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Applied Physics, University of Tokyo, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-8656, Japan

<sup>2</sup>Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, Chiba, 277-8581, Japan

Tensor network methods are quite efficient in dealing with infinite lattice. The original form of projected entangled-pair states[1] deals with finite lattice with open boundary condition. However, the computation of finite lattice with periodic boundary condition by tensor network method would be more difficult. In one dimension, we have shown[2] that the matrix product states in a finite translation invariant chain can be accurately constructed from a same set of local matrices that are determined from an infinite chain. With this fact, we develop a coarse graining method to contract two dimensional finite tensor network with periodic boundary condition. We apply this method on classical and quantum models. We will show the numerical result here.

### References:

[1] F. Verstraete and J. I. Cirac, arXiv:cond-mat/0407066(2004).

[2] Jian-Wei Cai, Qiao-Ni Chen, Hui-Hai Zhao, Zhi-Yuan Xie, Ming-Pu Qin, Zhong-Chao Wei and Tao Xiang, Chin. Phys. B, Vol. 20, No. 11 (2011) 117501.

### 3次元FFTのベンチマーク

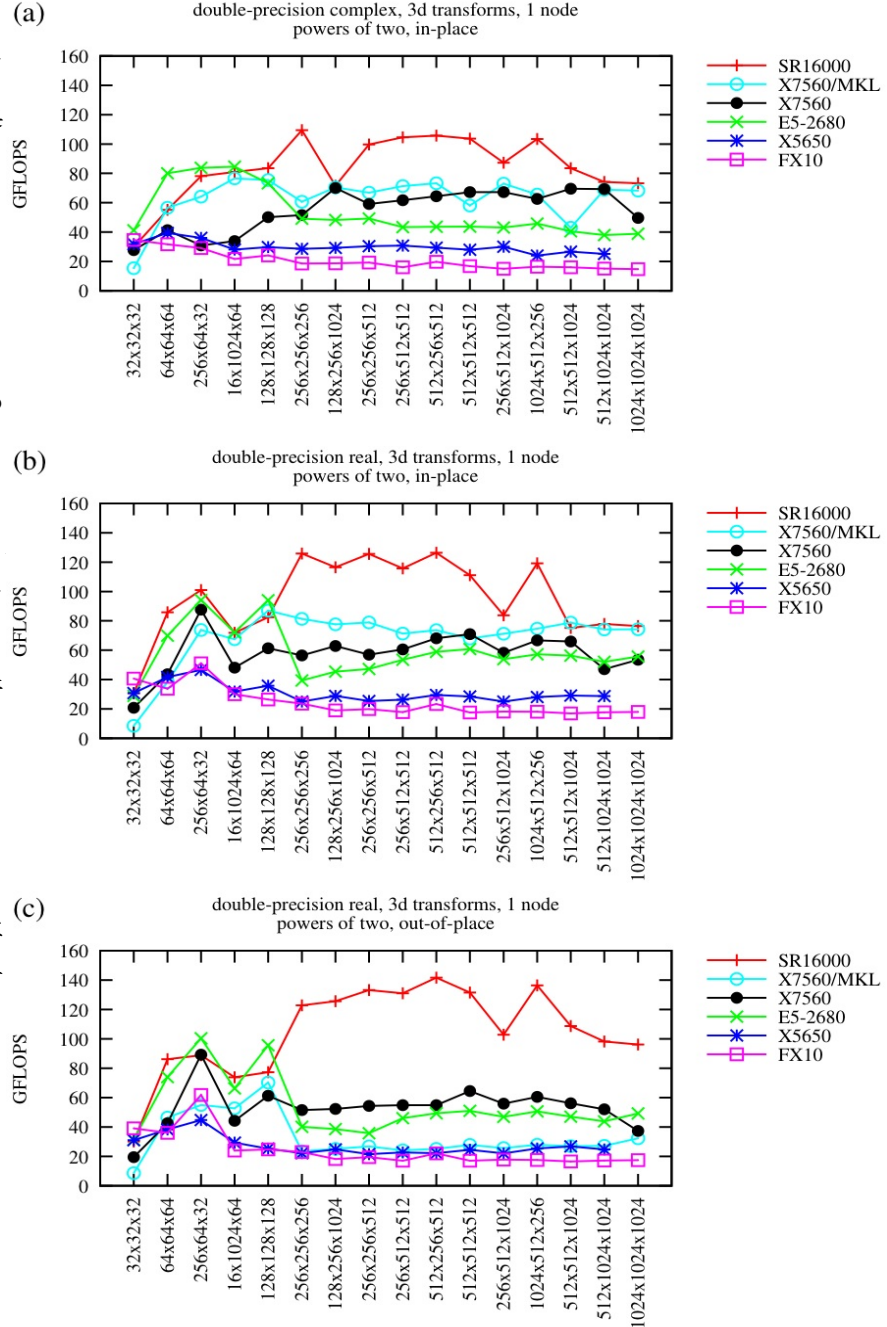
東北大金研<sup>1</sup> 西松毅<sup>1</sup>

物性／物質科学のシミュレーションにおいて3次元高速フーリエ変換(FFT)がしばしば用いられる。FFTライブラリとしてはFFTW

(<http://fftw.org>)が高速で汎用性があり、デファクトスタンダードとなっておりつつある。西松は以前よりそのFFTWを使った簡単なベンチマークを作りソースコードとベンチマークの結果をWeb上に公開し、また、随時更新を行っている。シングルノード用のfft\_check.F[1]とマルチノード用の

fft\_check\_mpi.F[2]である。今回、いくつかのベンチマークの結果を紹介する(一例:図)。

図: いくつかの計算機のシングルノードの3次元FFTの性能。



参考 URL

[1] fft\_check.F: [http://loto.sourceforge.net/feram/src/fft\\_check.html](http://loto.sourceforge.net/feram/src/fft_check.html)

[2] fft\_check\_mpi.F: [https://github.com/t-nissie/fft\\_check\\_mpi](https://github.com/t-nissie/fft_check_mpi)

## 炭素ナノ材料生成過程の第一原理分子動力学法シミュレーション

### —炭素源分子解離機構の解明に向けて—

東大<sup>1</sup>, 熊大<sup>2</sup> 濫田靖<sup>1</sup>, Arifin Rizal<sup>2</sup>, 島村孝平<sup>2</sup>, 小栗知也<sup>1</sup>, 橋爪航<sup>2</sup>, 下條冬樹<sup>2</sup>, 山口周<sup>1</sup>

カーボンナノチューブ・グラフェンの応用にはナノチューブ直径・カイラリティの制御や欠陥の少ないグラフェン生成が必須であり, その生成プロセスの制御が課題である[1]. 様々な生成要素のうち炭素源分子の種類や添加物により, ナノチューブの生成量・質が大きく変化することが実験的に確認されている[1]. 一方近年の計算機環境の大幅向上により, 分子動力学(MD)法やモンテカルロ(MC)法による生成過程の検討が盛んであるが, ほとんどの計算において, 孤立炭素原子が触媒金属を介して六員環ネットワーク生成する過程を再現するにとどまっている[1]. そのような現状の下, 我々は第一原理 MD 法[2]により, Ni クラスタ上での  $C_2H_4$  [3]及び  $C_2H_5OH$  解離[4]過程及び Ni(111)面上での  $CH_4$  解離過程[5]の解析を行い, ナノチューブ及びグラフェン生成初期過程における炭素源分子解離過程を検討してきた. ここでは Ni(111)面上での  $CH_4$  解離過程結果を中心に, 炭素ナノ材料生成過程における炭素源分子解離の検討について紹介する.

本研究では PAW 法による平面波基底の密度汎関数法により電子状態を計算し, 得られた波動関数から Hellmann-Feynman 力を導出し動力学計算を行った. 交換相関ポテンシャルには GGA を適用した.  $12.9 \times 12.9 \times 20.0 \text{ \AA}$  の周期境界セル下部に Ni(111)を 3 層配置し(各層 30 原子), 上部空間にメタン原子 27 個を配置したものを初期状態とし, 1500 K で 21000 ステップの MD 計算を行った. 時刻刻みは 0.242 fs とした. 計算の詳細は文献[5]を参考にされたい.

Ni(111)上で 4 つの  $CH_4$  分子が  $CH_3$  と H に解離し,  $CH_3$  は Ni 表面上に化学吸着し, H 原子が Ni 表面上を跳ねながら動き回る. その後  $CH_3$  は CH へと解離し, 最終的に孤立炭素原子と 4 つの H 原子に解離した. 図 1 に  $CH_4$  が  $CH_3$  と H 原子へ解離する様子を示す. Ni1 原子上で  $CH_4$  中の C1-H1 結合が解離する様子が確認された. 引き続き起きる  $CH_3$  及び CH の解離過程及び孤立炭素原子の Ni 内拡散について発表で紹介するが, 紙面の都合上ここでは割愛する. 詳細については文献[5]を参照されたい. また発表では Ni クラスタ上での  $C_2H_5OH$  解離過程[4]も紹介し, 炭素源分子の解離がナノチューブ・グラフェン生成に与える影響を多方面から議論する.

[1] Y. Shibuta, Diam. Relat. Mater. 20 (2011) 334. [2] F. Shimojo, Sci. Tech. Adv. Mater. 8 (2007) 504. [3] K. Shimamura et al., J. Phys.: Conf. Ser. 454 (2013) 012022. [4] T. Oguri et al. J. Phys. Chem. C 117 (2013) 9983. [5] Y. Shibuta et al. Chem. Phys. Lett. 565 (2013) 92.

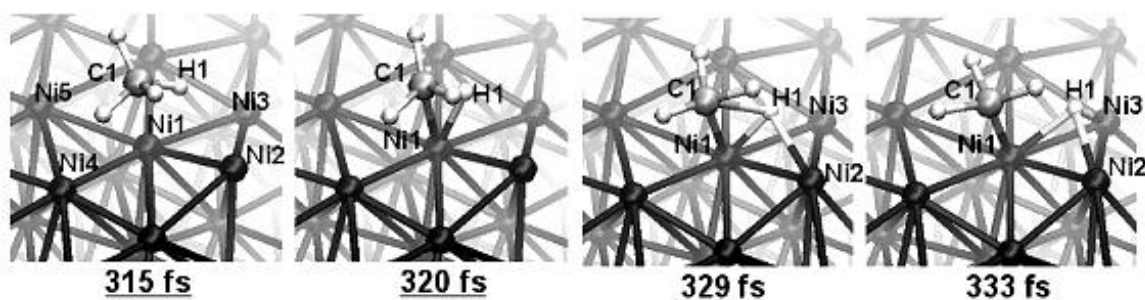


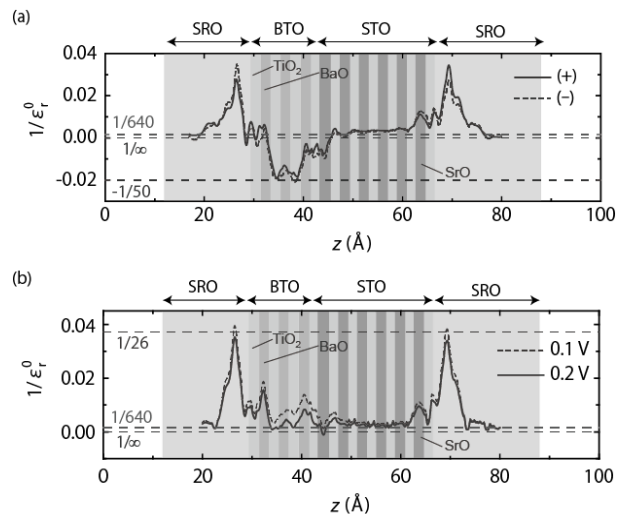
Fig. 1 Snapshots of atomic configuration during dissociation from  $CH_4$  to  $CH_3$  fragment and H atom [5].

## 強誘電体薄膜キャパシタの第一原理解析

東大物性研<sup>1</sup>、東大工<sup>2</sup>、ソウル大<sup>3</sup> 笠松秀輔<sup>1,2</sup>、渡邊聡<sup>2</sup>、  
Seungwu Han<sup>3</sup>、Cheol Seong Hwang<sup>3</sup>

半導体デバイスの微小化を進めるためには、単位面積あたりのキャパシタンスの増加が不可欠である。しかしながら、理想的な金属/high-k 酸化物界面を実現できたとしても、界面における誘電率の低下、すなわち、dead layer 効果が不可避であることが理論、実験両面から示されており、high-k 材料の薄膜化のみに頼ったキャパシタンスの増加は限界に近づきつつある[1,2]。最近、このような問題を解決するため、負の誘電率を示す材料が有用であると提案され、その探索が進められている。特に、強誘電体はエネルギーが分極に対して二重井戸型の構造を示すことで特徴付けられるが、分極ゼロのエネルギー極大点近傍に安定化させることができれば負の誘電率を示すことが予想されている。安定化を実現する方策としては、薄膜化や常誘電体との多層構造化[3]が提案されている。そこで本研究では、第一原理計算で強誘電体薄膜を含むナノキャパシタのキャパシタンスと局所誘電率を計算し、負の誘電率発現の検討を行った。キャパシタ構造の誘電率を評価するためにはバイアスを印加した計算を行う必要があり、そのために我々が最近開発した軌道分離法[4]を用いた。

計算モデルとしては、強誘電体である BaTiO<sub>3</sub> (BTO) 3 ユニットセル、常誘電体 SrTiO<sub>3</sub> (STO) 6 ユニットセルからなる 2 層構造を SrRuO<sub>3</sub> (SRO) 電極で挟み込んだ構造を採用した。このモデルに対して、BTO 薄膜中に分極ドメイン壁が存在しないと仮定して計算した局所誘電率の分布を図(a)に示す。SRO/BTO、SRO/STO 界面では誘電率の大きな低下、すなわち dead layer 効果が見られる。一方、BTO 内部では誘電率が負の値を示しており、これによってキャパシタンスの増幅を得られることが示唆される。しかしながら、面垂直方向に周期 4 ユニットセルの縦縞型分極ドメインを仮定して計算すると、図(b)のように、BTO 中の負の誘電率の発現が抑えられてしまう。従って、分極ドメインの形成を抑えることが、強誘電体の負の誘電率を利用するのに不可欠であると考えられる。



図：単一ドメインを仮定した場合(a)と縦縞型ドメインを仮定した場合(b)の局所誘電率分布。

文献

- [1] M. Stengel and N. Spaldin, Nature 443, 679 (2006).
- [2] H. K. Kim et al., Appl. Mater. Interfaces 5, 6769 (2013).
- [3] S. Salahuddin and S. Datta, Nano Lett. 8, 405 (2008).
- [4] S. Kasamatsu et al, Phys. Rev. B 84, 085120 (2011).

# CMSI の人材育成～計算科学の将来を見据えて～

大阪大学ナノサイエンスデザイン教育研究センター

下司 雅章

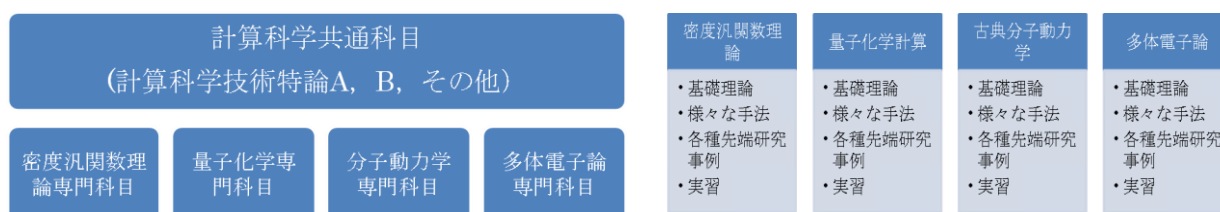
Institute for NanoScience Design(INSD), Osaka University

Masaaki Geshi

今年度から「計算科学技術特論A」を開講し、阪大豊中キャンパスから10カ所に配信して、CMSI 人材育成カリキュラムの第1弾を開始した。カリキュラムとするからにはこれだけでなく、体系的な講義群を形成して初めてカリキュラムとなる。

CMSI で作り上げるカリキュラムは、CMSI のプロジェクトとしての期間で終わるものではなく、今後10年、20年先を見据えて、計算科学の発展のために、またはそれに伴って必要となる人材を育成していくことを目指している。現在下図にあるような開発者養成コース、ユーザー養成コースのカリキュラムの策定を目指しているが、社会全体で見た場合には研究を支援する人材、アプリのシーズと様々な分野も含めたニーズをつなげる人材、産学官の連携をまとめてプロジェクトを推進出来るマネジメントが出来る人材、そしてこれらの人材育成も含めた教育が出来る人材が必要になる。計算科学が、広く社会に貢献出来、認知されていくために、CMSI ではまず我々の専門である物質科学の観点からカリキュラムを作り上げて、他分野に対してのモデルとなるものにしていく。

計算科学の分野の人材育成には、現状ではテレビ会議を使った遠隔講義が効率的である。それとともに、実習によって身につけていく作業が不可欠である。更に、上記要素を備えた人材を育成するためには、戦略的な取り組みが必要である。現状検討している案をいくつか紹介し、自由な発想で世界に羽ばたく人材を育成するアイデアを出し合いたい。



開発者養成コース (案)

ユーザー養成コース (案)

## TCCI における人材育成・教育活動の報告

名大院工計算センター、吉井範行

CMSI プロジェクトのもと、計算分子科学研究拠点(TCCI)において今年度これまで取り組んできた計算分子科学分野の人材育成・教育活動に関して、(1) 大学院・大学講義、(2) ウィンターカレッジ、夏の学校、ワークショップ、(3) その他の活動、について報告する。

(1) 名古屋大学(名大)において大学院講義「分子物理化学特論」を隔年で実施している(次回2014年度)。分子シミュレーションやそれに関連する基礎理論を15コマを費やして解説しており、名大の大学院生はもとより、単位互換協定を締結している総合研究大学院大学(総研大)の学生も聴講し履修している。なお、総研大の分子シミュレーション関連の講義「機能分子基礎理論」についても名大学生が聴講し履修するに至っている。この他にも名大の大学院講義「大規模並列数値計算特論」「計算科学フロンティア連続講義」において、計算科学の重要性や並列計算の方法論について解説している。

(2) 夏の学校、ウィンターカレッジやワークショップに関しては、一昨年、昨年に引き続き、これから分子シミュレーションを始めようとしている学部学生や大学院生、または実験家や企業の研究者など、計算科学に興味がある人を対象に、分子科学研究所との共催にて「TCCI ウィンターカレッジー分子シミュレーションー」を岡崎コンファレンスセンターにて10月23-25日に開催した。講義は学部卒業程度の知識があれば理解できるような内容となっており、特にシミュレーションの経験や専門知識は前提としていない。分子シミュレーションの各分野にて活躍中の研究者を講師に招き、15コマ×90分の講義を開講した。100名の会場定員であったが、短期間の募集で定員が満たされた。また開催後のアンケートにおいても講義レベル、講義量、日程ともにちょうど良いという意見が多数を占めていることから、満足度の高いスクールとなっているものと思われる。なお、この他にも今年度には、分子シミュレーション夏の学校(9月、新潟)を共催した。また12月16, 17日の量子化学ウインタースクール(岡崎コンファレンスセンター)も共催を予定している。来年2月には超並列化技術国際ワークショップも開催予定である。

(3) CMSI 関連の講義配信としては、CMSI 計算科学技術特論A(阪大より配信)について、講義を一部担当するとともに、名大において中継を実施した。またCMSI 人材育成シンポジウムについても名大での中継を行った。

来年度の活動については、名大での講義「分子物理化学特論」が開講予定であり、総研大との単位互換もさらに進める予定である。分子シミュレーション夏の学校やTCCI ウィンターカレッジ(分子シミュレーション、量子化学)についても引き続き共催するとともに、超並列国際ワークショップも開催する予定である。

## 2013 年度 東北大学計算材料科学研究拠点 (CMRI) 活動報告

東北大金研 CMRI<sup>1</sup> 東北大金研 CCMS<sup>2</sup>、寺田弥生<sup>1</sup>、毛利哲夫<sup>2,1</sup>

本拠点は、計算物質科学の中でも材料科学を扱っています。一般に材料科学で扱う対象は、非平衡性や非線形性が強く、又、局所的な不均一性が全体を支配するように、数式で表現すること自体が困難な現象が多くあります。合金に特有な内部組織の形成過程やこれを介した強度や機能の発現の問題は典型的な非平衡・非線形・不均一現象です。本研究拠点では、このような問題に取り組むべく、全国の大学や研究所、企業の研究者と共に、様々な計算プロジェクトの可能性を提案しています。特に、2012 年度、計算材料科学研究拠点のメンバーを中心に「マルチスケール計算材料科学」を軸とする第 5 部会が設立されました。この部会では重点課題とともに 3 つの特別支援課題が現在遂行されています。そこで、これらのプロジェクトを推進するために

1. 計算材料科学分野における研究体制の構築と最先端の研究成果の創出
2. 計算材料科学分野の国際連携と人的ネットワークの構築
3. 計算材料科学の研究者のコミュニティの人材育成と教育や産官学連携

による分野振興を行っています。本年度は、特に、各課題に特化し、関連した研究者が密に議論を行う研究会などを、以下のとおり、開催、もしくは、開催予定です。

- 2013/7/5 TOMBO セミナー：参加 45 名（東北大東京分室）（教育関係アンケート実施）
- 2013/7/17 CMSI 第 5 部会「マルチスケール材料科学」重点課題研究会  
「材料中の複雑構造・組織の第一原理解析」：参加 9 名（産総研関西センター）
- 2013/7/30 CMRI 研究会 CMSI 特別支援課題「合金凝固組織の高精度制御を目指した  
デンドライト組織の大規模数値計算」：参加 31 名（東北大金研）
- 2013/8/21-22 TOMBO20 周年記念講演会/ CMSI 特別支援課題研究合同研究会:のべ 91 名  
（東北大片平北門会館）
- 2013/11/14 CMSI 特別支援課題 Feram: Hands-on (CMSI 神戸拠点)
- 2013/11/25 CMSI 第 5 部会研究会（産総研関西センター）
- 2014/1/6-7 CMSI 特別支援課題 Feram: Workshop and Tutorial（東北大金研）
- 2014/1/8-10 CMRI シンポジウム（東北大金研）

また、教育活動については、下記の通り遂行しています。

- 2013/4 月－7 月 「計算科学技術特論 A」全 15 回：参加のべ人数 154 名（東北大金研会場）
- 2013/10/12-13 東北大学付属研究所等一般公開片平祭り  
金研計算材料科学センターとの合同参加：来場者数のべ 1000 名程度
- 2013/11/19-12/17 「マルチスケール計算材料科学の現状と今後」セミナー全 8 回（東北大物理）
- 2013/12/25 CMRI MPI 講習会（名工大）
- 2014 年 2 月頃 テレビ会議システム利用の配信型の東北大発信の人材育成研究会 予定
- 2013 年後期 若手研究者・大学院生の短期・中期海外派遣など

国際連携では、各種研究会での第 5 部会関連の国外招待講演者の招聘や下記を行っています。  
11/7-9 8th ACCMS-VO 国際シンポジウムなどへの助成



## MateriApps: 物質科学シミュレーションのポータルサイト

東大物性研<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup>、東北大金研<sup>3</sup>、産総研<sup>4</sup>、金沢大<sup>5</sup>、(株)構造計画研究所<sup>6</sup>、(株)揚羽<sup>7</sup>  
五十嵐亮<sup>1</sup>、藤堂眞治<sup>1</sup>、吉澤香奈子<sup>1</sup>、加藤岳生<sup>1</sup>、川島直輝<sup>1</sup>、小西優祐、笠松秀輔<sup>1</sup>  
吉見一慶<sup>6</sup>、佐々木翔一<sup>7</sup>、土田成宏<sup>7</sup>、野田真史<sup>2</sup>、河津励<sup>2,5</sup>、寺田弥生<sup>3</sup>

我々は、計算物質科学の研究者だけでなく、広く理論家、実験家や企業研究者、計算機科学者などのための物質科学シミュレーションのポータルサイト MateriApps<sup>1</sup> を開発し、運営している。MateriApps では、ソフトウェアの利用者にとっては、「利用したいアプリが見つかる」ことを目的として、計算手法や、計算できる物理量からの検索をできるようなポータルを目指している。利用は順調に増加しており、5月の公開からすでに 50000 以上のページビューがあり、2000 以上のユニークユーザーに利用される Web サイトとなっている。他方、ソフトウェア開発者へは、公開を目指すソフトウェアを共同開発するためのソーシャル開発環境 Github のプライベートレポジトリの利用権を提供しているほか、実際にソフトウェアを公開する際のライセンス選択基準を記載したコラムや、ドキュメント・チュートリアル作成、ソフトウェア利用者講習会の開催のサポートなどを通じて、ソフトウェアを公開する開発者をサポートしている。

また、我々は、まずはソフトウェアに「触って」もらうためのソフトウェアがプリインストールされている環境として、MateriApps LIVE!<sup>2</sup> という、USB メモリから PC を起動するだけで MateriApps の公開ソフトウェアを利用してシミュレーションができるシステムを開発している。2013 年 11 月現在、すでに ABINIT, ALPS, CP2K, feram, ERmod, GAMESS, Gromacs, xTAPP, Machikaneyama2002, OpenMX, QUANTUM ESPRESSO を起動するだけで利用可能となっているが、今後さらに物質科学シミュレーション関連のソフトウェアを追加し、利便性を高めていきたい。また、この USB メモリは、CMSI3 主催の各種ソフトウェア講習会等で利用し、実際に配布を行っており、好評である。

本ポスターセッションでは、今後 MateriApps を幅広い領域横断コミュニティメンバーに利用していただくために、MateriApps における第一原理計算アプリの現状と、MateriApps LIVE! によるバンド計算の実演を行うとともに、領域横断メンバーが開発したアプリの公開を啓蒙し、今後 MateriApps への登録を推進していきたい。

### 参考文献

- [1] <http://ma.cms-initiative.jp/>
- [2] <http://cmsi.github.io/MateriAppsLive/>
- [3] <http://www.cms-initiative.jp/>

物質科学シミュレーションのポータルサイト

# MateriApps

<http://ma.cms-initiative.jp/>

## アプリの横断的な利用、開発を促進するWebサイト



### サイト活用によるメリット

- 利用者の立場から
  - ・ 利用したいアプリが見つかる!
  - ・ アプリの使い方をサポート!
  - ・ フォーラムで意見交換、疑問解消!
- 開発者の立場から
  - ・ 開発・公開をサポート
  - ・ 開発者の生の声を届ける!

### 機能

- 「やりたいこと」からアプリを検索できるシステム  
 検索タグ：対象となる物質・模型、計算手法・アルゴリズム、知りたい物理量・物理現象
- 開発者の声を利用者に届けるアプリ紹介開発者ページの設置  
 (アプリ最大の魅力、アプリの将来性・応用性 etc.)
- 掲示板を利用した意見交換の促進
- 共同研究・開発を支えるシステム (実装予定)  
 Web 上でのバージョン管理・ソースコード開発

お問い合わせ先: [ma@cms-initiative.jp](mailto:ma@cms-initiative.jp)

## 計算物性物理メーリングリストへのお誘い



「計算物性物理 (Computational Material Physics) メーリングリスト」、通称 **cmp-ml** は、計算物性物理全般に関する情報交換を目的に運営されているメーリングリストです。計算物性物理に関連した会議やセミナー、計算物質物理に関連の深い人事公募などの情報が紙媒体よりも早く得られる他、専門雑誌や新聞等に発表された新発見や新技術の紹介や、計算物理学コミュニティの活性化につながる提案など、幅広い話題に関するコミュニティメンバーの意見を知ることができます。また、本メーリングリストでは、物性研の共同利用スパコンに関する要望、スーパーコンピューティングの新しい動向に関する情報、分野共通のソフトウェアの開発、といった話題も歓迎しています。今後の計算物性物理を担う、若手の積極的な参加をお待ちしております。

MLの詳細や参加登録は以下のサイトをご参照ください。  
<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/public/cmp/maillinglist/cmpml>





Institute for Solid State Physics  
東京大学物性研究所



Computational Materials Science Initiative  
計算物質科学イニシアティブ