研究課題別中間評価結果

1. 研究課題名：高精度多体多階層物質シミュレーション

2. 研究代表者：今田 正俊（東京大学大学院工学系研究科 教授）

3. 研究概要

本研究プロジェクトでは、実際にはクーロン相互作用の効果の大きな現実物質（強相関電子物質）の物性を予測し、現象のメカニズムを解明する上で、汎用性が高く実用に耐える高精度計算手法を開発することをめざしている。密度汎関数法の局所密度近似など、従来の第一原理計算手法は、強相関電子系に対して多くの困難を抱えている。特に強い電子相関のために絶縁体化するモット絶縁体では、絶縁体を金属と予測するなど、定性的にも誤った結果を与えることが広く知られている。この困難を克服するために、私たちは3段階手法によるアルゴリズムを提唱し、このプロジェクトを推進してきた。3段階手法の開発実装および応用は、当初の計画通り、また一部は計画以上に順調に進んでいる。研究期間の前半では3段階手法の各要素、すなわち大域的電子状態計算とGW計算、ダウンフォールディング法、低エネルギーソルバーについてそれぞれ個別の改良と、各要素の接続による統合的応用を試行し、研究期間の後半で要素を統合して広範な現実物質へ大規模に応用するという大局的な戦略を設定して進めてきた。

計画前半での個別要素の改良、吟味は順調に進んだ。まず、第1段階では LMTO（線形マッフィンティン軌道）局在基底と平面波基底の比較検証を行った。また自己エネルギー補正（GW 法）を整備、並列化して 20–30 原子程度の d 電子系を扱えるようにし、さらに Lowdin の直交化を用いた自己無撞着 GW 法も整備した。第2段階では最局在ワニエ軌道を用いた制限乱雑位相近似（cRPA）法の確立、バンドもつれの解消法の確立、界面でのダウンフォールディング法の確立が進展した。第3段階のソルバー候補としてガウス基底モンテカルロ法、変分モンテカルロ法、動的平均場法（DMFT）および GW+DMFT 法の改良と適用範囲拡張が進んだ。VO₂、SrVO₃、BEDT-TTF 型（あるいは ET 型）と呼ばれる有機導体の基底状態や GaAs の励起状態を個別例として改良した個別要素の検証も進めた。

一方、3段階手法を総合的に組み合わせながら、興味ある数種類の物質群への実際の適用も進んできた。応用の可能性が高いことから新物質研究のフロンティアとなっている、いくつかの物質での第2段階までの有効模型導出は完了している。昨年2月に日本で発見され、臨界温度が 50 度を超える鉄系超伝導体の基本的な電子状態を第一原理計算によって解明するとともに、3段階手法を直接適用することによって、この超伝導体の有効理論模型を世界に先駆けて求め導出し提案した。この物質群は、電子相関が中程度に大きな、特徴的な多バンド有効模型で表されることがはっきりしてきており、今後の超伝導機構解明を含む基礎研究展開の礎ができた。この物質群に属する化合物間の違いと共通性も世界に先駆けて解明した。また界面の研究では、界面が周期系ではないことからダウンフォールディングには困難が大きかったが、3段階要素の改良により、この困難に対処できる目処がついた。BEDT-TTF 型有機伝導体は単位格子に原子が 100 以上もある複雑な系であるが、この系に対しても3段階手法を適用し、有効理論模型を導出することに成功した。引き続きこれらの有効模型を低エネルギーソルバーで解く計算が進行している。3段階手法の一貫した流れによって、一群の相関の強い電子系の物性を第一原理的に予測するという大目標の達成が近づいてきた。

4. 中間評価結果

4-1. 研究の進捗状況及び研究成果の現状

本研究は、強相関電子物質の物性予測及び現象解明のための高精度計算手法開発である。このために、本研究チームは3段階手法によるアルゴリズム(大域的電子状態計算と GW 計算、ダウンフォールディング法、低エネルギーソルバー)を提唱し、開発し、応用を含めて研究を行っている。

当初の研究計画から見た進捗状況や達成度等に関しては、現在のところでは、三つの研究グループで多少の凹凸はあるものの、全体としてみれば順調に進展しており、また成果も得られており、進捗状況は優秀と判断される。

新たな方向性や方針変更等、当初計画では想定されていなかった新たな展開が生じたかに関しては、以下の2点で当初予想されていなかった大きな成果が得られ、望ましい展開と判断する。

- ① 鉄系新超伝導体は本プロジェクトの発足後に発見され、本プロジェクトではその電子状態解明を重要なテーマとして取り組んでいる。世界に先駆けて鉄プニクタイト超伝導体の低エネルギー有効模型を導出し、この系が電子相関の比較的強い系であることをはじめて第一原理的に示した。また、いくつかの異なった系列の鉄系新超伝導体の有効模型をダウンフォールディングによって導き、それらの共通点と異なる点を明らかにしている。
- ② 界面系の第一原理計算およびダウンフォールディングも当初具体的な計画は立てられていなかったが、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ を例にとりてダウンフォールディングによる有効模型導出が進んでいる。特にダウンフォールディングの過程で、並進対称性がない界面に、界面から離れたワニエ局在軌道の形成するバンドがフェルミレベル付近で絡み合いの大きなバンドを形成し、これを消去する必要があるという困難が生じた。絡み合いの大きなバンドがフェルミレベル付近にあり、この自由度を消去する必要があるという例は並進対称性のない系に特有の困難であるばかりでなく、バルクの遷移金属などの単純な系でもすでに知られており、3段階手法にとりて解決すべき普遍的問題であった。この問題に対して、もつれ解消法を開発し、もつれのない自由度の低い系の有効模型に帰着させる方法を開発している。

成果の科学的・技術的インパクト、国内外からの類似研究と比較したレベルや重要度という点に関しては、強相関電子物質は、将来の新電子材料として大いに期待されるものであり、本研究成果が新しい物質の発見、物性の解明に利用されるならば、その成果の科学的・技術的インパクトは極めて大きい。また、新規な鉄系超伝導体、有機導体など、物性物理として注目されている物質のシミュレーションにより、予言性の高いシミュレーションの枠組みを提供しており、国内外からの類似研究と比較したレベルや重要度は高い。3段階手法の精度は手法自体、研究代表者等がオリジナルに提唱したものであるが、このプロジェクトの一連のテストと本格応用によって、現実の強相関電子物質をパラメタなしに扱い、定量的な予測が可能であることを実証した。鉄系新超伝導体や有機導体の低エネルギー有効模型を定量的に導出し、低エネルギーソルバーを適用して解くというような、強相関電子系に対する一貫した定量的研究は世界的にも例を見ない。この成果はいくつかの国際会議での招待講演や、物理学会誌での解説、日本物理学会シンポジウムなどで広く紹介している。同様の手法はドイツ、アメリカなどでも試み始められており、研究の潮流は急速に広がりつつある。

研究実施体制については、代表者が各グループに対してよくリーダーシップを発揮して運営している。ただ、チームの運営に時間を割かれるためか、代表者グループの成果は他グループと比較して十分でないように見受けられる。代表者グループにおいても、他グループと同等かそれ以上の成果を上げることを期待したい。

研究費の執行については、システム構築に適切に使用されており妥当である。

4-2. 今後の研究に向けて

今後の研究の進め方については、現段階での成果は問題ないので、進捗の遅れが出ている部分の影響を最小限にとどめる必要がある。米国に移った研究者が相当な戦力だったと思われるので、その補充を急いで、研

究を一層強力に推進していただきたい。マルチスケールの視点からすると、より大規模な計算にも期待したく、マルチフィジックスの観点はさらに強化されることを期待したい。また、研究期間の後半で望まれることとして、

- ① 結果の精度の更なる検証
- ② 大規模系への適用。必要となる計算資源が膨大となると予想されるので、超大規模並列計算システムに向けた手法の改良とチューニングが必要と考える。
- ③ 本研究で開発されたシミュレーションシステムを他の研究者にも使えるよう汎用化と一般化を図り、広くこの分野の研究者が利用できるような環境を整えることが望まれる。

が挙げられる。更に、低エネルギーソルバーでの解析をより広範に進め、定量的精度の検証によってこの手法の地歩を固めていくことが重要である。また世界の中心になれる素地は十分あるので、いち早くドイツ、米国まで巻き込んでいく方策も検討してもらいたい。

今後見込まれる成果、戦略目標に向けての貢献、成果の社会的なインパクトの見通しについては、やや遅れが生じている部分があるが、戦略目標への貢献が期待でき、社会的なインパクトも十分大きく、一層の成果も期待できる。マルチスケール・マルチフィジックスシミュレーションの発展に貢献している。社会的には、次世代デバイスやエレクトロニクス応用の可能性の定量的吟味を可能にするというインパクトがある。高い精度を得ており、予言能力が高まれば、社会的インパクトは更に大きくなる。

4-3. 総合的評価

非常に優れた研究であり高く評価できる。今後、一層の進展が望まれる。3段階法による強相関電子系のシミュレーションの枠組みが着実に進められており、鉄系新超伝導体のシミュレーションによる解明が大きく進歩した。世界的に強相関電子物質(高温超伝導物質など)を正しく解析する方法論は確立しておらず、本研究チームの提案する3段階法はその有力な方法であることを示すことができたことは、この CREST の一つの成果に上げることができる。研究代表者等は物性物理の最も重要な分野で世界の拠点としてのポジションを確立しつつある。有力雑誌に掲載された論文数、国際会議招待講演の数がとても多く、国際的に高い評価を受けるような、大きな成果を挙げており、今後の更なる発展が期待される。

米国に移った研究者が相当な戦力だったと思われるので、その補充を急いで、研究を一層強力に推進していただきたい。マルチスケールの視点からすると、より大規模な計算にも期待したく、マルチフィジックスの観点はさらに強化されることを望む。

21世紀の計算科学は予言学であるべきで、実験結果の解釈にとどまっている限り計算科学の本来の役割を發揮したとは言えない。新しい高温超伝導物質を予言することができれば、計算科学として一流であるといえる。本研究チームにはその能力があると判断して、上記実現を目指していただきたい。