

## 研究課題別事後評価結果

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

研究代表者

今田 正俊 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

主たる共同研究者

Antoine GEORGES (Ecole Polytechnique, Department of Physics, Centre de Physique  
Théorique, Professor)

三宅 隆 ((独)産業技術総合研究所ナノシステム研究部門 主任研究員)

3. 研究実施概要

本プロジェクトでは、クーロン相互作用の効果の大きな現実物質の物性を予測し、現象のメカニズムを解明する上で、汎用性が高い高精度計算手法を開発し応用を展開することを目標とした。応用対象として遷移金属化合物、有機化合物を中心とし、物理的に興味ある物質群に対する電子状態計算法の開発実装を目指した。このためにマルチエネルギー階層構造を意識した上で、低エネルギー側と高エネルギーでの物理の橋渡しを行い、低エネルギー側に要求される高精度と高エネルギースケール全体の計算効率とを両方実現する手法(Multi-scale *Ab initio* scheme for Correlated Electrons (MACE))を開発、改良し、実用に供するところまで研究を進めた。

この手法は3段階から構成されている。第一段階は大局的な電子構造を密度汎関数法に基づいて求める。この部分は主として産総研と東大が分担して受け持った。産総研は LMTO による基底、東大は平面波基底を採用し、相補的に相互のチェックも必要に応じて行った。第二段階はダウンフォールディングと呼ばれ、大局構造から最局在ワニエ軌道の構成を行ったうえで、このワニエ基底に対する低エネルギー有効モデルを導出するステップである。このステップでは、代表者らは従来から制限 RPA 法を提唱しており、この手法は実際このプロジェクトの研究期間中に世界的な標準手法として確立した。この基本手法に対してさらにバンドもつれをほどこす方法や次元縮約法、周期性のない界面系でのダウンフォールディング法などを東大、産総研グループが連携して確立した。また GW+DMFT 法も産総研、パリグループにより開発実装が進んだ。これらの改良手法は実際に鉄系超伝導体や有機導体、遷移金属酸化物に適用され有用性が立証された。また制限 RPA 法は「京」の重点課題の対象として東大グループで高度化、並列化を進め、現在約 25,000 ノードで実行ピーク性能比 20%程度に達している。有効モデルを導出した応用は多数にのぼり、そこで対象とした物質は、GaAs など数種の半導体、6 種の鉄系超伝導体、3 種 5 通りの有機導体、数種の遷移金属酸化物、銅酸化物、ゼオライト、界面系などである。第三段階は低エネルギーソルバーによる有効モデルを解く段階で、東大グループを中心にガウス基底モンテカルロ法、多変数変分モンテカルロ法の改良などを進め、高精度であることの立証ならびに「京」に対する高度並列化も進めた。またクラスター拡張した動的平均場近似の改良実装も、パリグループを中心に東大も協力して推進した。

この手法をこのプロジェクト期間中に新たに発見された鉄系超伝導体に機動的に応用し、世界に先駆けて有効モデルを導出したうえで、これを多変数変分モンテカルロ法と動的平均場近似で東大、産総研、パリのすべての協力で分担して解き、この物質群で電子相関が重要な役割を果たしていることを、初めて第一原理的に立証した。さらに、謎であったこの物質群の磁気秩序の大きさが、第一原理モデルで定量的に再現されることを示した。また、この物質群が巨大なモット絶縁体の辺縁部に位置していることを発見し、ここで理論的に予言したより大きな大局構造を、全貌解明のために実験的に追究するべきであることを提案した。

有機導体の第一原理モデルを解くことにも取り組み、実験で見いだされるモット転移(金属絶縁体転移)をほぼ定量的に再現し、小さなずれの原因についての考察も行った。またこの手法は周期性のない界面系である  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  に対しても適用され、第一原理有効モデルを導出した。この研究期間中に発見された芳香族超

伝導体に対しても第一原理模型を導出している。さらに、スピン軌道相互作用の大きな系の研究が物性物理学において大きな進展を見せており、これに対応して MACE もスピン軌道相互作用を実装し、 $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  などにおいて絶縁相の性格解明、物性解明に貢献した。

このようにして、MACE は、総合的に強相関電子系を第一原理的に解き明かせる現状では唯一の手法として、その地歩を固めた。さらに、重要ないくつかの物質群の物性を解明することに成功し、今後の実験研究の指針を与えて、強相関電子系の物性の計算物理学的な解明に貢献した。

#### 4. 事後評価結果

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

固体物性分野で話題となっている高温超伝導に代表される強相関電子系の物性を統一的に解析する、汎用的な電子状態計算手法 Multi-scale *Ab initio* scheme for Correlated Electrons (MACE) の開発・改良を行った。手法としては、階層性を取り入れた統一的なシステムであり、その手法をほぼ確立し、鉄系超伝導体に応用して有効模型を導出して解き、この物質群での電子相関の重要性を第一原理的に示した。また、磁気秩序の大きさが第一原理模型で定量的に再現されることを示し、この物質群が巨大なモット絶縁体の辺縁部に位置していることを発見し、実験面への示唆を与え、世界でも初めての知見を得るなど十分な成果を得ており、大いに評価できる。

当初計画では想定されていなかった新たな展開として、本研究開発で開発された手法を、プロジェクト途中で新たに発見された鉄系超伝導体の物性解明に適用し、その有効模型を導出するとともに、電子相関が大きく関わっていることを立証したことがある。これは、ここで開発された手法が強相関電子系の物性解明に極めて有効であることを示したものであり、この手法が広く普及することが期待できる。これは新たな展開と言え、望ましい成果であった。上記鉄系超伝導体に加え、スピン軌道相互作用の大きな系、有機導体の研究はこのプロジェクトが始まった後に実験的ブレークスルーがあった研究分野であり、これに機動的に対応して電子相関の効果を第一原理的に解明する研究成果を挙げたことは、大いに評価できる。

外部発表に関しては、国際雑誌に 92 件の原著論文、国際会議での招待講演 108 件などの成果発表実績はすばらしい。また、チーム間連携に関する共同研究の原著論文も 16 報以上の発表があり、更に、総説・解説も 7 編の発表があり、非常に優れていると言える。特に、論文発表及びほとんどの招待講演が国際的な場で行われていることは、本研究が海外から高く評価されていることを示すものであり、望ましい。また、啓発書として岩波書店から発行された「計算科学」の中の一分野「物質科学と電子相関」を執筆したことは特筆できる。

知的財産権の出願および活用に向けた取り組みについては、特許出願は研究戦略によるので一概に評価できないが、今後、開発したプログラム等の公開を適切に進める必要があるように思われる。

研究の進め方については、海外の機関とも連携をとり、また、実験研究者との国際ミーティングを開催して連携を図る等、プロジェクトを良くまとめたと言える。MACE と呼ぶ統一された手法をプロジェクト期間内に完成させ、さらに実際の応用で手法の有効性を立証したことは、一つには代表者のリーダーシップが十分発揮されたことによると考えられる。

##### 4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

研究成果の科学的・技術的インパクト、国内外の類似研究と比較したレベルや重要度に関しては、強相関電子系における統一的な手法を確立し、統合システムとして完成させたのが世界的にも初めてということは、世界レベルで重要な研究と言える。特に、高温超伝導体というこれからの重要な電子材料分野への応用という面で、科学的・技術的なインパクトは大きいものがある。

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としては、マルチスケール・マルチフィジックス(超大規模・複雑)なシミュレーションを実現する効率的な計算手順を確立し・・・、という大きな達成目標の観点からは、「京」上でも大規模化を図っており、「京」への実装で 20%の実行効率を出すのは容易ではないがそれを達成した等、十分その目標を達成したと言える。社会的インパクトについては、ここで開発された手法が実際の中で今後どのように使われていくかにかかっているが、鉄系超伝導体への適用によって、その有効性が実証されており、実際の中で広く使われていくことが期待できる。

今後、研究成果のさらなる展開が期待できるかについては、プロジェクト中で鉄系超伝導体に適用し、その有効性が実証されているので、今後の展開が期待できる。特に、今回と同様、実験的研究におけるブレークスルーを上手く捕えた研究成果が期待でき、これにより新たな材料の開発等が期待される。

その他特記すべき事項としては、岩波書店の啓発書への執筆、学会誌への解説記事の執筆等は、本研究についての啓発・理解増進という意味で、十分評価できる活動と言える。また、計算科学による予測をより確実なものとするため、実験研究との連携を一層図っていただきたい。

#### 4-3. 総合的評価

強電子相関係の物性解明のための統合されたシステムの研究開発を行い、それを一通り完成させ、かつ、実際の中で本手法を適用し、有効性を立証すると同時に世界初の知見を得たことは高く評価される。また、マルチスケール・マルチフィジックスという戦略目標の観点からも十分な成果を挙げたと判断される。

具体的には、クーロン相互作用の効果の大きな強相関電子系の現実物質、例えば、鉄系超伝導体、スピン軌道相互作用の大きな系、有機導体の現象のメカニズムを解明する電子状態計算法を開発し、低エネルギー側に要求される高精度と高エネルギースケール全体を効率的に実現するMACE手法を実用供せる段階にまで発展させたことは、高く評価される。特に、新たに発見された鉄超伝導体群で電子相関が重要な働きを果たしていることを第一原理から定量的に見出したことや、磁気秩序の大きさを第一原理モデルで定量的に再現させたことは素晴らしい。

量子スピン流体、電子相関誘起トポロジカル絶縁体のような新しい量子相の研究が進行中であり、これらは「京」の戦略機関重点研究課題としても進行中とのことで、今後も大いに期待できる。