

平成 21 年 7 月 31 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2005～2008

課題番号：17064005

研究課題名（和文） 次世代量子シミュレータ・量子デザイン手法の開発

研究課題名（英文） Development of New Quantum Simulators and Quantum Design

研究代表者

赤井 久純 (AKAI HISAZUMI)

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：70124873

研究成果の概要：

量子シミュレーションにおける局所密度近似を超える手法や大規模系を扱う手法を開発するとともに、それらを用いた計算機マテリアルデザイン応用研究を実施した。その成果は3回の国際会議および多数のミニワークショップ、研究成果報告会を通じて公開・普及された。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	1,900,000		1,900,000
2006年度	3,000,000		3,000,000
2007年度	3,700,000		3,700,000
2008年度	9,100,000		9,100,000
総計	17,700,000		17,700,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：

キーワード：量子デザイン、量子シミュレーション、計算機マテリアルデザイン

## 1. 研究開始当初の背景

環境に負担をかけず、効率的に新しい材料はデバイスを開発するための手法として計算機マテリアルデザイン手法がある。この手法の利点は認識されていたが、広く開発研究に適用するためには量子シミュレーションの精度と規模を飛躍的に高める必要があった。

## 2. 研究の目的

量子シミュレーションの性能を飛躍的に高めるために (1)  $\nabla$ 密度汎関数法の局所密度近似を超えた計算手法を開発する、(2)大規模系を扱えるオーダーN法などの手法を実装する、(3)それらを実装し実用計算に用いることのできる量子シミュレータを開発する、(4)量子シミュレーションを用いた量子デザインを行い、その実証実験を行う、(5)開発した送付

とウェアの公開と普及を行う。

## 3. 研究の方法

(A01)新しい第一原理計算手法の開発、(A02)量子シミュレータの開発・公開と普及、(A03)計算機マテリアルデザイン、の3研究項目を設定し、領域を通じたコミュニティー内の情報の交換、研究連携のもとに研究を推進する。

## 4. 研究成果

大規模系に適用可能な超並列大規模量子ダイナミクスシミュレータの開発とその応用研究が行われ、GW手法を導入した上でのベンゼン分子等のエネルギーギャップの計算や、有機分子と金属表面の電子状態、フォノン計算と超伝導系の探索、シリコン中不純物の拡散制御の研究が進展した。近似を用いず

にオーダーNを実現することのできる遮蔽 KKR とフルポテンシャル KKR を組み合わせたオーダーN・フルポテンシャル KKR 法が開発され、金属・半導体ショットキー接合などのサブミクロン厚さをもつ薄膜計算に適用されて、界面状態などの多くの新しい知見が得られた。密度行列を用いてオーダーNを実現するプログラムパッケージ CONQUEST が英国グループと共同で開発され、約 23000 原子までの系が扱えるようになった。この手法を用いて水溶液中の DNA 10 塩基対に対してセルフコンシステント計算が可能であることが示されるとともに、イオンチャンネル gramicidin-A に対する理論的研究がなされた。LDA での範囲では困難な軌道偏極等の秩序状態の記述を目指して GW 法に基づく第一原理電子状態計算のコード開発が進められた。異なる階層のシミュレーションを統合するための新しいタイプのハイブリッドシミュレーション手法が開発され、その応用としてグラフェンにおける点欠陥周辺の構造緩和の問題が扱われた。

大規模系に適用可能な超並列大規模量子ダイナミクスシミュレータの開発とその応用研究が行われ、GW 手法を導入した上でのベンゼン分子等のエネルギーギャップの計算や、有機分子と金属表面の電子状態、フォノン計算と超伝導系の探索、シリコン中不純物の拡散制御の研究が進展した。近似を用いずにオーダーNを実現することのできる遮蔽 KKR とフルポテンシャル KKR を組み合わせたオーダーN・フルポテンシャル KKR 法が開発され、金属・半導体ショットキー接合などのサブミクロン厚さをもつ薄膜計算に適用されて、界面状態などの多くの新しい知見が得られた。密度行列を用いてオーダーNを実現するプログラムパッケージ CONQUEST が英国グループと共同で開発され、約 23000 原子までの系が扱えるようになった。この手法を用いて水溶液中の DNA 10 塩基対に対してセルフコンシステント計算が可能であることが示されるとともに、イオンチャンネル gramicidin-A に対する理論的研究がなされた。LDA での範囲では困難な軌道偏極等の秩序状態の記述を目指して GW 法に基づく第一原理電子状態計算のコード開発が進められた。異なる階層のシミュレーションを統合するための新しいタイプのハイブリッドシミュレーション手法が開発され、その応用としてグラフェンにおける点欠陥周辺の構造緩和の問題が扱われた。

磁性制御による動的量子反応デザイン手法の開発と応用をターゲットとして、磁性を制御するための人工ナノ構造のデザインおよびこのようにデザインされた人工ナノ構造により新たに付加される磁性の化学反応に対する効果について研究が行われ、鉄表面上

の白金薄膜への酸素分子の解離吸着における動的過程のメカニズムが解明された。酸化物絶縁体とハーフメタルとの界面がデザインされるとともに、種々の磁気抵抗素子の輸送特性が解析された。実空間差分法を用いた第一原理分子動力学シミュレーションコードが開発・整備され、それを用いたナノ構造の電子輸送機能のデザインが行われた。高圧極限下での新しい物質合成を目指した種々の量子シミュレーションが行われ新磁性物質 CaN の高圧物性に関する研究が進められた。実空間密度汎関数法をチューニングすることにより大規模なナノ・バイオ物質のデザインが可能となった。このコードを用いて 10701 Si 原子それを終端する 1996 水素原子を含む量子ドットの世界最大規模の DFT 電子状態計算が行われた。計算機マテリアルデザインエンジンの開発と応用として高いキュリー温度をもつ希薄磁性半導体合成のためのドーピング、ナノスケールの自己組織化を利用した磁性半導体設計、IV 族半導体ベース環境調和希薄磁性半導体のデザイン等が実施された。量子ハイブリッド分子動力学法を用いて、溶媒等もふくむ RNA 蛋白質複合体における酵素触媒反応について「まるごと」シミュレーションが行われた。近年量子スピンホール効果が注目を集めているがビスマス薄膜の種々の構造が量子スピンホール効果を起こすか否かが理論的に調べられ、(111) 1-bilayer は量子スピンホール相になることが示された。強磁性体中を流れる電流が微視的交換相互作用を通じて磁化におよぼすスピントルクとその反作用としてのスピン駆動力に関する理論が構築され、その計算手法およびスピン緩和の効果を扱うことのできる微視的計算手法の開発研究が行われた。

実証実験の一環として、酸化物半導体を母体とする希薄磁性半導体とマルチフェロイック材料に対するラマン散乱や電子顕微鏡観察などによる実験的手法によってその基礎的物性が調べられた。CMOS デバイスへの金属電極と高誘電率ゲート絶縁膜の導入においてゲート電極材料の実行仕事関数の制御が課題となっている。実行仕事関数の変調現象を説明する理論モデルを実験的に検証するために、酸素空孔や界面軌道混成に加えて、Hf 系酸化物中の格子間酸素による影響が調べられ、理論モデルとの良い一致が確認された。超短時間で時々刻々変化する物質の構造や機能をワンショットベースで実時間可視化できる「時間・周波数 2 次元実時間イメージング分光法」が開発され、これを用いた種々の超短時間現象の実時間イメージングによる研究が進められた。分子線エピタキシーにより作成された GaGdN ナノロッドに対してその形状と Gd 濃度との相関が明らかにされ、その室温における強磁性的振る舞いが観

察された。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 742 件)

以下に主要なもののみ記載

#### A01 「新しい第一原理計算手法の開発」

1. Optical absorption study by ab initio downfolding approach: Application to GaAs, K. Nakamura, Y. Yoshimoto, R. Arita, S. Tsuneyuki and M. Imada, Phys. Rev. B **77**, 195126 (2008).
2. Equation of state and Raman frequency of diamond from quantum Monte Carlo simulations, R. Maezono, A. Ma, M.D. Towler, and R. J. Needs, Phys. Rev. Lett. **98**, 025701 (2007).
3. A self-consistent first-principles calculation scheme for correlated electron systems, K. Kusakabe, N. Suzuki, S. Yamanaka, and K. Yamaguchi, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 445009 (2007).
4. Downfolded Self-Energy of Many-Electron Systems, F. Aryasetiawan, J.M. Tomczak, T. Miyake and R. Sakuma, Phys. Rev. Lett. **102**, 176402 (2009).
5. First principles  $T$ -matrix calculations for Auger spectra of hydrocarbon systems, Y. Noguchi, S. Ishii, K. Ohno, I. Solovyev, and T. Sasaki, Phys. Rev. B **77**, 035132 (2008).
6. Time-dependent density-functional theory simulation for electron-ion dynamics in molecules under intense laser pulses, Y. Kawashita, T. Nakatsukasa, K. Yabana, J. Phys.: Condens. Matter **21** 064222 (2009)

#### A02 「量子シミュレータの開発・公開と普及」

1. Magnetic Properties of 3d Pyrite-type Mixed Crystals Calculated by the Full-Potential KKR-CPA Method, M. Ogura and H. Akai, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 365215 (2007).
2. The energetics of hut-cluster self-assembly in Ge/Si(001) from linear-scaling DFT calculations, T. Miyazaki, D. R. Bowler, M. J. Gillan and T. Ohno, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 123706 (2008).
3. First-principles theoretical study of Alq<sub>3</sub>/Al interfaces: Origin of the interfacial dipole, S. Yanagisawa, K. Lee and Y. Morikawa, J. Chem. Phys. **128**, 244704 (2008).
4. The surface Rashba effect: a k-p perturbation

approach, T. Oguchi and T. Shishidou, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 092001 (2009).

#### A03 「計算機マテリアルデザイン」

1. Magnetic and electronic properties of Fe-filled single-walled carbon nanotubes on metal surfaces, M. David, T. Kishi, M. Kisaku, H. Nakanishi, H. Kasai, Surface Science **601**, 4366-4369 (2007).
2. Half-metallic interface and coherent tunneling in Co<sub>2</sub>YZ/MgO/Co<sub>2</sub>YZ (YZ=MnSi,CrAl) magnetic tunnel junctions: A first-principles study, Y. Miura, H. Uchida, Y. Oba, K. Abe, and M. Shirai, Phys. Rev. B **78**, 064416 (2008).
3. First-Principles Study on Electron-Conduction Properties of C<sub>60</sub> Bridges, T. Ono and K. Hirose, Phys. Rev. Lett. **98** 026804 (2007).
4. Determining the Structure of Phosphorus in the Phase IV, T. Ishikawa, H. Nagara, K. Kusakabe, and N. Suzuki, Phys. Rev. Lett. **96**, 095502 (2006).
5. Atomic and electronic structures of carbon nanotubes on Si(001) stepped surfaces, S. Berber and A. Oshiyama, Phys. Rev. Lett. **96**, 105505 (2006).
6. Super-paramagnetic blocking phenomena and room-temperature ferromagnetism in wide band-gap dilute magnetic semiconductor (Ga, Mn)N, K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L682-L684 (2007).
7. A novel computational scheme for accurate and efficient evaluation of  $\pi$ - $\pi$  and  $\pi$ - $\sigma$  stacking, Y. Hagiwara, and M. Tateno, J. Phys.: Condens. Matter, **21**, 245103 (2009).
8. Systematic study on work-function-shift in metal/Hf-based high-k gate stacks, Y. Kita, S. Yoshida, T. Hosoi, T. Shimura, K. Shiraishi, Y. Nara, K. Yamada and H. Watanabe, Appl. Phys. Lett. **94**, 122905 (2009).
9. Intrinsic spin Hall effect in platinum: first-principles calculations, G.-Y. Guo, S. Murakami, T.-W. Chen and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. **100**, 096401 (2008).
10. Large magnetization in high Gd concentration GaGdN and Si-doped GaGdN grown at low temperatures, Y. K. Zhou, S. W. Choi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi,

Appl. Phys. Lett. **92** 6062505 (2008).

11. 「スピン分極された白金を用いて反応を促進させる方法およびその利用」笠井秀明, 中西寛, 津田宗幸, 特願2006-176888号, 2006年6月27日

〔国際会議での口頭発表〕(計 321 件)

以下に主要なもののみ記載

#### A01 「新しい第一原理計算手法の開発」

1. Transcorrelated method: A new first-principles theory for solids, S. Tsuneyuki, PACIFICHEM 2005 (invited), (Honolulu, 2005).
2. Electronic Structure and Thermoelectric Property of CaCo<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, M. Arai, M. Isobe, E. Takayama-Muromachi, International Conference on Quantum Simulators and Design 2008, (Tokyo, 2008).
3. Quantum Monte Carlo studies of chromium dimer Cr<sub>2</sub>, R. Maezono, Quantum Monte Carlo in the Apuan Alps IV, (Vallico Sotto, 2008).
4. Determination of the Mott insulating transition by the multi-reference density functional theory, Koichi Kusakabe, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems SCES'07 (Houston, USA, 2007)
5. First-principles GW study of LaFeAsO: Electronic structure and correlation effects, T. Miyake and R. Arita, International Workshop on Iron Related high-Tc Superconductors (IRiSes2009), Tokyo, 2009
6. Kaoru Ohno, "Time-dependent Schrodinger equation approach and two-particle Green's function approach for the excited states of nanomaterials", ACCMS-WG (Sendai, 2006, September 7-9).
7. Simulation for electron dynamics in solid under intense laser pulse, K. Yabana, ISSP International Symposium on "Foundations and Applications of the Density Functional Theory" (Tokyo, 2007).

#### A02 「量子シミュレータの開発・公開と普及」

1. Computational nano-materials design and its application to spintronics, H. Akai and M. Ogura, Japan-Germany Joint Workshop 2009 Nanoelectronics (Kyoto, 2009)
2. Manipulation of Nuclear Spins in Interfaces of Diluted Magnetic

Semiconductors, M. Ogura and H. Akai, Sakura-Workshop (Wakoh, 2008)

3. Y. Tateyama: Ab Initio Free Energy Approach to Redox Reaction in Solution and on Solid/Solution Interface, 2009 WPI-AIMR annual workshop, 2009/3/5, Zao, Japan.
4. First-Principles Theoretical Study of Alq<sub>3</sub>/metal Interfaces, Y. Morikawa, Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (ASOMEAIII), (Sweden, 2005).
5. Vibration Problem of H in Silicon, 23th Int. Conf. Defects in Semiconductors, K. Shirai, I. Hamada and H. Katayama-Yoshida, 23rd International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-23), (Awaji, 2005).
6. Theoretical Investigation on the Electronic Structure of the Alq<sub>3</sub>/Al Interfaces, S. Yanagisawa and Y. Morikawa, Psi-k2005 conference, (Germany, 2005).
7. Orbital polarization in transition-metal oxides and X-ray absorption linear dichroism, T. Jo, Theoretical Concepts on Magnetism in Solids (Symposium in Memorial of Paolo Carra) (Grenoble, 2006).

#### A03 「計算機マテリアルデザイン」

1. Mary Clare Escaño, Hideaki Kasai "Reactivity of diatomic molecule on bimetallic surface: the case of O<sub>2</sub> adsorption and dissociation on Pt/Fe" AVS 55th International Symposium and Exhibition/2008
2. Emi Minamitani, Hiroshi Nakanishi, Wilson Agerico Diño, Hideaki Kasai "The competition between Kondo effects and localized spin-spin interaction effects on scanning tunneling spectroscopy" the 25th International Conference on Low temperature Physics/2008
3. Theoretical study on tunneling current flowing between STM tip and acetylene-adsorbed Si(001) surface, Y. Egami, T. Ono, and K. Hirose, Nagasaki Symposium on Nano-Dynamics 2008 (Nagasaki, 2008).
4. S. Okada, Energetics of Nanographite Ribbons, Okazaki Conf 2009 (February 21-23, 2009, Okazaki Conference Center,

- Okazaki).
5. A. Oshiyama, *Cation vacancies in nitride semiconductors: Possibility of intrinsic ferro- magnetism*, JST-DFG Workshop on Nano- electronics, (January 21-23, 2009, Kyoto).
  6. Study of Bioensing with Terahertz techniques and Electronic Devices using Zinc Oxide(Invited), M. Noguchi, H. Tabata, UK-Japan Bionanotechnology Workshop, Kobe, Japan, Sep.17-18, 2008
  7. Masaru Tateno: Reaction mechanism of editing by class I aaRS revealed by QM/MM molecular dynamics simulations: International conference on aminoacyl-tRNA synthetases (aaRS's): From basic mechanisms to systems biology (aaRS2008), Annecy, France (2008).
  8. Raman Scattering on Multiferroic Materials, H.Harima, International Conference on Quantum Simulators and Design 2006 (Hiroshima, 2006)
  9. Fundamental aspects of effective work function instability of metal/Hf-based high-k gate stacks, H. Watanabe, S. Yoshida, Y. Kita, T. Hosoi, T. Shimura, K. Shiraishi, Y. Nara and K. Yamada, 214th ECS Meeting (Hawaii, 2008).
  10. Quantum spin Hall phases and topological surface states, S. Murakami, DPG conference (Dresden, Germany, 2009).
  11. I. Katayama, K. Mitarai and J. Takeda, "Precursor of Two-Photon Induced Phase Transition in Organic Radical TTTA Crystals", The 3rd International Conference on Photo-Induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (Osaka, Japan, November 11-15, 2008).
  12. Y. K. Zhou, M. Takahashi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi. Annealing effect in GaDyN on optical and magnetic properties, Fifth International Conference on Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductor (PASPS-V), Aug. 03-06, 2008, Foz do Iguasu, Parana, Brazil, CT-17
  13. Microscopic Theory of Current-Spin Interaction in Ferromagnets, H. Kohno, International workshop "Spin Caloritronics" (Lorentz Center, Leiden, Feb. 9-13, 2009).

〔図書〕 (計 4 件)

1. T. Oguchi and H. Akai (Edis.), Journal of Physics: Condensed Matter Special Issue: International Conference on Quantum Simulators and Design 2006, IOP Publishing, Sep. 2007
2. H. Akai and S. Tsuneyuki (Edis.), Journal of Physics: Condensed Matter Special Issue: International Conference on Quantum Simulators and Design 2008, IOP Publishing, Feb. 2009
3. 笠井秀明, 赤井久純, 吉田博編 "計算機マテリアルデザイン入門" 大阪大学出版会, 2005
4. 笠井秀明, 津田宗之 "固体高分子形燃料電池要素材料・水素貯蔵材料の知的設計" 大阪大学出版会, 2008

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 15 件)

1. Numerical Simulation Apparatus for Time Dependent Schrodinger Equation, Kikuji HIROSE and Hidekazu GOTO, PCT/JP2007/067473, March 12, 2009
2. 武田淳, 片山郁文, 『光学遅延素子および光パルス計測装置』、2008年11月28日 (特願2008-304631)
3. 「電界効果トランジスタ」、樋口克彦、福江直樹、樋口雅彦、特許第4214248、2008年11月14日
4. 赤井久純、小倉昌子、N. H. Long 「磁気抵抗効果膜及びこれをもつた磁気抵抗効果素子、並びに磁気デバイス」特願2008-073917, 2008年9月18日
5. 「電子状態計算法、電子状態計算装置、コンピュータプログラム、記録媒体」、草部浩一、特願2008-223813、2008年9月1日
6. 赤井久純、小倉昌子、N. H. Long 「ハーフメタリック反強磁性体の調整方法」特願2008-073917, 2008年3月21日
7. 「電流磁気効果を利用した超高速スイッチング素子」、樋口克彦、樋口雅彦、特願2006-212395、2007年8月2日
8. "Current amplifying element and current amplification method", K. Higuchi and M. Higuchi, PCT/JP2007/065141, 2007.8.2
9. "Electronic state calculation method, electronic state calculation device, computer program, and recording medium", Koichi Kusakabe, PCT/JP2007/054057, 2007.3.2
10. 時間依存シュレディンガー方程式の数値

シミュレーション装置、広瀬喜久治、後藤英和、特願2006-247367、2006年9月12日

11. 赤井久純、小倉昌子、他「反強磁性ハーフメタリック半導体」特願2006-219951、2006年8月11日
12. 「スピン分極された白金を用いて反応を促進させる方法およびその利用」笠井秀明、中西寛、津田宗幸、特願2006-176888号、2006年6月27日
13. 「電子状態計算法、電子状態計算装置、コンピュータプログラム、及び記録媒体」、草部浩一、特願2006-148978、2006年5月29日
14. 「磁性を有するアルカリ土類金属窒化物とその製造方法」、下司雅章、草部浩一、長柄一誠、鈴木直、特願2006-115018、2006年4月18日
15. 赤井久純、小倉昌子「反強磁性ハーフメタリック半導体およびその製造方法」出願番号 PCT/JP2005/017100、2005年9月9日

[その他]

ホームページ

<http://ann.phys.sci.osaka-u.ac.jp/tokutei/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

赤井久純 (AKAI HISAZUMI)

大阪大学・理学研究科・教授

研究者番号：70124873

### (2) 研究分担者

常行真司 (TUNEYUKI SHINJI)

東京大学・理学系研究科・教授

研究者番号：90197749

森川良忠 (MORIKAWA YOSHITADA)

大阪大学・産業科学研究所・准教授

研究者番号：80358194

笠井秀明 (KASAI HIDEAKI)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：00177354