

令和 3 年 5 月 27 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01939

研究課題名(和文) 孤立系および結晶の統一的電子励起状態・ダイナミクス精密第一原理計算手法の開発

研究課題名(英文) Development of a unified and accurate first-principles method to calculate electronic excited states and dynamics for isolated and crystal systems

研究代表者

大野 かおる (Ohno, Kaoru)

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：40185343

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究で開発している全電子混合基底法プログラムTOMBOのGW近似を用いて、結晶のXPSスペクトルを計算し、2017年に研究代表者が提案した拡張準粒子理論に基づき、XPS過程直後に生ずる内殻正孔に価電子が落ちることによるX線発光スペクトルの高精度計算を行った。また、拡張準粒子理論に基づいて、1価陽イオンのGW計算や自己無撞着GW計算を行い、Bethe-Salpeter方程式を解かずに光吸収エネルギーを計算することに世界で初めて成功した。さらに、TOMBOに超微細相互作用、スピン軌道相互作用をインプリメントし、反復対角化法としてBlock Davidson法を導入して高速化することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

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。これらの欠点を補う汎用性の高い計算手法として、1電子軌道を数値原子軌道関数と平面波の線形結合で表す『全電子混合基底法』(プログラム名TOMBO)を開発した。これ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¹の完全固有状態として記述できる他に類を見ない純国産の第一原理計算手法であり、世界初の電子励起状態を出発点としたGW近似やBethe-Salpeter方程式などの計算が可能となった。コードは高度にハイブリッド並列化されており、どの計算機でも実行可能である。

研究成果の概要(英文)：Using the GW approximation of the all-electron mixed basis program TOMBO, which we have developed in this research, we calculated XPS spectra of crystals. We also performed an accurate calculation of the X-ray emission spectra, when a valence electron falls into the inner shell hole created just after the XPS process, on the basis of extended quasiparticle theory, which the principal researcher proposed in 2017. Also, on the basis of extended quasiparticle theory, we succeeded in calculating photoabsorption energies by using only GW and self-consistent GW methods for cations without solving the Bethe-Salpeter equation. Moreover, we implemented the hyperfine interaction and the spin-orbit interaction in TOMBO, and succeeded in speed up of TOMBO by introducing the block Davidson method as an iterative diagonalizing method.

研究分野：物性理論

キーワード：第一原理計算 プログラム 全電子混合基底法 GW近似 Bethe-Salpeter方程式 XPS 光吸収エネルギー
準粒子理論

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

多参照 single&double 配置間相互作用 (MRDCI) 法などの量子化学の第一原理計算手法は基底状態のみならず、(通常の光吸収に相当する) 1 電子励起、2 電子励起や電子数が 1 異なる固有状態差の光電子スペクトルなどの高精度全電子計算が可能である。しかし、これらの方法は分子量 N に対して $O(N^6)$ 以上の膨大な計算量が必要で、小さな分子への適用に限られ、結晶には適用できない。巨大分子や結晶に適用するにはどうしたらよいかという長年にわたる学術的な「問い」があった。我々は、数値原子軌道と平面波の両方を基底とする画期的な『全電子混合基底法』を考案し、多体摂動論 (Green 関数法) の GW 近似を用いて、分子と結晶に対し統一的に光電子スペクトルの全電子計算に成功した (プログラム名: TOMBO)。我々は、分子に対して、自己無撞着にパーテックス補正を入れる世界初の GWT 法と Bethe-Salpeter 方程式 (BSE) を TOMBO にインプリメントし、MRDCI 法と同精度で光電子・光吸収スペクトルを求めることに成功した。計算量は MRDCI 法よりは少ないが、基底関数と非占有状態の数を n, m として $O(n^2m^3)$ であり、やはり大きな分子には適用できない。また、これまでの第一原理計算はいずれも基底状態を出発点とし、基底状態と電子配置が 1 個または 2 個異なる固有状態の差のエネルギー・スペクトルしか求められず、任意の電子励起状態を計算するにはどうしたらよいかという長年にわたる学術的な「問い」があった。この様な状況の中、最近では電子励起状態を初期状態とする光電子分光実験も行われるようになってきており、これにタイアップする新しい第一原理計算手法の開発が急務の課題である。我々は拡張準粒子理論を構築することに成功し (K. Ohno, S. Ono, and T. Isobe, J. Chem. Phys. **146**, 084108;1-15 (2017))、この問題の解決方法を見つけた。

2. 研究の目的

本研究は、完全独自開発の第一原理計算プログラム『全電子混合基底法』TOMBO を用いて、自己無撞着にパーテックス補正を入れる世界初の $GWT+BSE$ 全電子計算を分子と結晶の両方に統一的に行い、MRDCI と同精度で光電子・光吸収スペクトルを計算量 $O(N^6)$ で求め、密度汎関数摂動理論 (DFPT) を用いて電子・格子ダイナミクスにも適用できるようにし、さらに部分的にでも $O(N)$ 計算が出来るようにプログラムの改良を試みる。さらに、我々が最近提案した拡張準粒子法に基づいて任意の電子励起状態とそのダイナミクス計算を可能とし、Hyperfine, XPS, NMR, Auger, 2 光子吸収スペクトル、スピン・軌道相互作用、電子・格子緩和時間、電子線照射シミュレーション等の精密計算ができるようにプログラムの改良・整備を行い、プログラムの普及を図ることを目的とする。具体的には上述の計算手法を揃えた FORTRAN90 + OpenMX + MPI ハイブリッド並列化したプログラムとして整える。また、それと並行して、開発したプログラムを用いて種々の新しい研究成果を出していく。

3. 研究の方法

本研究では一貫して我々が開発する第一原理計算プログラム TOMBO を用いる。北海道大学の全国共同利用のスーパーコンピュータなどを利用し、プログラムのインプリメントとデバッグ、応用計算を行う。主な作業は研究室および自宅からリモートで行った。本研究は本研究室出身のダッソーシステムズ (株) バイオピア部門の桑原理一氏 (アプリケーションサイエンティスト) 博士課程後期の大学院生の青木翼氏 (2017 年 10 月入学) と磯部智遥氏 (2018 年 4 月進学) 博士課程前期の大学院生の寺田裕之氏 (2018 年 M2) 中嶋武氏 (2018 年 M2、2019 年 4 月博士課程後期進学) 鱈部翔太氏 (2019 年 M1) らの協力の下で進め、次の各項目を実施した。

- (1) XPS の core electron binding energy (CEBE) の GW 自己エネルギーに electron-phonon 相互作用による格子緩和効果を取り入れた計算を可能とし、 MgO 結晶、 LiF 結晶などの幾つかの典型的なイオン結晶の CEBE に対して 1 eV 以下の計算精度を達成する。
- (2) 拡張準粒子理論に基づいて、XPS 過程直後に生ずる内殻正孔に価電子が落ちることによる X 線発光スペクトルの高精度計算を行う。
- (3) 反復対角化法として Block Davidson 法を導入して TOMBO をできる範囲で高速化、 $O(N)$ 化し、なるべく大きな系の計算に挑む。
- (4) 拡張準粒子理論に基づいて、1 価陽イオンの GW 近似や自己無撞着 GWT 計算を行い、Bethe-Salpeter 方程式を解かずに光吸収エネルギーを世界で初めて計算する。
- (5) ダイヤモンド結晶 NV 中心の $GW+BSE$ 計算を行う。
- (6) TOMBO に Hyperfine, スピン軌道相互作用をインプリメントし、これらの精密計算を行う。
- (7) 構造最適化や電子・格子相互作用には Dynamical Matrix (Hessian) が必要になり、そのためには、Pulay 項の評価のために Kohn-Sham 固有値の原子位置座標に関する微分が必要である。この微分を評価するルーチンを TOMBO にインプリメントする。

4. 研究成果

(1) 平成 30 年度の研究成果

本研究で開発している全電子混合基底法プログラム TOMBO を用いて XPS スペクトルの one-shot GW 計算を行い、シリコン、ダイヤモンド、SiC、BN、AlP 結晶の内殻電子束縛エネルギーを求めた。(1) 一般化プラズモンモデルを使用した結果、(2) 数値積分を使った結果、(3) 数値積分とさらに自己遮蔽補正(SSC)を行った結果を実験値と比較し、SSC の計算結果は実験値と 1 eV 程度の差に収まっており、十分な計算精度が得られることを明らかにした(J. Phys.: Cond. Mat.)。

次に、やはり TOMBO の GW 法および自己無撞着 GW 法を 1 価正イオンに適用し、Bethe-Salpeter 方程式(BSE)を用いない GW ()法により原子・分子の光吸収エネルギーを求めた。(1) 通常の one-shot GW 近似と BSE を組み合わせた方法、(2) BSE を用いない one-shot GW 法、(3) MCHF 法/MRDCI 法、(4) BSE を用いない自己無撞着 LGWT 法(L は線形化、 Γ はパーテックスを表す)で求めた結果を実験値と比較したところ、BSE を用いない自己無撞着 LGW 法の精度は MCHF 法/MRDCI 法の精度と同程度かそれを上回り、0.1 eV の誤差で実験値を再現することが分かった(Phys. Rev. A, Rapid Comm.)。

さらに、立方調和関数を用いてスピン軌道相互作用(SOI)と超微細相互作用(HFI)を TOMBO にインプリメントすることに成功し、SOI は Annal. Phys. 誌に、HFI は J. Phys. B 誌に掲載された。この他、TOMBO に反復対角化法として Block Davidson 法を取り入れ、SCF ループの高速化を実現することができた。

TOMBO の普及活動としては、ベトナム Hanoi で 9 月 7 日に開かれた ACCMS - Thema Meeting で TOMBO Workshop を主催し、計算物質科学人材育成コンソーシアム(PCoMS)主催で 2 月 27 日にコルマ京橋ビルオフィス東京ルーム T3 で TOMBO Workshop を行った。

(2) 令和 1 年度の研究成果

本研究で開発している全電子混合基底法プログラム TOMBO に Hyperfine 相互作用の計算ルーチンとスピン軌道相互作用の計算ルーチンを新しくインプリメントした。このプログラムを用いて行なった、 $^{25}\text{Mg}^+$, $^{43}\text{Ca}^+$, $^{87}\text{Sr}^+$, ^{11}B , ^{13}C , ^{17}O , $^{67}\text{Zn}^{19}\text{F}$ に対する Hyperfine 相互作用の計算結果(Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics)も、Ne2p, Ar2p, Ar3p, Kr2p, Kr3p, Kr3d, Kr4p, 11Na, 12Mg, 13Al, 14Si, 15P, 16S, 17Cl, HBr, BrCN, HCl, HI, I2 および Si2p に対するスピン軌道相互作用の計算結果(Annalen der Physik)も、ともに実験を大変良く再現するもので、TOMBO によるこれら相互作用の計算手法の有効性を示すことができた。

一方、X 線光電子分光(XPS)直後に内殻に空いた正孔に価電子が落ちて X 線を放出する X 線放出分光(XES)スペクトルを求めるには、深い内殻電子空孔を持つ高い励起状態を始状態とする光放出スペクトル計算を行う必要があり、基底状態にのみ適用可能な密度汎関数理論(DFT)を用いた SCF 法を適用することはできない。そこで、 CH_4 , NH_3 , H_2O , CH_3OH に対して、励起状態に適用可能な拡張準粒子理論(K. Ohno, S. Ono, and T. Isobe, J. Chem. Phys. 146, 084108 (2017))を適用し、TOMBO を用いて GW + Bethe-Salpeter 方程式の方法で XES スペクトルの計算を行い、実験との良い一致を得ることに成功した(Physical Review B)。

申請者は TOMBO に divide conquer 法を導入して $O(N)$ 化するという挑戦的な目標を掲げ、ガウス基底を平面波の重ね合わせで表すことには成功した。逆に、平面波をガウス基底のような局在した基底の線型結合で表すことは難しいことが分かったが、TOMBO に block Davidson 法を導入することによって $O(N)$ 化することが出来た。ダイヤモンド結晶 NV 中心の GW+BSE 計算を行った(7月に香港で開かれた ACCMS10 で招待講演)。

TOMBO の普及活動としては、香港で開かれた ACCMS10 で TOMBO Tutorial を 7 月に開催した他、計算物質科学人材育成コンソーシアム(PCoMS)の支援を受けて東北大学金属材料研究所で TOMBO Seminar を 12 月 10 日に開催するなど、国際的普及活動を行った。

(3) 令和 2 年度の研究成果

本研究で開発・改良を進めている TOMBO を用いて、 C_{60} への Mo 原子と Au 原子の打ち込み内包の第一原理分子動力学シミュレーションを実行するためのプログラムの整備を行い、 C_{60} の六員環中央に垂直に Mo 原子と Au 原子をそれぞれ 40 eV と 80 eV の運動エネルギーで衝突させるシミュレーションを行った。これらの原子は六員環を通過して内包され $\text{M}@\text{C}_{60}$ が形成される(M=Mo, Au)。これより、Mo 原子、Au 原子のような重い原子が衝突によって内包された後も C_{60} は $\text{M}@\text{C}_{60}$ として壊れることなく安定に存在し続けることが確認できた。この計算結果は RSC Adv. 誌に掲載予定である(現在、著者校正中)。

一方、多体摂動論の Green 関数法では、グリーン関数に対する電子間クーロン相互作用の効果が全て自己エネルギーに取り込まれるが、自己エネルギー関数がエネルギーに依存するため、Green 関数を対角的に表示する基底関数である準粒子波動関数は正規直交性を満たさず線形独立でもない。このことが自己無撞着 GW 近似等で問題になる。特に自己無撞着 GW 近似はワンショット GW 近似に比べてエネルギーギャップを過大評価することが知られている。ワンショット GW 近似における自己エネルギーのエネルギー依存性の繰り込みの効果もこれまであまり議論されてこなかった。そこで、我々は TOMBO を用いて、複数の原子・分子に対して、ワンショット GW 近似における自己エネルギーのエネルギー依存性の繰り込みの効果や自己無撞着 GW 近似における自己エネルギーのエネルギー依存性の線形化(LGW 法)の効果などを議論し、これらの効果がいずれもエネルギーギャップを縮める傾向にあることを明らかにした。また、Bethe-Salpeter 方程式を解かずに、1 価陽イオンの GW 計算を行う我々独自の方法を用いて光吸収エネルギーへの効果も調べた。これらの計算結果については論文投稿予定である。あいにく新型コロナ感染拡大のために、大変残念ながら、国内外での TOMBO の普及活動を行うことはできなかった。

(4) まとめ

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。これらの欠点を補う汎用性の高い計算手法として、1 電子軌道を数値原子軌道関数と平面波の線形結合で表す『全電子混合基底法』(プログラム名 TOMBO)を開発した。これ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純国産の第一原理計算手法であり、本研究において、世界初の電子励起状態を出発点とした GW 近似や Bethe-Salpeter 方程式などの計算が可能となった。コードは高度にハイブリッド並列化されており、どの計算機でも実行可能である。以上のように、本科学研究費基盤研究 B の研究課題は、研究期間内にほぼ予定通りに TOMBO のプログラムを整備することが出来、多くの研究成果を挙げる事が出来た。これは大変多くの方々の協力があってはじめて実現できたことである。一人一人のお名前は挙げませんが、この場をかりて、関係して頂いた方々に深く御礼申し上げます。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 19件 / うち国際共著 9件 / うちオープンアクセス 8件）

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Tsutomu Ohtsuki, Aaditya Manjanath, Kaoru Ohno, Makoto Inagaki, Shun Sekimoto, and Yoshiyuki Kawazoe | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 Creation of Mo/Tc@C60 and Au@C60 and molecular-dynamics simulations | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 RSC Adv. | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Sugimura Natsuko, Ohno Kaoru | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 A Monte Carlo simulation of water+oil+ABA triblock copolymer ternary system II. Rheology under shear flow field by Monte Carlo Brownian Dynamics method | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Chemical Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 138382 ~ 138382 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2021.138382 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Sugimura Natsuko, Ohno Kaoru | 4. 巻 11 |
| 2. 論文標題 A Monte Carlo simulation of water + oil + ABA block copolymer ternary system. I. Patterns in thermal equilibrium | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 AIP Advances | 6. 最初と最後の頁 055312 ~ 055312 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0034063 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Khaledialidusti Rasoul, Khazaei Mohammad, Khazaei Somayeh, Ohno Kaoru | 4. 巻 13 |
| 2. 論文標題 High-throughput computational discovery of ternary-layered MAX phases and prediction of their exfoliation for formation of 2D MXenes | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Nanoscale | 6. 最初と最後の頁 7294 ~ 7307 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0NR08791B | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|---------------------------------|
| 1. 著者名 Bae Soungmin, Espinosa Garc?a William, Kang Yoon Gu, Egawa Noriyuki, Lee Juho, Kuwahata Kazuaki, Khazaei Mohammad, Ohno Kaoru, Kim Yong Hoon, Han Myung Joon, Hosono Hideo, Dalpian Gustavo M., Raebiger Hannes | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 MXene Phase with C3 Structure Unit: A Family of 2D Electrides | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Advanced Functional Materials | 6. 最初と最後の頁 2100009 ~ 2100009 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.202100009 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Ohno Kaoru, Tsuchiya Monami, Kuwahara Riichi, Sahara Ryoji, Bhattacharyya Swastibrata, Pham Thi Nu | 4. 巻 191 |
| 2. 論文標題 Study on Ni-Ti alloys around equiatomic composition by the first-principles phase field method | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Computational Materials Science | 6. 最初と最後の頁 110284 ~ 110284 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.110284 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Chew Khian-Hooi, Kuwahara Riichi, Ohno Kaoru | 4. 巻 2 |
| 2. 論文標題 Photo-energy conversion efficiency of CH ₃ NH ₃ PbI ₃ /C60 heterojunction perovskite solar cells from first-principles | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Materials Advances | 6. 最初と最後の頁 1665 ~ 1675 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0MA00853B | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Bae S., Kang Y.-G., Khazaei M., Ohno K., Kim Y.-H., Han M.J., Chang K.J., Raebiger H. | 4. 巻 9 |
| 2. 論文標題 Electronic and magnetic properties of carbide MXenes?the role of electron correlations | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Materials Today Advances | 6. 最初と最後の頁 100118 ~ 100118 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtadv.2020.100118 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Onoe Jun, Nakaya Masato, Watanabe Shinta, Nakayama Tomonobu, Ohno Kaoru, Noda Yusuke | 4. 巻 10 |
| 2. 論文標題 Electron-beam irradiation of photopolymerized C60 film studied using in situ scanning tunneling microscope, in situ Fourier-transform infrared spectroscopy, and first-principles calculations | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 AIP Advances | 6. 最初と最後の頁 085212 ~ 085212 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0018985 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Zhou Jiaqi, Khazaei Mohammad, Ranjbar Ahmad, Wang Vei, K?hne Thomas D., Ohno Kaoru, Kawazoe Yoshiyuki, Liang Yunye | 4. 巻 8 |
| 2. 論文標題 Modulation of nearly free electron states in hydroxyl-functionalized MXenes: a first-principles study | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry C | 6. 最初と最後の頁 5211 ~ 5221 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9tc06837f | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Nakashima Takeru, Ohno Kaoru | 4. 巻 531 |
| 2. 論文標題 Spin Orbit Coupling in All Electron Mixed Basis Approach | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Annalen der Physik | 6. 最初と最後の頁 1900060;1-9 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9tc06837f | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|-----------------------------|
| 1. 著者名 Sakamoto Yuki, Noda Yusuke, Ohno Kaoru, Koike Kayo, Fujii Katsushi, Suzuki Tomiko M., Morikawa Takeshi, Nakamura Shinichiro | 4. 巻 21 |
| 2. 論文標題 First principles calculations of surface dependent electronic structures: a study on -Fe00H and -Fe00H | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics | 6. 最初と最後の頁 18486 ~ 18494 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/andp.201900060 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名 Terada Hiroyuki, Kanno Shota, Ohno Kaoru | 4. 巻 52 |
| 2. 論文標題 Implementation of hyperfine coupling in all-electron mixed basis approach | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics | 6. 最初と最後の頁 165001;1-9 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cp00157c | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Bhattacharyya Swastibrata, Sahara Ryoji, Ohno Kaoru | 4. 巻 10 |
| 2. 論文標題 A first-principles phase field method for quantitatively predicting multi-composition phase separation without thermodynamic empirical parameter | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Nature Communications | 6. 最初と最後の頁 3451;1-10 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ab2ab3 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名 Aoki Tsubasa, Ohno Kaoru | 4. 巻 100 |
| 2. 論文標題 Ab initio simulations of x-ray emission spectroscopy with the GW+Bethe-Salpeter equation method | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 075149;1-8 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-11248-z | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Arao Yoshihiko, Kuwahara Riichi, Ohno Kaoru, Tanks Jonathon, Aida Kojiro, Kubouchi Masatoshi, Takeda Shin-ichi | 4. 巻 1 |
| 2. 論文標題 Mass production of low-boiling point solvent- and water-soluble graphene by simple salt-assisted ball milling | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Nanoscale Advances | 6. 最初と最後の頁 4955 ~ 4964 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.075149 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名 Pham Thi Nu, Ohno Kaoru, Sahara Ryoji, Kuwahara Riichi, Bhattacharyya Swastibrata | 4. 巻 32 |
| 2. 論文標題 Clear evidence for element partitioning effects in a Ti-6Al-4V alloy by the first-principles phase field method | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter | 6. 最初と最後の頁 264001;1-9 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9na00463g | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Aoki Tsubasa, Ohno Kaoru | 4. 巻 30 |
| 2. 論文標題 Accurate quasiparticle calculation of x-ray photoelectron spectra of solids | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter | 6. 最初と最後の頁 21LT01 ~ 21LT01 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/aabdfc | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名 Isobe Tomoharu, Kuwahara Riichi, Ohno Kaoru | 4. 巻 97 |
| 2. 論文標題 GW() method without the Bethe-Salpeter equation for photoabsorption energies of spin-polarized systems | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review A | 6. 最初と最後の頁 060502(R);1-6 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.97.060502 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計36件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 15件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Tolerance behavior of the first-principles phase field method |
| 3. 学会等名 IUMRS-ICA 2020 (Thailand, on-line, Feb. 24, 2021) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Prediction of microstructures of alloys by the first-principles phase field method without thermodynamic empirical parameter |
| 3. 学会等名 Vebleo Scientific Program (on-line, January 23, 2021) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Thi Nu Pham, Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Application of the first-principles phase field method to the study on the effect of Pt concentration on the microstructure of Ti1-xPt _x alloys |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 鱈部翔太, 大野かおる |
| 2. 発表標題 フォノンスペクトルの第一原理計算に向けた全電子混合基底を用いたDynamical matrixの解析的表式 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 中嶋武, 大野かおる |
| 2. 発表標題 Feynman-Dyson振幅による重なり行列の数学的構造 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 桑畑和明, 大野かおる, 立川仁典 |
| 2. 発表標題 経路積分分子動力学法を用いたN03-(H2O)の構造に対する量子効果 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 大野かおる |
| 2. 発表標題 GW計算の系統的高精度化の研究調査 - G0W0からscLGW まで |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 青木翼, 大野かおる |
| 2. 発表標題 拡張準粒子GW+BSE法によるX線発光スペクトルの第一原理計算 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第18回大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 大野かおる, 小野頌太, 磯部智遥 |
| 2. 発表標題 任意の電子励起固有状態計算のための拡張準粒子理論 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第17回大会(鹿児島) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|----------------------------------|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 大野かおる |
| 2. 発表標題 準粒子方程式のエネルギー依存性に関する研究 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第17回大会(鹿児島) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 中嶋武, 大野かおる |
| 2. 発表標題 全電子混合基底法によるスピン軌道相互作用の評価 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第17回大会(鹿児島) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Thi Nu Pham, Ryoji Sahara, Riichi Kuwahara, and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Application of First-Principles Potential Renormalization Theory to a Phase Transition between bcc and fcc Fe crystals |
| 3. 学会等名 ナノ学会第17回大会(鹿児島) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--------------------------------|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 大野かおる |
| 2. 発表標題 多体摂動論に基づいたGW近似の高精度化 |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会(岐阜) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 中嶋武, 大野かおる |
| 2. 発表標題 全電子混合基底法によるスピン軌道相互作用の評価 |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会(岐阜) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 鱈部翔太, 大野かおる |
| 2. 発表標題 全電子混合基底法を用いた原子間力及び分子振動計算 |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会(岐阜) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|----------------------------|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 大野かおる |
| 2. 発表標題 GW近似の系統的高精度化の研究 |
| 3. 学会等名 日本物理学会年次大会(名古屋) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 大野かおる、Swastibrata Bhattacharyya、佐原亮二、Thi Nu Pham、桑原理一 |
| 2. 発表標題 第一原理フェーズフィールド法による合金組織の予測技術 |
| 3. 学会等名 日本金属学会(東工大) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Thi Nu Pham, Kaoru Ohno, Riichi Kuwahara, Ryoji Sahara, and Swastibrata Bhattacharyya |
| 2. 発表標題 Study of alloying element effects on the microstructure in Ti alloys using first-principles phase field method |
| 3. 学会等名 日本金属学会 (東工大) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Thi Nu Pham and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Time dependent GW molecular dynamics simulation |
| 3. 学会等名 Vietnam - Japan Science and Technology Symposium (VJST2019) (Hanoi) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 TOMBO Tutorial: Lecture II |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno and Tsubasa Aoki |
| 2. 発表標題 Feasibility of the Point Only GW Calculation for Periodic Systems Using TOMBO |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Khian-Hooi Chew, Riichi Kuawahara, and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Electronic Structures and Energy Conversion Efficiency of Heterojunction C60/CH3NH3PbI3 Perovskite Solar Cells |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Tomoharu Isobe, and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Effect of linear extrapolation of self-energy in GW approximation |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Mohammad Khazaei, Nguyen Tuan Hung, Keivan Esfarjani, and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Electromechanical (actuator) properties of MXenes |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Takeru Nakashima and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Spin-orbit coupling in all-electron mixed basis approach |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Wanibe Shota and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Ab-initio calculation of interatomic forces and molecular vibrations in all-electrons mixed basis approach |
| 3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (Hong Kong) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Tomoharu Isobe, Riichi Kuwahara, and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 GW() calculation for photoabsorption energies of spin polarized systems |
| 3. 学会等名 10th Triennial Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ノルウェー、トロムソ) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 川添良幸、水関博志、大野かおる、佐原亮二、本郷研太、南里豪志 |
| 2. 発表標題 マテリアルズ・インフォマティクスを材料設計開発ツールとするための高信頼性データベース構築 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第16回大会(東大) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 桑原理一, 大野かおる |
| 2. 発表標題 GW without BSE 法による光吸収スペクトルの計算:GW 法の適用 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第16回大会(東大) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 桑畑和明, 大野かおる |
| 2. 発表標題 分子と水クラスター間の吸着エネルギーのクラスターサイズ依存性 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第16回大会(東大) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 磯部智遥, 大野かおる |
| 2. 発表標題 準粒子方程式における自己エネルギーのエネルギー依存性の効果 |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会(同志社大) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno and Ryoji Sahara |
| 2. 発表標題 TOMBO Tutorial: Lecture II |
| 3. 学会等名 Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS) - Thema Meeting on Multiscale Modeling of Materials for Sustainable Development (Hanoi, Vietnam) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohno, Swastibrata Bhattacharyya, and Ryoji Sahara |
| 2. 発表標題 Development of First-Principles Phase Field Model |
| 3. 学会等名 Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS) - Thema Meeting on Multiscale Modeling of Materials for Sustainable Development (Hanoi, Vietnam) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Hiroyuki Terada and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 First-principles calculations of hyperfine structures of some atoms and radicals |
| 3. 学会等名 Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS) - Thema Meeting on Multiscale Modeling of Materials for Sustainable Development (Hanoi, Vietnam) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshihito Maeda and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 Excited state force calculation in TOMBO code |
| 3. 学会等名 Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS) - Thema Meeting on Multiscale Modeling of Materials for Sustainable Development (Hanoi, Vietnam) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Takeru Nakashima and Kaoru Ohno |
| 2. 発表標題 LDA/ oneshot-GW + spin-orbit coupling calculation for Si2p level |
| 3. 学会等名 Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS) - Thema Meeting on Multiscale Modeling of Materials for Sustainable Development (Hanoi, Vietnam) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

〔図書〕 計3件

| | |
|------------------------------------|-----------------|
| 1. 著者名 大野かおる、中村 振一郎、水関 博志、佐原 亮二 | 4. 発行年 2019年 |
| 2. 出版社 近代科学社 | 5. 総ページ数 272 |
| 3. 書名 計算ナノ科学 | |

| | |
|---|-----------------|
| 1. 著者名 理化学研究所 中村特別研究室、中村振一郎、牧野内昭武、安達泰治、杉本学 | 4. 発行年 2020年 |
| 2. 出版社 近代科学社 | 5. 総ページ数 336 |
| 3. 書名 23の先端事例がつなぐ計算科学のフロンティア (第7章、大野かおる、「第一原理フェーズフィールド法で材料組織を予測する」、pp.83-93) | |

| | |
|--|-----------------|
| 1. 著者名 Kaoru Ohno, Keivan Esfarjani, and Yoshiyuki Kawazoe | 4. 発行年 2018年 |
| 2. 出版社 Springer-Verlag | 5. 総ページ数 427 |
| 3. 書名 Computational Materials Science: From Ab Initio to Monte Carlo Methods, 2nd Edition | |

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|--------------------------------|---------------------------------------|----|
| 研究協力者 | 桑原 理一 (Kawahara Riichi) | ダッソーシステムズ(株)・パイオピア部門・アプリケーションサイエンティスト | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | |
|---------|--------------|--|--|
| マレーシア | マラヤ大学理学部物理学科 | | |