平成 30 年度　文部科学省
ポスト「京」で重点的に取り組むべき社会的・科学的課題に関する
アプリケーション開発・研究開発（萌芽的課題）

平成３０年度
「基礎科学のフロンティア － 極限への挑戦（複合相関が織りなす極限マテリアル－原子スケールからのアプローチ）」
成果報告書

令和元年 5 月 31 日

国立大学法人東京工業大学
松下　雄一郎

本報告書は、文部科学省の科学技術試験研究委託事業による
委託業務として、国立大学法人東京工業大学が実施した
平成３０年度「基礎科学のフロンティア － 極限への挑戦（複合相関
が織りなす極限マテリアル－原子スケールからのアプローチ)」
の成果を取りまとめたものです。

目次

１．委託業務の題目 1
２．実施機関（代表機関） 1
３．委託業務の目的 1
４．平成 30 年度（報告年度）の実施内容 2
　４－１．実施計画 2
　４－２．実施内容（成果） 4
　４－３．活動（研究会等） 17
　４－４．実施体制 17

別添１　学会等発表実績
別添２　実施計画

１．委託業務の題目

「基礎科学のフロンティア ― 極限への挑戦
（複合相関が織りなす極限マテリアル－原子スケールからのアプローチ）」

２．実施機関（代表機関）

<table>
<tr><td rowspan="9">代表機関</td><td colspan="2">機関名</td><td colspan="4">国立大学法人東京工業大学</td></tr>
<tr><td colspan="2">所在地</td><td colspan="4">〒152-8550　東京都目黒区大岡山二丁目１２番１号</td></tr>
<tr><td rowspan="3">課題責任者</td><td>ふりがな
氏　　名</td><td>まつした　ゆういちろう
松下　雄一郎</td><td>生年月日</td><td colspan="2">西暦　1982 年 11 月 12 日（36 歳）
※2019 年 4 月 1 日現在</td></tr>
<tr><td>所属部署名</td><td colspan="2">物質・情報卓越教育院</td><td>役職</td><td>特任准教授</td></tr>
<tr><td>連絡先</td><td colspan="4">Tel.　03-5734-3306　　Fax.
E-mail　ymatsu@msl.titech.ac.jp</td></tr>
<tr><td rowspan="3">事務連絡担当者</td><td>ふりがな
氏　　名</td><td>おくや　なおひと
億谷　尚仁</td><td colspan="3"></td></tr>
<tr><td>所属部署名</td><td colspan="2">研究推進部研究資金支援課受託研究契約グループ</td><td>役職</td><td>スタッフ</td></tr>
<tr><td>連絡先</td><td colspan="4">Tel.　03-5734-3727　　Fax.　03-5734-2969
E-mail　kenshi.jutaku@jim.titech.ac.jp</td></tr>
</table>

３．委託業務の目的

強い電子相関、高圧化、強光子場といった、極限マテリアルにおいて発露する電子の性質を精緻に記述する原子論的シミュレーション法を開発し、ポスト「京」で遂行する同手法の計算結果から、極限マテリアルの性質・挙動を世界に先駆けて明らかにすることを目的とする。

このため、国立大学法人東京工業大学を中核機関、国立大学法人東京大学を分担機関として、研究開発を実施する。

４．平成 30 年度（報告年度）の実施内容

４－１．実施計画

平成３０年度は、研究本格実施フェーズとして、以下に示す本萌芽的課題に関するアプリケーション開発・研究開発について、開発計画（研究開発内容、目標・期待される成果、実施体制、必要計算資源、工程表、所要経費等）の詳細の策定を国立大学法人東京工業大学で開始する。また、策定した開発計画・実証研究を本格的に実施するフェーズに移る。

①（サブ課題A）複合相関マテリアルのための電子状態計算基盤－DFTを超えて超高精度へ

a）波動関数理論プログラムコード（WaveX, kappa）の並列化

平成28,29年度に開発した波動関数理論プログラムコード(結合クラスター理論(CCSD)のプログラムコード(WaveX)と、自己エネルギー汎関数理論(SEFT)のプログラムコード(kappa))に並列化を実装し、スパコン（「京」・ポスト「京」）上で最適化を実施する。特に効率的なメモリ分散のさせ方についてサブ課題Cと議論をしながら進めていく。

b）波動関数理論（CCSD, SFT）の適用

a)で並列化を進めながら同時平行に、WaveX, kappaを具体的な物質へと適用し、従来のDFTでは記述することが難しいvan der Waals系・強相関分子系に対する計算を行う。同時に、それぞれの適用結果を即座に論文とし、世界に向けて発信を行っていく。これにより、世界を先導する成果を創出してゆく。得られた結果は実験と比較を行い、その精度を明らかにする。また、サブ課題Bとの共同研究（高精度原子間ポテンシャルの作成）を進める。

c）波動関数理論+非占有軌道に対するくりこみ群法の開発

波動関数理論の実際の計算において、非占有軌道の数に対する収束性の悪さは重大な問題である。非占有軌道に対する収束性を改善すべく、くりこみ群の手法を導入した新たな手法の開発を行う。また、その手法をモデル系へと適用し、有効性を検証する。

②（サブ課題B）極限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション--室温超伝導に向けて

＜再委託機関：国立大学法人東京大学＞

a）アプリの分子・固体における適用精度-実用性バランス(反応確率の計算精度と計算コスト・並列化効率)の追求

平成29年度までに定式化・開発したレアイベント生成および発生確率計算アルゴリズムおよび、実装したアプリ「AtomREM」のプロトタイプについて、扱う系のサイズが大きくなった場合にも高い精度とパフォーマンスを保つよう、「京」および「ポスト京」上でのモデル分子・固体の計算を通してチューニングを行う

b）アプリの適用による構造変化の研究

上記a)と並行して、アプリ「AtomREM」を具体的相変態現象に適用し、反応パスおよびその実現確率の定量的研究を行う。対象としては鉄・炭素・ケイ素などの固体単体や炭化水素分子を目下採り上げ、その後化合物固体への適用を進めていく。結果について論文投稿による成果発信を行う。また、サブ課題Aの進展により分子間力や電子相関を精度良く取り扱える原子間ポテンシャルの開発が進み次第、これを用いてさらなる精度向上を試みる。

c）加圧実験シミュレーションのための手法開発および現象理解

b)の進展を踏まえ、圧力セル内での固体相変態現象を記述するために必要な具体的要素技術として、レアイベントアルゴリズムの加圧状況への拡張を行う。また圧力セルの水素脆化など、加圧実験に普遍的な現象についてもシミュレーションによる記述を試みる。

③（サブ課題C）強光子場中マテリアルの原子論的シミュレーション：波動関数理論から臨む光と物質の相互作用＜再委託機関：国立大学法人東京大学＞

平成28,29年度の業務計画書で暫定的に用いていたmARTED-WF, ARTED-WFの名称をそれぞれmATTOMCSCF, ATTOMCSCFに改め、以下に記載する。

a) mATTOMCSCFを用いた高効率近似理論の開発
一次元模型を計算するmATTOMCSCFを用いて、三次元現実系への波動関数理論の適用を念頭に、少ない配置で精度を大きく損なわない配置生成理論の開発を行う。

b) ATTOMCSCFにおける配置に対する並列化スキームの開発
三次元現実系コードATTOMCSCFでは適用対象が固体であることを反映して、多量の配置を生成する必要がある。こうした配置を大規模並列環境で分散実行する並列化スキームの開発を進める。

c) ATTOMCSCFを用いた三次元系の計算
開発したATTOMCSCFを用いた典型的な三次元固体に対してその適用を行い、波動関数理論の有効性を他の理論計算と比較して検証する。

④プロジェクトの総合的推進

本年度中に、本プロジェクト主催の国内研究会を行い、成果を発表していく。プロジェクト全体の連携を密としつつ円滑に運営していくため、サブ課題間の研究打ち合わせの実施等、連携・調整にあたる。プロジェクト全体の進捗状況を確認しつつ、必要に応じて計画の合理化、業務間での情報共有、外部有識者を招聘して意見を聞くなど、プロジェクトの効率的推進に資する。
プロジェクトで得られた成果については、積極的に公表し、今後の展開に資する。

４－２．実施内容（成果）

［サブ課題 A 総括］

サブ課題 A の本年度における活動内容は、開発アプリの機能拡充と現実物質への適用である。具体的には、

a）波動関数理論プログラムコード（WaveX, kappa）の並列化
b）波動関数理論（CCSD, SFT）の適用
c）波動関数理論+非占有軌道に対するくりこみ群法の開発

を実施した。また、特に波動関数理論の現実物質への適用には、計算コストの観点から新しい補間法などの開発が必要であることがわかり、計算コスト削減に向けた計算手法（補間法）の開発とその有効性解明、並列化計算機に適した新しいアルゴリズム開発を実施した。これにより、波動関数理論の現実物質への適用がスパコン「京」・ポスト「京」上で実行可能になると目処をつけた。こうした成果を学会および論文誌において発表した[出版論文 5 件[A1-A5]、国外学会発表 9 件[A6-A14]（うち招待 1 件[A6]）、国内学会発表 5 件[A15-A19]]。サブ課題 A 成果「論文・発表リスト」欄を参照のこと。

［サブ課題 B 総括］

サブ課題 B の本年度における活動内容は開発アプリの実物質へのパイロット的応用と総括される。具体的には項 4-1 で述べた

a）アプリの分子・固体における適用精度-実用性バランス(反応確率の計算精度と計算コスト・並列化効率)の追求
b）アプリの適用による構造変化の研究
c）加圧実験シミュレーションのための手法開発および現象理解

を実施した。これを通して、振る舞いが比較的よく知られた系における開発アプリの有効性の検証および改良を進めた。本課題の最終目標は物質によらず普遍的に利用可能な反応経路シミュレーションアプリの開発および、それを用いた新規固体反応(特に超伝導相の生成)の探索である。上の業務実施を通して最終目標を達成する準備が整った。また上記活動の中で、これまでよく調べられていた系についても新たな反応経路をいくつか発見した。こうした結果を学会および論文誌において発表した[出版論文1件[B1]、論文1件投稿中[B2]、国内学会発表9件[B3-B11](うち招待1件[B7])、国外学会発表2件[B12-B13](うち招待1件[B12])]。サブ課題B成果「論文・発表リスト」欄を参照のこと。

［サブ課題 C 総括］

平成28,29年度の業務計画書で暫定的に用いていたmARTED-WF, ARTED-WFの名称をそれぞれmATTOMCSCF, ATTOMCSCFに改め、以下に記載する。
多体量子ダイナミクスを記述する上で、計算コストを減らすための理論面での開発と、大規模並列環境を念頭に置いた数値計算法面の、両面の開発に取り組んだ。計算コストを削減させるための理論として、時間依存最適化結合クラスター法を採用し、これを固体に適用するためにBloch軌道を用いた表現を導出した。並列環境を用いてより多くの配置を取り込む為に、配置空間における並列化手法を開発し、「京」上で配置空間の並列化に関する先行研究よりも良好な並列化効率が達成できていることを示した。
ATTOMCSCFに実装した時間依存Hartree-Fock(TD-HF)法、ハイブリッド汎関数を用いた時間依存密度汎関数法(TDDFT)、局所密度近似汎関数を用いたTDDFTでSi, GaAsの誘電関数を世界に先駆けて初めて評価し、実験と比較した。計算コストが同じTD-HFとハイブリッド汎関数を用いたTDDFTでは、後者の結果が実験結果を最もよく再現することが分かった。
本開発内容と計算により、強光子場中マテリアルの理解する上での技術的整備と科学的見地が深まった。光に誘起された電子・正孔間の相関を表現するための理論的基盤が整い、具体的な数値計算における実装の効率化が達成された。また、本課題で既に開発した理論的枠組みを実装したコードを用いて、既存

理論と実験結果との比較による開発内容の定量的評価が進んだ。
これらの結果、および本研究課題のこれまでの研究内容を、学会および論文誌において発表した[出版論文3件[C1-C3]、国内学会発表9件[C4-C12](うち招待4件[C4-C7])、国際学会発表4件[C13-C16](うち招待1件[C14])]。サブ課題C成果「論文・発表リスト」欄を参照のこと。

【実施内容、検討内容および、その成果】
サブ課題A

a) 波動関数理論プログラムコード（WaveX, kappa）の並列化

平成28,29年度に開発した波動関数理論プログラムコード(結合クラスター理論(CCSD)のプログラムコード(WaveX)と、自己エネルギー汎関数理論(SEFT)のプログラムコード(kappa))にMPI並列を実装し、スパコン（「京」・名古屋大学FX100）上で最適化を進めた。その結果、（10ノードの並列化程度で既に）計算時間の60%が通信時間である状況であること、軌道数10程度でスパコン「京」上でメモリがあふれてしまうことが分かった。そこで、通信時間の削減とメモリの分散を効率的に行う並列化の新アルゴリズムの開発を、サブ課題Cと萌芽的課題「基礎科学の挑戦」サブ課題Dと共同で行なった。その結果、メモリ量を7次元データ配列（軌道4次元+運動量3次元）から5次元データ配列（軌道4次元+運動量1次元）に抑え、また、3重ループの中で行っていた通信を1重ループの中の通信に抑えるアルゴリズムの開発に成功した。これにより、ポスト「京」上では、3次元周期物質で、かつ占有・非占有軌道数をそれぞれ30（現実的な物質において十分な軌道数と思われる）まで扱えることを試算した。

b) 波動関数理論（CCSD, SFT）の適用

a)で並列化を進めながら同時並行に、LiH鎖やポリアセチレンをターゲットとしてWaveX, kappaの適用を行った。また、従来のDFTでは記述することが難しいvan der Waals系としてグラファイト系、強相関分子系として孤立原子系や原子解離過程に対する計算を試みた。

また、現実物質への適用を行う際に、以下の研究項目c)で開発した擬ポテンシャル法や自己エネルギーに対する補間法を用いることにより、計算コストの削減し実現した。LiH鎖の結果をFig.1-1に、ポリアセチレンの計算結果をFig.1-2に示している。特筆することとして、LiH鎖において準粒子バンドがあるエネルギー以上でブロードになって

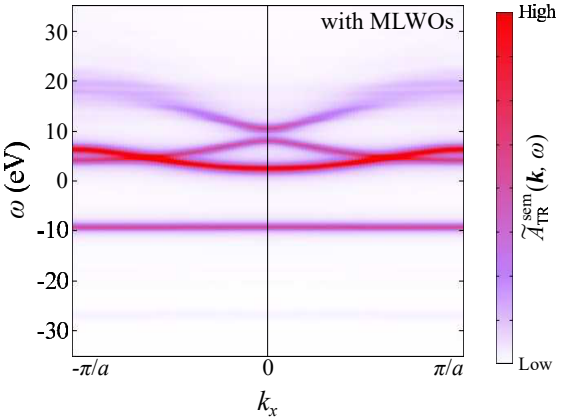


Fig 1-1. LiH 鎖における GFCCSD 法（自己エネルギー補間法を使用）を用いた準粒子スペクトルの等高線図。右のバーはカラーコードを表す。0 (eV) は真空準位を表す。特に 15 (eV) 以上において準粒子スペクトルが衝突電離の効果でブロードになっている。論文[A5]より引用。

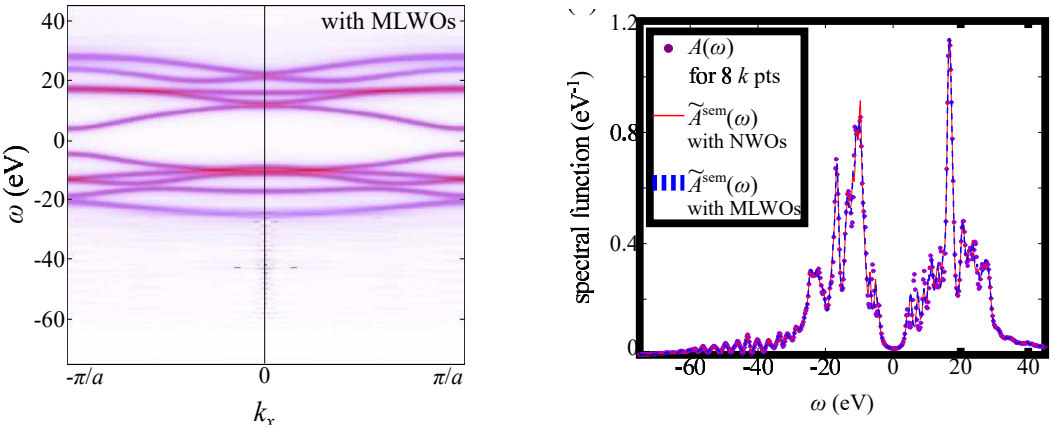


Fig 1-2 ポリアセチレンに対する GFCCSD 法（自己エネルギー補間法を使用）を用いた準粒子スペクトル計算（左図）と状態密度（右図）。-30 (eV)以下に小さなサテライトピークが観察される。論文[A5]より引用。

いることである。この物理的原因を解析したところ、衝突電離によって生じた効果であることが分かった。これは電子電子散乱に由来する効果であり、DFTでは本質的に記述することのできない効果である。また、ここから計算することのできるインパクトイオン化係数は絶縁破壊と密接に関係しており、半導体デバイスを作成する際の重要な因子になっている。本計算手法を用いることにより、インパクトイオン化係数の第一原理的決定が可能になることが示された。Fig.1-2のポリアセチレンの適用結果からは、そのバンド構造からLiH鎖ほど衝突電離の効果が大きくないことが分かる。また、-30 (eV)以下では、小さなサテライトピークが存在していることが分かった。サテライトピークの大きさは電子相関の大きさを測る１つの指標であり、今後、特に電子相関が強いものへと適用した際には、物理的に重要な指標になる。

これら結果は即座に論文[A1-A5]や国外学会での発表[A6-A14]（内、招待1件[A6]）、国内での発表[A15-A19]を通じて、世界に発信を行った。さらに、実験と比較を試みたが、実験データよりも大きなバンドギャップであることが分かった。これは、使用している基底関数に由来するものと考えられ、研究項目c)で開発した擬ポテンシャル法を併用することにより解決できるものと期待でき、今後の課題である。

また、サブ課題Bとの共同研究（高精度原子間ポテンシャルの作成）の準備（背景調査）を開始し、いくつか候補対象を絞り込んだ。今後、サブ課題Bとの共同研究を本格的に実施していく。

c） 波動関数理論+非占有軌道に対するくりこみ群法の開発

波動関数理論の実際の計算において、非占有軌道の数に対する収束性の悪さは重大な問題である。非占有軌道に対する収束性を改善すべく、くりこみ群の手法を導入した新たな手法の定式化とその実装を行った。また、その汎用性と簡便性を検討した結果、密度汎関数理論(DFT)計算の一電子軌道と擬ポテンシャル法とを組み合わせる手法を開発し、その実装を行なった。また、我々が（これまで適用報告を行ってきた）ノウハウを持つモデル系（1次元LiH鎖や1次元Be鎖）へと適用し、有効性を検討した。その結果、全エネルギーに対する非占有軌道の収束性に大きな改善は見られなかった（その理由は、全電子波動関数のカスプ条件に由来するものと思われる）一方、内殻電子をDFT計算の状態で固定することにより（フローズンコア近似）、バンドギャップなどの物理量を大きく変化させることなく計算コストを削減することができることを見出した。また、さらなる計算コストを削減すべく、自己エネルギーに対する補間法を新たに考案した。これらを併用することにより、非占有軌道に対する収束性の悪さをカバーし、波動関数理論の現実物質適用への目処を立てた。また、一部これらの手法はモデル系（1次元LiH鎖や1次元Be鎖、ポリアセチレン）へと適用し、有効性を検討した（上記、研究項目(b) 参照）。

論文・発表リスト

[A1] “Band structures in coupled-cluster singles-and-doubles Green's function (GFCCSD)”, Y. Furukawa, T. Kosugi, H. Nishi, and Y.-i. Matsushita, The Journal of Chemical Physics **148**, 204109 (2018).

[A2] “Comparison of Green's functions for transition metal atoms using self-energy functional theory and coupled-cluster singles and doubles (CCSD)”, T. Kosugi, H. Nishi, Y. Furukawa, and Y.-i. Matsushita, The Journal of Chemical Physics **148**, 224103 (2018).

[A3] “Quasiparticle energy spectra of isolated atoms from coupled-cluster singles and doubles (CCSD): Comparison with exact CI calculations” H. Nishi, T. Kosugi, Y. Furukawa, and Y.-i. Matsushita, The Journal of Chemical Physics **149**, 034106 (2018).

[A4] “One-particle Green's function of interacting two electrons using analytic solutions for a three-body problem: comparison with exact Kohn-Sham system”, T. Kosugi and Y.-i. Matsushita, Journal of Physics: Condensed Matter **30**, 435604 (2018).

[A5] “Wannier interpolation of one-particle Green's functions from coupled-cluster singles and doubles (CCSD)”, T. Kosugi and Y.-I Matsushita, The Journal of Chemical Physics **150**, 114104 (2019).

[A6] “Quasiparticle spectra based on wave function theory: Application of coupled-cluster theory and self-energy functional theory” Yu-ichiro Matsushita, Taich Kosugi, Asian-Workshop (ASIAN-21), 2018/10/29-31, Daejeon (Korea).

[A7] “Comparison of electronic properties of atoms with d orbitals using coupled-cluster singles and doubles (CCSD) and self-energy functional theory”, T. Kosugi, H. Nishi, Y. Furukawa, Y.-i. Matsushita APS March Meeting (2018).

[A8] “Comprehensive study of coupled-cluster singles and doubles Green function (GFCCSD) on periodic systems”, Y. Furukawa, T. Kosugi, H. Nishi, Y.-i. Matsushita APS March Meeting (2018).

[A9] “One-electron energy spectra of isolated atoms via coupled-cluster singles and doubles”, H. Nishi,T. Kosugi, Y. Furukawa, Y.-i. Matsushita APS March Meeting (2018).

[A10] “Predicting the densities of amorphous materials through first-principles calculations”, Y. Furukawa, Y.-i. Matsushita APS March Meeting (2018).

[A11] “Novel unfolding method for multi subsystems each with distinct periodicity: examples of twisted-bilayer graphene and MoS2/graphene”, Y.-i. Matsushita, H. Nishi, J-I. Iwata, T. Kosugi, A. Oshiyama, APS March Meeting (2018).

[A12] “Quantum Singwi-Tosi-Land-Sjoelander (STLS) approach for interacting inhomogeneous systems under electromagnetic fields”, T. Kosugi, Y.-i. Matsushita, APS March Meeting (2018).

[A13] “Can exact KS potential reproduce HOMO-LUMO gap?: analytically solvable two-electron system”, Taichi Kosugi, Yu-ichiro Matsushita, Asian workshop (ASIAN-21), Daejeon (Korea) (2018).

[A14] “One-particle Green's functions from coupled-cluster singles and doubles (CCSD) and self-energy functional theory (SFT)”, Taichi Kosugi, Yu-ichiro Matsushita, Asian workshop (ASIAN-21), Daejeon (Korea) (2018).

[A15] “CCSD 法に立脚した周期物質の準粒子バンド構造”、松下雄一郎，小杉太一，西紘史，古川頼誉、第２１回理論化学討論会、名古屋、2018 年

[A16] “CCSD 法による一電子スペクトルの計算：孤立原子への適用”、 松下雄一郎，小杉太一，西紘史，古川頼誉、　第２１回理論化学討論会、名古屋、2018 年

[A17] “結合クラスター法に基づくポリアセチレンの一粒子グリーン関数の計算”、 小杉太一，松下雄一郎、　日本物理学会（秋季）、京都、2018 年

[A18] “波動関数理論に基づいた準粒子スペクトル計算：結合クラスター理論からの１粒子グリーン関数構築”、 松下雄一郎，小杉太一、　日本 MRS 年次大会、福岡、2018 年

[A19] “相互作用する三電子系の解析解と二電子系のグリーン関数：厳密なコーン・シャム系との比較”、小杉太一，松下雄一郎、　日本物理学会（春季）、福岡、2019 年

サブ課題B

a) アプリの分子・固体における適用精度−実用性バランス（反応確率の計算精度と計算コスト・並列化効率）の追求

アプリ「AtomREM」は原子座標で張られる高次元空間上の確率分布関数の時間発展を取り扱う。これを表すために様々な原子座標をもつ"walker"を確率微分方程式に従い時間発展させる。低温環境で支配的になるレアイベントを生成するための確率微分方程式の一般形は昨年度定式化した[出版は本年度(文献B1)]。今年度はこれをより大きな系において適用可能にするためのアルゴリズムおよびコードのチューニングを行った。

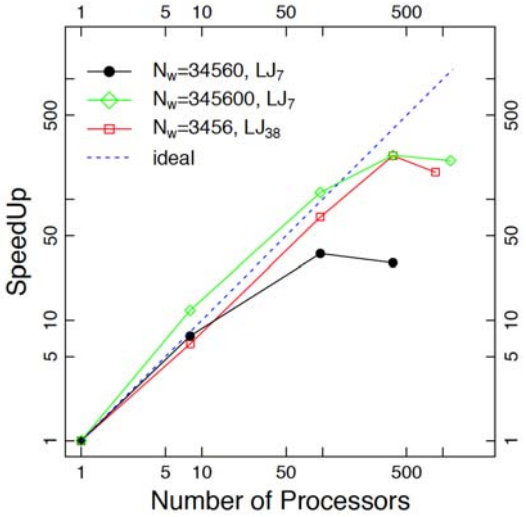


図 2-1 開発した並列アルゴリズムを用いた計算のスピードアップ性能(strong scaling)。Nw は全 walker 数。Nw/プロセッサ数が~10 のオーダー程度までは線形性が保たれる。投稿中論文[B2]より引用。

まず確率微分方程式の並列アルゴリズムの実装を行った。walkerは互いを参照しながら特定の確率で自身をコピー・消去する。このような性質を持つ時間発展を並列数固定で実行するために、最近提案されたBrewerらのアルゴリズム[Brewer, Clark, Bradford, and Jack, J. Stat. Mech. (2018) 053204]を応用したコードを実装、その並列パフォーマンスを調べた。「京」においてプロセッサ数を増やしたときの計算スピードアップ(いわゆるstrong scaling)をアルゴンクラスター系について調べた結果を図2-1に示す。これによるとプロセスあたりのwalker数が数十個となるまではstrong scalingが保証されることが分かる。この結果は今後のより一般的な物質への適用の際にも高い並列化効率の計算を実現するための基礎的データとして活用される。このデータを以下項目b)で述べる結果とともに論文としてまとめ、投稿した(文献B2として原稿公開済)

b) アプリの適用による構造変化の研究

a) で開発されたコードをアルゴンクラスターおよび固体、そして$(CH_2)_n$鎖に応用した。アルゴンは粒子間相互作用が単純であり、また安定構造についても先行研究の知見が多数参照可能である。また炭化水素系は化学結合の切断が起こる典型的な系である。以上の理由から開発コードのベンチマーク対象として今回採り上げた。アルゴン固体および C-H 固体系への適用結果については以下 c)で述べるコード開発を要したため、そちらに述べる。

アルゴンクラスター系の反応経路の研究は過去に多数ある。今回我々はまず、特に単純な 7 粒子系(Ar_7)における既知の反応経路が AtomREM で再現されるかを検証した。結果、既知のもののみならず、より反応確率の低い多様な反応経路が見出された。さらに、13 粒子系(Ar_{13})への適用においては、過去において指摘されたものよりもエネルギー障壁の低い経路を新たに見出した。これは対称性の高い 20 面体構造がねじれるというものである(図 2-2(上))。

以上はアプリ AtomREM の有効性を示すのみならず、新たな反応経路を発見したものである。これらの結果を上の項目 a)の内容とともに論文[B2]にまとめ、投稿した。

更に我々は、-(CH2)$_n$-鎖構造へのアプリ適用も行った。この系では C-C 鎖の切断によるラジカル形成やエチレン分離などの反応経路が理論的には指摘されている。これらは従来、とりうる原子の変位の探索空間をあらかじめ狭めて、そこでのポテンシャルエネルギー計算を行うことにより発見されたものである。我々は環状構造を既知として、そこから原子変位について一切の仮定を置かず、AtomREM に実装された非経験的反応経路探索アルゴリズムを実行した。これによりラジカル形成過程が実際にシミュレーションにより再現されることを示した(図 2-2(下))。

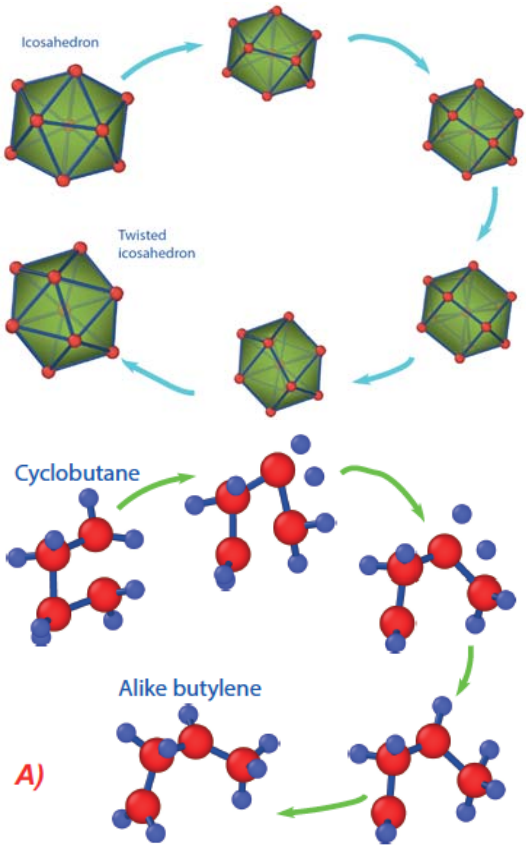


図 2-2 シミュレーションにより生成された構造変化のパスの例。(上) Ar_{13} におけるねじれ。投稿中論文[B2]より引用。(下)シクロブタンにおける C-C 結合切断。

サブ課題 A の成果を活用することによる計算精度向上のための準備としては、特定の構造と、それを用いて高精度手法により計算された系の全エネルギーのペアを多数集めて、それをサンプルデータとして現象論的原子間ポテンシャルを構成する手法の調査を進めた。サブ課題 A のこれまでの蓄積によって、固体などにおける高精度電子状態計算に実用の目処が立ちつつある。これを少ない計算コストで利用するために、比較的少数の計算結果から、それをよく再現する現象論的ポテンシャルを生成する機械学習手法の適用可能性を調べた。結果、汎用公開コード「DeePMD (https://github.com/deepmodeling/deepmd-kit)」が上記のタスクに応用できることが分かったため、これを AtomREM に利用するためのインターフェースの開発に着手した。コード開発を引き続き進め、来期中の実用化を目指す。

c) 加圧実験シミュレーションのための手法開発および現象理解

AtomREM のレアイベント生成アルゴリズムの加圧状況への拡張に着手した。基本的段階として、まず固体への適用を可能とするために、周期境界条件のもとでのアプリの実行を可能にした。これにより、任意の結晶格子定数を与えたもとでのシミュレーションが可能となった。これは一定圧力下でのシミュレーションを近似的に行うものである。一方、固体中の反応過程において系の応力が変化する効果を精確に取り入れるためには、格子定数そのものが応力に合わせて変化する仕様がより望ましい。この点の開発は引き続き行われる。固体への応用の例として、アルゴン固体における六方最密充填構造を反応物としてシミュレーションを行ったところ、面間をスライドする構造変化が実現した(図 2-3(上))。これは

既知の六方最密充填-面心立方構造転移の素過程である。このような過程が事前知識なしに生成されたことはAtomREMのアルゴリズムの有効性を表している。

また、加圧実験において普遍的な現象として、ダイヤモンドセル中における水素の拡散過程のAtomREMによる探索を試みた。固体中における水素の拡散およびそれによる固体の構造変化は材料の脆化を引き起こす主因と考えられる。最も簡単なモデルとして、ダイヤモンド構造において炭素サイトを一つ水素で置き換えた架空構造を構成し、この構造から起こる水素の移動過程のシミュレーションを試みた。上記b)の-(CH2)n-鎖で用いた現象論的ポテンシャルでダイヤモンド構造が安定化することを確認した後、水素置換による局所的歪みを調べた(図2-3(下))。さらに、この構造を入力として、水素原子の移動過程のシミュレーションを試みたが、この際未並列化部分の計算所要時間が非常に大きいことが判明し、完全な過程解明には至らなかった。この点は使用するポテンシャル関数の簡単化・およびアルゴリズムのさらなる並列化の両面から改善を続ける。

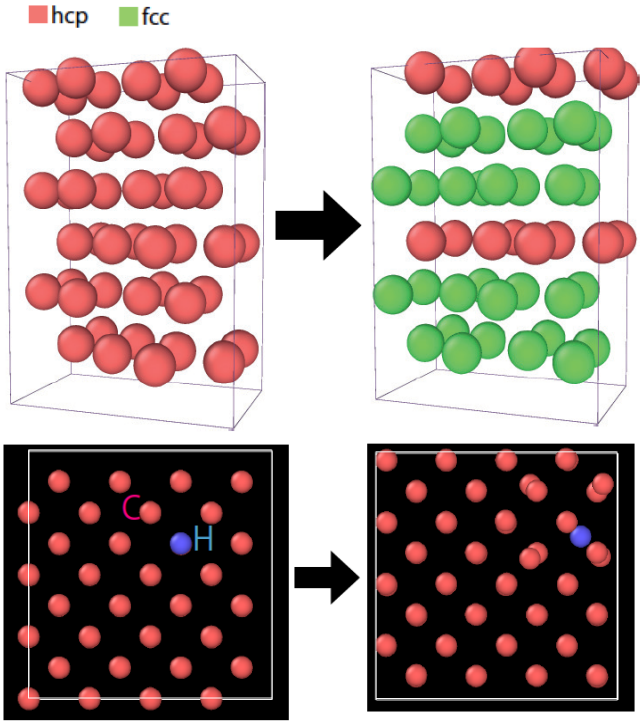


図 2-3（上）アルゴン固体系における面間スライド過程。サイトの色の違いはその近傍の原子が六方最密充填(HCP)配置にあるか面心立方格子(FCC)配置にあるかを表す。(下)ダイヤモンド結晶における水素置換による局所構造歪み。観測された局所歪みが水素拡散に従い伝播していく様子を記述するのが今後の目標である。

論文・発表リスト

[B1] “Stochastic Formalism for Thermally Driven Distribution Frontier: A Nonempirical Approach to the Potential Escape Problem” Ryosuke Akashi and Yuri S. Nagornov, J. Phys. Soc. Jpn. 87, 063801 (2018).
[B2] "Non-empirical weighted Langevin mechanics for the potential escape problem: parallel algorithm and application to the Argon clusters", Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi, arXiv;1812.06581.
[B3] " How to escape from potential basins non-empirically through the minimum-energy paths " Yuri S. Nagornov、明石遼介、第２回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開シンポジウム、金属材料研究所 2018/07/03
[B4] " Stochastic Non-empirical approach to the reaction path seeking " Yuri S. Nagornov, 第3回CDMSI(ポスト「京」重点課題（7）)研究会、東京大学本郷キャンパス、2018/07/19-20
[B5] "Seeking the high energy saddle points for argon cluster by stochastic non-empirical approach" Yuri S. Nagornov,明石遼介、第32回分子シミュレーション討論会、産業技術総合研究所、2018/11/28-30
[B6] ″ポテンシャル極小から最適脱出経路をたどる非経験的方法″ 明石遼介、Yuri S. Nagornov,第32回分子シミュレーション討論会、産業技術総合研究所、2018/11/28-30
[B7] ″重み付きLangevinダイナミクスのポテンシャル脱出問題への応用″ 明石遼介、レア・イベントの計算科学　第2回ワークショップ、筑波大学 2018/12/01

[B8] " Development of the non-empirical method of seeking diverse escape paths on the potential surface" Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi, ポスト「京」重点課題（７）「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成(CDMSI）」第4回シンポジウム、 東京大学物性研究所、2018/12/17-18

[B9] ″反応座標を用いない反応経路探索: クラスター･分子系への応用″ Yuri S. Nagornov, 明石遼介、第二回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」 合同公開ワークショップ、ステーションカンファレンス東京 2019/01/10

[B10] "Development of the non-empirical method of seeking diverse escape paths on the potential surface" Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi, Computational Sciences Workshop 2019, KFCホール 2019/01/16-18

[B11] "Stochastic Non-empirical approach to the reaction path seeking: applications to clusters and molecules" Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi, 日本物理学会第74回年次大会、九州大学伊都キャンパス 2019/03/14-17

[B12] "Exploring pressure-induced superconducting phases in hydrides from first principles" Ryosuke Akashi, APCTP seminar, Asia Pacific Center for Theoretical Physics, Korea, 2019/01/28

[B13] "A Stochastic Non-empirical approach in the problem of the reaction path seeking" Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi, American Physical Society March Meeting 2019, Boston Convention and Exhibition Center, USA 2019/03/04--08

サブ課題C

平成28,29年度の業務計画書で暫定的に用いていたmARTED-WF, ARTED-WFの名称をそれぞれmATTOMCSCF, ATTOMCSCFに改め、以下に記載する。

本サブ課題の目的は、強光子場中マテリアルの理解、とくに強光子場中で電子・正孔の相関が演じる役目の理解である。物質の構造を支配している電子と原子のCoulomb力による相互作用に匹敵する強度の光電場が物質中に導入されることで、極めて非線形・非平衡な現象が引き起こされる。こうした現象の科学は、未だ黎明期であり仮に電子間相互作用が働かない条件であってすら、決定的な理論の提案には至っていない。本課題の目標は、電子・正孔の相関を精確に記述する理論的枠組みを提案し、数値シミュレーションを通じてこうした科学の理解を深めていくことにある。
この目標のために、今年度は光に誘起された電子・正孔間の相関を表現するための理論的基盤の整備、具体的な数値計算における実装の効率化、本課題で既に開発した理論的枠組みとそれを実装したコードを用いた定量的評価に取り組んだ。以下に項目ごとにその詳細を記述する。これらの目標に関連した本年度の課題内容と本課題のこれまでの研究成果を末尾の論文・発表リストにまとめた。

a) mATTOMCSCFを用いた高効率近似理論の開発

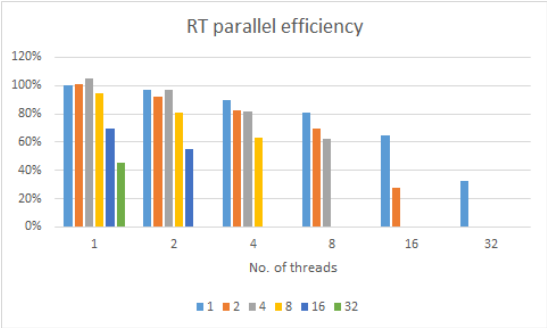
一次元模型を計算するmATTOMCSCFを用いて、三次元現実系への波動関数理論の適用を念頭に、少ない配置で精度を大きく損なわない配置生成理論の開発を進めた。この有力な候補として時間依存最適化結合クラスター理論(TD-OCC、正確には配置生成の枠組みには入らないが、多体波動関数を記述する表現の一つ。)の導入を目指して開発を進めた。TD-OCCは既に一般の量子フェルミオン系において提案されており、孤立原子への適用が最近なされた。ここでは固体への適用を念頭に、結晶運動量を軌道の指標に選んだ際の表現や選択則を導出した。またmATTOMCSCFに実装するためのアルゴリズムを開発した。

b) ATTOMCSCFにおける配置に対する並列化スキームの開発

三次元現実系コードATTOMCSCFでは適用対象が固体であることを反映して、多量の配置を生成する必要がある。こうした配置を大規模並列環境で分散実行する並列化スキームの開発を進めた。
mATTOMCSCFの配置間相互作用の部分を切り出した開発用コードをつくり、そのOpenMPとMPIを組み合わせたハイブリッドの並列化を施した。配置間相互作用におけるCI係数のαスピン、βスピンに対して、前者をOpenMPを用いたスレッドで並列計算し、後者をMPIを用いたプロセスで並列計算するコードとした。電子数を8、軌道数を12とした25万次元のCI係数のfull-CI計算について、スレッド並列とプロセス並列の数を変化させ、40コア(2CPU)のワークステーションと、「京」でストロングスケーリングのベンチマークを取得した。本課題の計算で主要な計算を占める実時間発展の計算部について、100反復の平均で並列化効率を評価した。本ベンチマークにおける計算規模は、「京」において1ノードで計算が24時間以内に終わる中で出来るだけ大きな計算規模になるように選んだ。
並列化効率を定量的に判断するうえで、2冪でノードを増やしていった際に、計算時間が短縮されなくなるノード数が、投入すべき最大ノード数とする評価基準を採用した。この条件は並列化効率が50%になる条件と言い換えられる。図3-1(a)では単一コアの実行時間を基準にしたワークステーションでの結果である。比較的小さな規模の計算であるが、8スレッドまでは50%以上の並列化効率が達成されていることが分かる。図3-1(b)では、スレッド並列数を8に固定した「京」でのプロセス並列数に対する1ノードでの実行時間を基準にした並列効率の結果である。1ノードでも計算可能な小さな規模の計算にも関わらず、64ノードまでは50%以上の並列化効率を達成している。
超並列計算環境を念頭に、多配置相互作用理論を並列化する試みの一環である先行研究(Konstantinos D. Vogiatzis, Dongxia Ma, Jeppe Olsen, Laura Gagliardi, and Wibe A. de Jong, J. Chem. Phys. 147, 184111 (2017))における表3によると、20電子20軌道の4億次元の対応する計算部(表3中 CI eigensolver)における512コアの32コアに対する並列化効率は44%である。本研究で達成したのは、「京」における512コアの8コアに対する並列化効率50%越えである。先行研究はCI係数の分散を行い、より大きな問題(より多くの電子を含み、より多くの軌道を最適化自由度として取り込む)、より困難な問題に適用可能な複雑な並列化アルゴリズムを採用している点で有効性が高い一方、本研究では先行研究よりも小さな問題においては、より良い並列化効率を示す事を確認した。本研究では先行研究が念頭に置いている電子基底状態の計算ではなく、励起状態の計算である。従って、想定している問題の規模自体は必然的に

小さくなるため、より小さな計算規模における並列化効率向上という目的には妥当性がある。

(a)



(b)

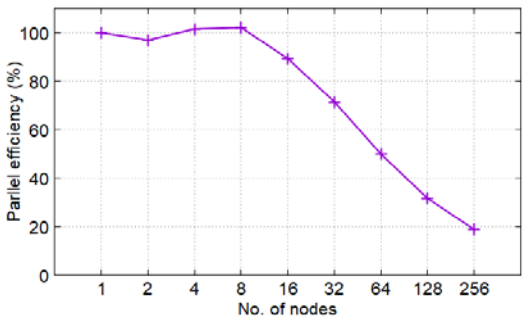


図 3-1: (a)ワークステーションにおけるベンチマークと(b)「京」でのベンチマーク。(a)の凡例の数字はプロセス並列の数を示しており、バーの色と対応している。

c) ATTOMCSCFを用いた三次元系の計算

ATTOMCSCF には最も単純な波動関数理論である時間依存 Hartree-Fock 法(TD-HF)と局所密度近似汎関数を用いた時間依存密度汎関数法(LDA-TDDFT)が実装されている。これらに加えてハイブリッド汎関数を用いた時間依存密度汎関数法(hybrid-TDDFT)を実装し、固体 Si, GaAs の誘電関数を評価し、実験結果と比較した。ATTOMCSCF の特徴は、時間依存の運動方程式を、線形応答を仮定せずに解くため、非線形応答を記述できる点にある。この特徴により、誘電関数といった電場に対する線形応答でも記述できる量のみならず、一般の光電場に対する非線形な応答へも適用可能である。比較可能な実験値が存在し、先行研究があるため、あえて線形応答でも記述できる誘電関数を選んだ。

LDA-TDDFT は計算コストが小さく、多くの非線形応答を記述する先行研究で採用されている。しかし、誘電関数を実験と比較すると、バンドギャップの過小評価、励起子由来のピーク構造が再現できないことがよく知られている。一方、TD-HF は、先行研究によりバンドギャップの過大評価、実験と比べて極端すぎる励起子由来のピーク構造が知られている。Hybrid-TDDFT は LDA-TDDFT と TD-HF の混合であり、二つの問題点を解消し、最も実験結果を再現することが期待されている。しかし、TD-HF、hybrid-TDDFT の計算コストが大きすぎるため、線形応答を仮定して誘電関数を評価した先行研究が一件、非線形応答も記述可能な理論的枠組みで誘電関数を評価した先行研究が一件と、合計二件のみの報告に限定されており、そのポテンシャルは明らかではない。本課題で、これらの三つの手法で直接比較可能な先行研究のある Si と GaAs の誘電関数を比較し、hybrid-TDDFT が最も実験に近い結果を与えることを示した。先行研究では TD-HF は線形応答を仮定した理論的枠組みによるものしかなく、非線形応答も記述可能な枠組みで hybrid-TDDFT を解き GaAs の誘電関数を求めたのは本研究が初めてである。

論文・発表リスト

[C1] Ryoji Anzaki, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa, Gauge Invariance beyond the Electric Dipole Approximation, Phys. Rev. A 98 (2018) 063410.

[C2] Takuya Ikemachi, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, and Kenichi L. Ishikawa, Time-dependent Hartree-Fock study of electron-hole interaction effects on

high-order harmonic generation from periodic crystals, Phys. Rev. A 98 (2018) 023415.
[C3] K. Kaneshima, Y. Shinohara, K. Takeuchi, N. Ishii, K. Imasaka, T. Kaji, S. Ashihara, K.L. Ishikawa, and J. Itatani, Polarization-Resolved Study of High Harmonics from Bulk Semiconductors, Phys. Rev. Lett. 120 (2018) 243903.
[C4] 「実時間量子ダイナミクスシミュレーションで探る固体の高次高調波発生過程 」、『一般社団法人レーザー学会 2018 年度 第 39 回年次大会、シンポジウム: 固体におけるアト秒・強光子場科学の最前線』、東海大学 高輪キャンパス、2019 年 1 月 12 日-14 日、招待講演
[C5] 「密度汎関数理論に基づいた電子ダイナミクスシミュレーションで探る電子状態・電子格子相互作用」、篠原康、『計算科学による分光理論の進展 ～SPring-8 との連携を目指して～ ポスト「京」重点課題 (7)サブ課題 G 第 9 回「共通基盤シミュレーション手法」連続研究会 』、SPring-8 萌光館、2018 年 8 月 27 日、招待講演
[C6] 「固体 GaSe からの高次高調波発生の原子論的シミュレーション」、篠原康、『物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の今と未来」 』、東京大学物性研究所、2018 年 4 月 2 日-3 日、招待講演
[C7] 「固体高次高調波の理論的研究：一次元模型 シミュレーション、三次元原子論的シミュ レーションによるアプローチ」、篠原康、『応用物理学科セミナー』、東京理科大学 葛飾キャンパス、招待講演
[C8] 「ポスト「京」萌芽 極限マテリアル サブ課題 C 進捗報告：強光子場に駆動される非線形電子ダイナミクス」、篠原康、『ポスト「京」重点課題（７） 「次世代の産業を支える新機能デバイス・ 高性能材料の創成(CDMSI)」第 4 回シンポジウム』、東京大学物性研究所、2018 年 12 月 17 日-18 日、ポスター発表
[C9] 「固体高次高調波発生の原子論的シミュレーション 」、篠原康、『第 2 回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開シンポジウム』、東北大学金属材料研究所、2018 年 7 月 4 日、口頭発表
[C10] 「時間依存 Wannier 関数による固体電子ダイナミクスの記述」(Poster)、篠原康、『第 79 回応用物理学会秋季学術講演会』、名古屋国際会議場、19a-PA3-1、2018 年 9 月 18 日-21 日、ポスター発表
[C11] 「一次元模型結晶を用いた Wannier 関数の時間依存版への拡張 」、篠原康、『日本物理学会 2018 年秋季大会』、同志社大学 11aM301-10、2018 年 9 月 9 日-12 日、口頭発表
[C12]「運動量空間軌跡模型を用いたキャリアエンベロープ位相に依存した高次高調波カットオフの解析」、篠原康、山村鐘賢、石川健一、『日本物理学会 2018 年秋季大会』、同志社大学 10pB106-4、2018 年 9 月 9 日-12 日、口頭発表
[C13] Theoretical Study of Electron Dynamics under Intense Laser Field: Effects of Spatial Variation and Polarization of the Field, Yasushi Shinohara, CIAiS International Symposium 2019, Tokyo, Japan, 2019 March 1.、口頭発表
[C14] Electron dynamics simulation for solid-state high-harmonic generation based on first-principles theory, International Symposium on Ab Initio Electron Dynamics Simulations, Tsukuba, Japan, 14th-16th November, 2018, 招待講演
[C15] High-Harmonic Generation from Crystalline Solids under Carrier Envelope Phase Controlled Pulse, Yasushi Shinohara, Shoken Yamamura, and Kenichi L. Ishikawa, 9th AWCXR, Hokkaido

University, Sapporo, Japan, 16th-17th October 2018, ポスター発表

[C16] Theoretical study on high-order harmonic generation from extended systems, Yasushi Shinohara, iSAP HAMAMATSU, Hotel Kokonoe , Hamamatsu, Japan, 17th-19th April 2018, ポスター発表

４－３．活動（研究会等）

【共催】

1, 第 2 回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開ワークショップ
平成 31 年 1 月 10 日、ステーションコンファレンス東京

2, 第 2 回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開シンポジウム
平成 30 年 7 月 3 日、東北大学金属材料研究所講堂

【協賛】

1, 第二回ポスト「京」に向けたアプリ高度化合宿
平成 30 年 11 月 28 日～11 月 30 日、理化学研究所計算科学研究センター

2, ポスト「京」重点課題（7）「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」第 4 回シンポジウム
平成 30 年 12 月 17 日～12 月 18 日、東京大学物性研究所

４－４．実施体制

業　務　項　目	担　当　機　関	担　当　責　任　者
①（サブ課題A）複合相関マテリアルのための電子状態計算基盤－DFTを超えて超高精度へ	国立大学法人東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所	特任講師 松下 雄一郎
②（サブ課題B）極限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション－室温超伝導に向けて	国立大学法人東京大学大学院理学系研究科	助教 明石 遼介
③（サブ課題C）強光子場中マテリアルの原子論的シミュレーション：波動関数理論から臨む光と物質の相互作用	国立大学法人東京大学大学院工学系研究科	特任研究員 篠原 康
④プロジェクトの総合的推進	国立大学法人東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所	特任講師 松下 雄一郎

様式第２１ **別添１**

学 会 等 発 表 実 績

委託業務題目： 基礎科学のフロンティア ― 極限への挑戦（複合相関が織りなす極限マテリアル－原子スケールからのアプローチ）

機　関　名： 国立大学法人東京工業大学

1. 学会等における口頭・ポスター発表

発表した成果（発表題目、口頭・ポスター発表の別）	発表者氏名	発表した場所（学会等名）	発表した時期	国内・外の別
Quasiparticle spectra based on wave function theory: Application of coupled-cluster theory and self-energy functional theory （口頭）	Yu-ichiro Matsushita and Taichi Kosugi	Asian-Workshop (ASIAN-21)	2018/10/30	国外
Can exact (local) Kohn-Sham potential reproduce band gaps?: Analysis using an analytically solvable two- and three-body models （口頭）	Yu-ichiro Matsushita and Taichi Kosugi	Americal Physical Society March Meeting	2019/3/4	国外
Quasiparticle spectra of polyacetylene using coupled-cluster singles and doubles (CCSD)	Taichi Kosugi and Yu-ichiro Matsushita	Americal Physical Society March Meeting	2019/3/7	国外
相互作用する三電子系の解析解と二電子系のグリーン関数：厳密なコーン-シャム系との比較	小杉太一，松下雄一郎	日本物理学会 （春期）	2019/3/15	国内
波動関数理論に基づいた準粒子スペクトル計算：結合クラスター理論からの1粒子グリーン関数構築	松下雄一郎，小杉太一	日本MRS年次大会	2018/12/10	国内
結合クラスター法に基づくポリアセチレンの一粒子グリーン関数の計算	小杉太一，松下雄一郎	日本物理学会（秋季）	2018/9/11	国内
CCSD法による一電子スペクトルの計算：孤立原子への適用	松下雄一郎，小杉太一，西紘史，古川頼誉	第21回理論化学討論会	2018/5/16	国内
結合クラスター理論と自己エネルギー汎関数理論に基づく原子の電子状態の比較	小杉太一，西紘史，古川頼誉，松下雄一郎，	第21回理論化学討論会	2018/5/16	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文（発表題目）	発表者氏名	発表した場所（学会誌・雑誌等名）	発表した時期	国内・外の別
Band structures in coupled-cluster singles-and-doubles Green's function (GFCCSD)	Y. Furukawa, T. Kosugi, H. Nishi, and Y.-i. Matsushita	The Journal of Chemical Physics	2019/3/25	国外
Comparison of Green's functions for transition metal atoms using self-energy functional theory and coupled-cluster singles and doubles (CCSD)	T. Kosugi, H. Nishi, Y. Furukawa, and Y.-i. Matsushita	The Journal of Chemical Physics	2018/6/12	国外
Quasiparticle energy spectra of isolated atoms from coupled-cluster singles and doubles (CCSD): Comparison with exact CI calculations	H. Nishi, T. Kosugi, Y. Furukawa, and Y.-i. Matsushita	The Journal of Chemical Physics	2018/7/19	国外
One-particle Green's function of interacting two electrons using analytic solutions for a three-body problem: comparison with exact Kohn-Sham system	T. Kosugi and Y.-i. Matsushita	Journal of Physics: Condensed Matter	2018/10/5	国外
Wannier interpolation of one-particle Green's functions from coupled-cluster singles and doubles (CCSD)	T. Kosugi and Y.-I Matsushita	The Journal of Chemical Physics	2019/3/18	国外

（注１）発表者氏名は、連名による発表の場合には、筆頭者を先頭にして全員を記載すること。

（注２）本様式はexcel形式にて作成し、甲が求める場合は別途電子データを納入すること。

様式第２１ **別添１**

学 会 等 発 表 実 績

委託業務題目: 基礎科学のフロンティア ― 極限への挑戦(複合相関が織りなす極限マテリアル－原子スケールからのアプローチ)

機　関　名: 国立大学法人東京大学

1. 学会等における口頭･ポスター発表

発表した成果（発表題目、口頭・ポスター発表の別）	発表者氏名	発表した場所（学会等名）	発表した時期	国内・外の別
Stochastic Non-empirical approach to the reaction path seeking: applications to clusters and molecules(口頭発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	九州大学伊都キャンパス(日本物理学会第74回年次大会)	2019/3/14-17	国内
A Stochastic Non-empirical approach in the problem of the reaction path seeking(口頭発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	Boston Convention and Exhibition Center, Boston, USA (Amreican Physical Society March Meeting 2019)	2019/3/4-8	国外
Exploring pressure-induced superconducting phases in hydrides from first principles (口頭発表・招待)	Ryosuke Akashi	Asia Pacific Center for Theoretical Physics, Pohang, Korea (APCTP Seminar)	2019/1/28	国外
Development of the non-empirical method of seeking diverse escape paths on the potential surface (ポスター発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	KFCホール(Computational Sciences Workshop 2019)	2019/1/16-18	国内
反応座標を用いない反応経路探索: クラスター・分子系への応用 (口頭発表)	Yuri S. Nagornov, 明石遼介	ステーションカンファレンス東京(第二回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」 合同公開ワークショップ)	2019/1/10	国内
Development of the non-empirical method of seeking diverse escape paths on the potential surface (ポスター発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	東京大学物性研究所(ポスト「京」重点課題（７）「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成(CDMSI）」第4回シンポジウム)	2018/12/17-18	国内
重み付きLangevinダイナミクスのポテンシャル脱出問題への応用 (口頭発表・招待)	明石遼介	筑波大学 (レア・イベントの計算科学第2回ワークショップ)	2018/12/1	国内
ポテンシャル極小から最適脱出経路をたどる非経験的方法(口頭発表)	明石遼介, Yuri S. Nagornov	産業技術総合研究所(第32回分子シミュレーション討論会)	2018/11/28-30	国内
Seeking the high energy saddle points for argon cluster by stochastic non-empirical approach(ポスター発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	産業技術総合研究所(第32回分子シミュレーション討論会)	2018/11/28-30	国内
Stochastic Non-empirical approach to the reaction path seeking (ポスター発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	東京大学本郷キャンパス(H30年度 ポスト「京」重点課題（７） 第3回CDMSI研究会)	2018/7/19-20	国内
How to escape from potential basins non-empirically through the minimum-energy paths (口頭発表)	Yuri S. Nagornov, Ryosuke Akashi	東北大学金属材料研究所(第2回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開シンポジウム)	2018/7/3	国内
実時間量子ダイナミクスシミュレーションで探る固体の高次高調波発生過程	篠原 康	一般社団法人 レーザー学会2018年度第39回年次大会、シンポジウム: 固体におけるアト秒・強光子場科学の最前線	2019/1/13	国内
Electron dynamics simulation for solid-state high-harmonic generation based on first-principles theory	Yasushi Shinohara	International Symposium on Ab Initio Electron Dynamics Simulations	2018/11/15	国内
密度汎関数理論に基づいた電子ダイナミクスシミュレーションで探る電子状態・電子格子相互作用	篠原 康	計算科学による分光理論の進展 ～SPring-8との連携を目指して～ ポスト「京」重点課題 (7)サブ課題G 第9回「共通基盤シミュレーション手法」連続研究会	2018/8/27	国内
固体GaSeからの高次高調波発生の原子論的シミュレーション	篠原 康	物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の今と未来」	2018/4/2	国内
High-Harmonic Generation from Crystalline Solids under Carrier Envelope Phase Controlled Pulse	Yasushi Shinohara, Shoken Yamamura, and Kenichi L. Ishikawa	9th AWCXR	2018/10/16	国内
Theoretical study on high-order harmonic generation from extended systems	Yasushi Shinohara	iSAP HAMAMATSU	2018/4/17	国内
固体高次高調波発生の原子論的シミュレーション	篠原 康	第2回ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」・「極限マテリアル」合同公開シンポジウム	2018/7/4	国内
ポスト「京」萌芽 極限マテリアル サブ課題 C 進捗報告：強光子場に駆動される非線形電子ダイナミクス	篠原 康	ポスト「京」重点課題（７） 「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成(CDMSI）」第4回シンポジウム	2018/12/17	国内
運動量空間軌跡模型を用いたキャリアエンベロープ位相に依存した固体高次高調波カットオフの解析	篠原康、山村鐘賢、石川顕一	日本物理学会2018年秋季大会	2018/9/10	国内

一次元模型結晶を用いたWannier関数の時間依存版への拡張	篠原 康	日本物理学会2018年秋季大会	2018/9/11	国内
時間依存Wannier関数による固体電子ダイナミクスの記述	篠原 康	第79回応用物理学会秋季学術講演会	2018/9/18	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文（発表題目）	発表者氏名	発表した場所（学会誌・雑誌等名）	発表した時期	国内・外の別
Stochastic Formalism for Thermally Driven Distribution Frontier: A Nonempirical Approach to the Potential Escape Problem	Ryosuke Akashi, Yuri S. Nagornov	Journal of the Physical Society of Japan	2018/5/10	国内(英文)
Polarization-Resolved Study of High Harmonics from Bulk Semiconductors	K. Kaneshima, Y. Shinohara, K. Takeuchi, N. Ishii, K. Imasaka, T. Kaji, S. Ashihara, K.L. Ishikawa, and J. Itatani	Phys. Rev. Lett. 120 (2018) 243903	2018/6/12	国外
Time-dependent Hartree-Fock study of electron-hole interaction effects on high-order harmonic generation from periodic crystals	Takuya Ikemachi, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, and Kenichi L. Ishikawa	Phys. Rev. A 98 (2018) 023415	2018/8/17	国外
Gauge Invariance beyond the Electric Dipole Approximation	Ryoji Anzaki, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa	Phys. Rev. A 98 (2018) 063410	2018/12/11	国外

（注1）発表者氏名は、連名による発表の場合には、筆頭者を先頭にして全員を記載すること。

（注2）本様式はexcel形式にて作成し、甲が求める場合は別途電子データを納入すること。

別添２

「基礎科学のフロンティアー極限への挑戦
複合相関が織りなす極限マテリアルー原子スケールからのアプローチ」
実施計画

平成 30 年 3 月 22 日

国立大学法人東京工業大学

松下雄一郎

【改訂履歴】

版	項目	ページ	主な改訂内容（概要）
1.0 (2017.6.5)			額の確認後、制定
2.0 (2018.3.22)	―	―	代表機関変更を受け、版数変更して対応。
	改訂履歴	―	新規追加
	―	―	代表機関の更新。
	１．（３）	2～5	中間評価における指摘事項への対応として全サブ課題の研究目標の修正と開発アプリ名の更新。
	１．（５）	7	開発アプリ名の更新。
	１．（６）	8～9	代表機関変更に伴う実施機関の更新。
	２	12～27	中間評価における指摘事項への対応として全サブ課題の研究目標の修正。
	４．	28	中間評価における指摘事項への対応状況を追記。

目次

１．実施概要 1
（１）目的・意義 1
（２）研究開発内容 1
（３）目標・期待される成果 2
（４）周辺領域への波及効果、課題全体における計算科学やシミュレーションの位置づけ 4
（５）年次計画 6
（６）実施体制 8
（７）必要計算資源 10
２．研究開発内容詳細 12
２－１．サブ課題Ａ．複合相関マテリアルのための電子状態計算基盤 － DFT を超えて超高精度へ 12
（１）目的・意義 12
（２）実施内容 12
（３）目標・期待される成果 13
（４）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと 14
（５）実施体制 15
２－３．サブ課題 B：極限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション － 室温超伝導に向けて 16
（１）目的・意義 16
（２）実施内容 17
（３）目標・期待される成果 18
（４）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと 20
（５）実施体制 21
２－３．サブ課題 C. 強光子場中マテリアルの原子論的シミュレーション － 波動関数理論から臨む光と物質の相互作用 23
（１）目的・意義 23
（２）実施内容 23
（３）目標・期待される成果 24
（４）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと 25
（５）実施体制 26
３．採択時の留意事項への対応状況 28
４．中間評価における指摘事項への対応 28

１．実施概要

（１）目的・意義

目的：近年の物質科学の進展において、計算科学からのアプローチは実験/観測・理論に引き続き第三の形態とも呼ばれ、極めて有効なものであると認識されている。密度汎関数理論(DFT)に基づく第一原理シミュレーションは Si 等の電子相関の弱い物質に対して、比較的小さな計算コストで、かつ定量的にも十分な精度で実験の再現や、さらには予言をも可能にしてきた。しかしながら、強い電子相関を示す物質、超高圧下高温超伝導体、強光子場中での量子ダイナミクスといった極限状況にあるマテリアルの性質・挙動を理解するには通常の DFT を超えた取り組みが必要となる。本課題の目的は、ポスト「京」という超並列計算機を武器に、これら極限状況・極限物質の織りなす新奇な物性現象・マテリアル設計を正しく扱える第一原理計算手法の開発とその適用である。

意義：本課題における極限マテリアルの対象は、実験は可能であるものの、そこから得られる物理量は多分に限定的であり、まことの理解をするためには理論シミュレーションが必要不可欠な物質・現象である。本課題では第一原理計算を行うことで、この問題に原子スケールからのアプローチで挑み、種々の現象のメカニズムを明らかにする。また本研究の遂行を通じて第一原理計算の基礎技術開発が進めば、日本における戦略的第一原理計算手法開発拠点の創始にもつながる。計算量の増大とともに扱える計算対象も急拡大している当該分野での基礎手法開発の振興は、今後長期にわたる基礎・応用物質科学分野における日本のプレゼンス拡大に必ずや寄与すると考える。

（２）研究開発内容

上記目的のもと、本課題は大きく以下の３つのサブ課題から構成される。【サブ課題 A】では電子基底状態を扱い、【サブ課題 B】では超伝導状態を、【サブ課題 C】では電子の励起状態を扱う。より詳細には、【サブ課題 A】では、電子の基底状態に対して波動関数理論、場の理論の両アプローチからの超精密計算手法の開発を行う。これにより、強い電子相関の示す物性を高精度で予言する計算スキームを開発・展開する。【サブ課題 B】では超高圧下での高温超伝導体物質探索とその計算スキーム開発を実施する。超高圧力下での相変態（化合・分解反応・構造相転移）を原子スケールから明らかにすることにより、圧力誘起超伝導物質の反応経路、その超伝導現象の物理を明らかにする。また、実験との比較共同研究を行い、実験との間に相互フィードバックをかけることにより、計算の信頼性・新物質予言までを行う。【サブ課題 C】では波動関数理論を用いた強光子場中物質の緩和過程に本質的となる電子相関/電子散乱を取り込んだ励起状態計算手法開発とその適用を行う。本課題により非平衡状態にある電子系が平衡状態に緩和するダイナミクスを定性・定量両面から明らかにする。また、それら各サブ課題間での相互交流を行いながら、電子の間の相関や電子原子の間の相関、またらそれら全てが渾然一体となり生み出す複合相関が創り出す新たな物性物理を第一原理原子スケール計算から見出していく。

（３）目標・期待される成果

目標・期待されるアウトプット成果：

本研究課題の目的は、新奇な極限物性を正しく扱える第一原理計算手法の開発・適用である。物質・材料科学において大きな飛躍を堰き止めていた難題を取り除くことが本研究課題の目標である。これにより、物質・材料科学の新たなフェーズへと押し上げる。具体的に、全課題とも第一原理計算手法に立脚しながら、サブ課題 A では高精度電子状態計算手法を開発することによる強相関電子系への展開、サブ課題 B では固体固体相変態シミューレーションの実現、サブ課題 C では精緻な電子励起状態の記述を行う。各サブ課題毎の詳細な期待されるアウトプットは以下の通りである：

【サブ課題 A】では、極限マテリアルを正しく・高精度で記述するための基底電子状態計算手法の刷新を行う。計算基盤研究はすべての物性理論にとって重要な位置を占める。これまでの DFT の枠を超えた新たなレベルへの不連続なジャンプこそが真に必要な時である。

具体的成果目標としては以下を掲げる。

・平成 29 年度終了時

RPA が実装された xTAPP（九工大、中村氏）をベースに STLS 理論を実装した「xTAPP-STLS（仮名）」と、RSDFT(東大、岩田氏)をベースに CCSD、EOM-CCSD 法を実装した「WaveX」を開発する。その際、超並列計算機用にアルゴリズムの選定とチューニングを行い、計算機のパフォーマンスを最大限引き出すよう準備を整える。また、テスト計算として、いくつかの小さなシステム・モデルに対しての適用を行い、振る舞いを見ながらチューニングにフィードバックをかける。

・本格実施フェーズ終了時

波動関数プログラムコード「WaveX」のスパコン上での並列化チューンを行い、具体的な物質に適用し、従来の DFT では記述することが難しい強相関電子系・van der Waals 力・鏡像ポテンシャル・バンドギャップに対する信頼性の確認を行う。さらには、準粒子バンド構造解析に加えて、サテライトピークに関する考察まで行う。同時に、それぞれの適用結果を即座に論文とし、世界に向けて発信を行っていくことにより、世界を先導する成果を創出してゆく。実験との共同研究も同時に進める。

・ポスト「京」運用開始 5 年後

より広範な物質群への適用を進める。信頼できる基底状態計算手法適用の結果、新奇強相関物質群への理解・高温超伝導転移温度予想・新奇超伝導体の機構解明・物質の非平衡状態への理解・励起状態の理解が期待される。また、サテライトピークの詳細な解析が可能となることでサテライトピークを用いた新たな実験の解析手法の確立や DFT によるサテライトピークの計算手法開発に繋がるものと思われる。さらには、信頼できる計算結果の存在は DFT の発展をも促すものと考えられ、計算物質科学にも大きな波及効果が期待される。

【サブ課題 B】

水素化合物における水素分子解離反応および超伝導相核形成の第一原理的取扱いを目標とし、圧力下における固体反応（分子解離や核形成など）の進行速度を見積もる第一原理シミュレーションアプリ「ABSSol（仮名）」の開発を行う。そのための中核技術として並列計算を利用した固体反応の(シミュレーション上での)加速法の確立を目指す。開発アプリを圧力下水素化合物の相変態に適用し、超伝導相形成過程の解明および新規超伝導相へ到達するための実験スキーム提案を目指す。

目標達成のために最も重要となるのは原子自由度を露わに扱いつつ固体-固体転移を実現するコード開発、およびそのための基礎理論・アルゴリズム確立である。低温における固体の分離や核形成など稀な事象のシミュレーションは、レアイベントサンプリング法、分子動力学法、そしてポスト「京」を利用した巨大並列計算によりようやく可能となる未踏の目標であり、達成の際には基礎物理の観点から極めて独自性の高い成果となる。またこのようなシミュレータが公開された暁には、本サブ課題でとりあげる圧力誘起超伝導転移のみならず、材料の寿命評価・水素吸蔵・結晶の高圧合成など産業的応用と距離の近い現象のシミュレーションも可能となり、広い産業分野で材料開発の効率化に資する。

具体的成果目標としては以下を掲げる。

・平成 29 年度終了時

「ABSSol（仮名）」プロトタイプ開発目標として、既存分子動力学法コードに並列化レアイベント・サンプリング法を実装する。典型的物質について固体の相変態の加速および反応の時定数見積もりの実用的精度実現を目指す。基礎理論・アルゴリズムおよびベンチマーク物質に対する応用例を論文として投稿する。

・本格実施フェーズ終了時

「ABSSol（仮名）」応用により、近年圧力誘起高温超伝導が実験的に発見された硫化水素における相分離過程の解明、理論予測はあるが実験で実現していない高圧下超伝導相の最適到達方法の提案を目指す。それを通してアプリの性能向上をさらに進める。次のような形で成果を発信する。(1) 基礎アルゴリズムおよび開発アプリの適用テストに関して計算物理分野の論文誌上で結果を報告する。(2) 開発アプリ応用による圧力誘起超伝導相形成に関する予言・実験と協力した検証を物理化学分野の論文として発表する。(3) 開発アプリ「ABSSol(仮名)」そのものを関連ドキュメントと共に外部公開する。

・ポスト「京」運用開始 5 年後

実験との協働を通して圧力誘起新規超伝導相の実現を目指す。また、水素吸蔵・リチウム電池・圧力下結晶成長など、より広い意味での固体反応が関わる現象へのアプリ応用・拡張といった周辺分野への展開を進める。これにより固体反応現象の基礎的機構の解明が進むのみならず、広い分野の材料開発の効率化に寄与することが期待できる。

【サブ課題 C】

強光子場にさらされたマテリアルにおいて、もっとも重要な物理過程の一つである電子間散乱に起因する緩和過程を第一原理的に記述する理論的枠組みを開発する。本課題で得られる緩和に寄与する物理過程の理解が、近年の光科学やレーザーを使った非熱加工に渡った広い分野への貢献が期待される。

・平成 29 年度終了時

ARTED をベースに、波動関数理論に基づくアプローチを実装した ATTOMCSCF、およびそのプラットフォームになるモデル小規模系を波動関数理論に基づくアプローチで計算を行う mATTOMCSCF の開発を行う。mATTOMCSCF で要素的な技術開発を行い、そこで得られた知見を逐次 ATTOMCSCF へと反映させていく。固体の励起状態に対する時間依存波動関数理論によるアプローチは現状本プロジェクトが世界初であるため、模型固体を対象とする mATTOMCSCF の遂行そのものが基礎科学的

に重要な意味を持つ。ATTOMCSCF の遂行により世界で初めて三次元固体の緩和過程の第一原理からの記述が可能となる。

・本格実施フェーズ終了時

世界初の固体の時間依存波動関数理論の結果として mATTOMCSCF のシミュレーション結果を論文として発表する。また、世界初の三次元固体の緩和過程の第一原理からの記述として ATTOMCSCF のシミュレーション結果を論文としてまとめる。また、ATTOMCSCF を用いて標準的な物質群において系統的なシミュレーションに取り組み、他の物理量と合わせて包括的な理解を得る。また、mATTOMCSCF と ATTOMCSCF の実装に伴う計算物理的な進展を論文にまとめる。

・ポスト「京」運用開始 5 年後

本課題の遂行で得られる、第一原理ハミルトニアンに対する物理的な配置間相互作用の知見から、より小さな計算コストかつ定量的な電子間散乱・緩和の模型構築の知見が得られる。この知見を用いた簡便な多体電子系シミュレーターの開発による、固体の強光子場科学の理解、及び強光子場工学の推進への寄与が期待される。特に量子シミュレーションの軽量化に伴って、時空間マルチスケールシミュレーション法を開発し、nm から μm の強光子場下マテリアルの丸ごとシミュレーションが視野に入る。

<u>アウトカム成果：</u>

・ポスト「京」運用開始 5 年後

本課題で開発するアプリ適用と実験との共同により、極限マテリアルの学理が一層深化することが期待される。特に国内の実験家との密接な連携によりポスト「京」で開発したアプリとその学理の戦略的利用、物質科学における新たなパラダイムの開拓に繋げていく。

・ポスト「京」運用開始 10 年後

物性物理分野における第一原理シミュレーションの理論開発、および最先端理論の数値的実証は、欧米の研究グループに比して国内の研究グループは特に近年大きく後れを取っている。<u>各サブ課題の遂行による科学の進展のみに留まらず、本課題責任者がこうした理論開発、数値実証において世界を主導する研究ネットワークを創始することも本課題遂行の大きな目標の一つである。</u>本課題終了時、サブ課題責任者の平均年齢 36 歳であり、本課題遂行後も長期にわたって、本分野のみならず周辺領域との共同する土台を醸成することが期待される。

（4）周辺領域への波及効果、課題全体における計算科学やシミュレーションの位置づけ

【サブ課題 A】第一原理計算サイドから強い電子相関系への適用が可能となれば、強相関系の学術分野への貢献も広がる。計算技術基盤の開発は物性理論全体への波及効果が期待できる。サブ課題 B との共同研究からはスピン揺らぎ媒介超伝導体等の「非」従来型超伝導体のメカニズム解明への大きな一歩が踏み出せる。また、強相関実験手法開発(角度分解光電子分光法(ARPES))グループとの共同研究も視野にいれており、実験と計算科学との対等な協力・競合は物質科学全体に大きなブレークスルーを創り出すものと思われる。

【サブ課題 B】本課題の根幹目標はシミュレーションアプリの実装である。「京」では手がつけられなかった固体の相変態という現象をポスト「京」の計算資源と最先端アルゴリズムの組み合わせにより

シミュレート可能にするという点が本課題のチャレンジである。あらゆるマテリアルの電子物性の土台は結晶構造である。構築した手法は圧力に限らず様々な環境における物質に応用可能であり、水素吸蔵合金やバッテリーなど様々な新機能探索をサポートする。本課題が達成されれば材料探索の戦略はこれまでと全く違うものになる。

【サブ課題 C】キーとなる情報の一つは光励起されたマテリアルの緩和過程に対する知見である。当課題代表者は特に高付加価値レーザー加工技術の創始に関連して実験家と共同研究を行っており、こうした知見は直接的に実験結果を理解するうえで重要な情報となる。また、緩和過程は光で駆動するオプトエレクトロニクスデヴァイスを高周波動作をさせる際の非平衡状態制御に必要不可欠なものであり、本課題で得られる結果と課題で開発する非線形電子ダイナミクスシミュレーション手法が有効に働くことが期待される。

（５）年次計画

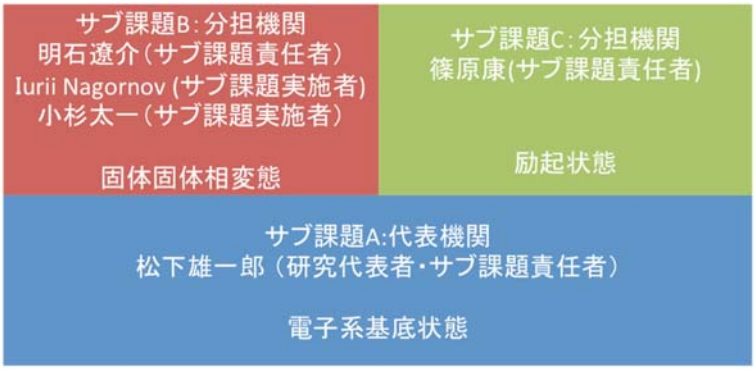
課題全体	中間目標（平成29年度）	ポスト「京」を念頭に置いた超大規模並列環境での計算実行準備の終了。「京」で実行可能な小規模モデルシステムを題材とし、計画されたアルゴリズム実装のチューニングを終了する。
	最終目標（平成31年度）	開発アプリ群のポスト「京」実機上でのチューニングと、科学的課題の遂行。

サブ課題名 （分担機関・責任者）	調査研究・準備研究フェーズ		本格実施フェーズ	
	平成28年度	平成29年度	平成30年度	平成31年度
サブ課題A *複合相関マテリアルのための電子状態計算基盤－DFTを超えて超高精度へ* *（東京工業大学・松下雄一郎）*	(目標) a) CCSD/STLSのモデル系への適用 b) CCSD/STLSの実装 (実施内容) a) STLS 理論の一様電子ガス系への予備的計算とアルゴリズムの改良、STLS 理論の理想金属表面への適用、CCSD の 0・1 次元モデルへの適用とアルゴリズム改良 b) CCSD/STLSの周期系への実装を開始する	(目標) a) CCSD/STLSのスパコン「京」上でのチューニングとアルゴリズム開発 b) CCSD/STLSのスパコン「京」上でのベンチマーク作成 (実施内容) a) プログラムの実装を終え、スパコン「京」上でのチューニングを行うと同時に、計算時間のボトルネックを洗い出し、アルゴリズム開発を行う。 b) 実際の物質(Siなど)への適用を開始し、ベンチマークを作成する	(目標) a) CCSD/STLSのスパコン「京」上での本格実施 b) CCSD/STLSのポスト「京」上でのチューニングとアルゴリズム開発 (実施内容) a) スパコン「京」上において、比較的系の小さな典型的な半導体・分子系への本格的実施を行う。 b) ポスト「京」上でのチューニングを行うと同時に、ポスト「京」のハードウェアに最適なアルゴリズムの開発を行う	(目標) a) CCSD/STLSのポスト「京」上での本格実施とアルゴリズム開発 (実施内容) a) ポスト「京」上において、強相関物質への本格的実施を行うと同時に、必要に応じてアルゴリズムの改良を行なっていく。

サブ課題B *極限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション--室温超伝導に向けて* *（東京大学大学院理学系研究科・明石遼介）*	（目標） a)単純な物質における圧力下固体相転移の実現 b)サンプリング法による実時間加速の達成 （実施内容） 1,古典分子動力学法コードによる圧力誘起固体-固体転移の実現。 2,臨界核形成に要するシステムサイズ、ノード時間の調査。 3,サンプリング法の中核部分の実装および臨界核形成の実時間加速のテスト。	（目標） a)サンプリングアルゴリズム部分の並列化 b) 第一原理電子状態計算の導入 c)上記スキームについて論文投稿 （実施内容） 1, 原子ポテンシャルの第一原理計算からの引き継ぎ、又は既発第一原理分子動力学法コードへのサンプリングアルゴリズム実装 2,「京」上での並列性能チューニング。 3,常圧下における構造転移のレート計算を通した精度検討および論文執筆。	（目標） a)前年度までに開発したアプリのポスト「京」上での並列性能向上 b)典型的な圧力誘起高温超伝導相形成実験のプロトコルの再現性の検証を通して定量的精度の向上 （実施内容） 1, ポスト「京」上での開発アプリを用いた計算の実施および並列化性能改善。 2,典型的な圧力誘起超伝導体形成(硫化水素の相変態など)における相変態レートの計算。	（目標） a)様々な水素化合物について高温超伝導相に到達するために有効な加圧スキームを提案する論文を投稿 b)アプリ公開、関連論文投稿 （実施内容） 1,分子解離や金属相核形成のレートを開発アプリを用いて温度・圧力を変えて網羅的に計算。実験家との議論。 2,開発アプリのコード構造単純化。入力インターフェースの開発。使用法に関するドキュメントの執筆。論文執筆
サブ課題C *強光子場中マテリアルの原子論的シミュレーション：波動関数理論から臨む光と物質の相互作用* *（東京大学・篠原康）*	(目標) ATTOMCSCF開発に向けたTD-HF法の実装。 mATTOMCSCFへのTD-MCSCF法の実装。 (実施内容) 大量の小規模FFTを超並列環境で効率的に実装するアルゴリズムの開発。 mATTOMCSCFを用いて高効率な配置生成アルゴリズムを開発する。	(目標) ATTOMCSCFに対するTD-MCSCF法の実装。 mATTOMCSCFを用いた高効率近似理論の開発。 (実施内容) 超並列環境での配置生成アルゴリズムの開発。 求める物理過程に大きく寄与する配置の選定。	(目標) ATTOMCSCFをシンプルな物質群に適用し、先行研究との比較を行う。 ATTOMCSCFの高効率近似理論のベンチマークを得る。 (実施内容) ATTOMCSCF, mATTOMCSCFのシミュレーションから、電子散乱に起因する緩和過程の解析を行う。緩和時定数の評価など。	(目標) ATTOMCSCFの高効率近似理論を用いて、大規模系のシミュレーションを遂行する。 (実施内容) 様々な物質群におけるシミュレーションの解析、緩和過程に対する統一的な理解を得て、簡便な模型を構築する。

（６）実施体制

本課題の体制作りのキーは「原動力のある卓越した少数の実務家」である。研究等の知的活動における生産性は人により数百倍も異なると言われている。本課題の中心を担う各サブ課題責任者は全員手法開発・物質シミュレーションについて論文を継続的に発表している世界でも数少ない研究者である。また、世界的にも活発に研究活動をこなしており、世界中に研究者ネットワークを有する若手のリーダーで構成される。若さ故に不足されると思われる経験やノウハウに関しては、研究協力者として、計算機科学と実験科学における正真正銘のトップ研究者を据えている。これにより、若手のギラギラしたエネルギッシュな勢い･機動力と経験豊かな諸先生方との一体化を測る。これら研究遂行時における問題が発生した際にはこれら研究協力者と協力･ノウハウの共有を行うことにより、問題解決に全力で当たる。具体的にはサブ課題毎に次のような研究協力者との連帯を執る：



協力機関						
東京大学	九州工業大学	理化学研究所	筑波大学	大阪大学	名古屋大学	The Skolkovo Institute of Science and Technology
池町拓也 高田康民 吉本芳英 石川顕一 佐藤健 常行真司 辻本直人	中村和磨	飯高敏晃 吉澤香奈子	重田育照	石川孝洋 越智正之 清水克哉	押山淳 曽我部知広	Artem Oganov

図 １研究体制の概要図

【サブ課題 A】

課題責任者が中心となり、波動関数理論について経験豊富な下記の三名の連携研究者の協力を仰ぎながら、課題を遂行する。

・　小杉太一（東京大）DFT/場の理論/波動関数理論の習熟者であり、CCSD 法の実装・適用・アルゴリズム開発と共に、STLS 理論の実装・適用を行う

・　西紘史（東京大）CCSD 法の実装・適用・アルゴリズム開発を担当

・　古川頼誉（東京大）CCSD 法の実装・適用・アルゴリズム開発を担当

連携研究者:

- 押山淳（名大）物性理論に対する深い専門性と計算機科学者との豊富な連帯経験
- 高田康民（東京大）STLS 理論の日本での specialist
- 中村和磨（九工大）RPA 計算の日本の specialist であり、プログラム実装のノウハウ共有
- 吉澤香奈子（理研）STLS 理論の均一電子ガス系への適用経験者であり、STLS 実装のノウハウ共有
- 重田育照（筑波大）波動関数理論の specialist
- 曽我部知広（名大）CCSD 法の数理アルゴリズムの改良

【サブ課題 B】

研究実施者：

- Iurii Nagornov（東京大）

Nagornov 氏は本プロジェクトでの雇用博士研究員である。化合物の固体・液体相転移の分子動力学計算による研究実績を持ち、サブ課題 B の目標である圧力誘起固体反応の記述技術開発の実施にふさわしいメンバーである。

(キャリアプランについて)

スキルアップの面については、Nagornov 氏は古典分子動力学法に関する経験を持つが、本プロジェクトを通して古典計算から第一原理計算への専門範囲の拡大が期待される。また技術開発成功の暁には大きな波及効果が期待できるため、適切な成果発表を通じて知名度の向上を図る。特に、協力機関である Skoltech(ロシア)のメンバーとは母国語による密接なコミュニケーションが可能であり、彼らとの連携研究を通してコネクションの拡大、ひいては母国におけるポジションの獲得も視野に入れる。

- 小杉太一（東京大）

小杉太一氏は本プロジェクトでの雇用博士研究員である。DFT/場の理論/波動関数理論の習熟者であり、サブ課題 A とサブ課題 B との共同研究を遂行する。場の理論、波動関数理論を融合した超高精度第一原理計算手法の開拓には最適の人物である。本プロジェクト目標達成時には、小杉氏の評価が高まっているのは必至と考えられ、その業績は小杉氏の将来のステップアップへの大きな後押しとなる。

連携研究者:

- 重田育照（筑波大）分子動力学法コード開発者
- 吉本芳英（東京大）分子動力学法コード開発者
- 清水克哉（大阪大）高圧実験のスペシャリスト
- 常行真司（東京大）第一原理計算手法全般に関する深い経験と知識、大型プロジェクト運営
- Artem Oganov（Skoltech、ロシア）構造探査アプリ「USPEX」開発者

・ 飯高敏晃（理研）ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」分担者
・ 石川孝洋（大阪大）ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」分担者
・ 辻本直人（東京大学）データ同化結晶構造探索法開発者

【サブ課題 C】

課題責任者がこれまでに取り組んでこなかった波動関数理論の量子ダイナミクスについては、孤立系において経験豊富な下記の四名の協力を仰ぎながら、課題を遂行する。

石川顕一（東京大）強光子場中電子ダイナミクスのスペシャリスト
・ 佐藤健（東京大）波動関数理論に基づく非線形電子ダイナミクスのスペシャリスト
・ 池町拓也（東京大）固体の強光子場電子ダイナミクスのスペシャリスト
・ 越智正之（大阪大）固体の波動関数理論のスペシャリスト

（７）必要計算資源

「京」の計算資源量　（単位：ノード時間/年）

	H28 年度	H29 年度	H30 年度	H31 年度
サブ課題 A	40 万	100 万	150 万	150 万
サブ課題 B	33.5 万	175 万	150 万	150 万
サブ課題 C	100 万	100 万	150 万	150 万
合計	173.5 万	375 万	450 万	450 万

「京」以外の計算資源量　（単位：ノード時間/年）

東京大学情報基盤センタースーパーコンピューティング部門(Oakleaf-FX FX10)

	H28 年度	H29 年度	H30 年度	H31 年度
サブ課題 A	5 万	5 万	5 万	5 万
サブ課題 B		3.5 万	2 万	2 万
サブ課題 C	5 万	5 万	5 万	5 万
合計	10 万	13.5 万	12 万	12 万

筑波大学計算科学研究センターCCS スーパーコンピューターシステム(HA-PACS, COMA)

	H28 年度	H29 年度	H30 年度	H31 年度
サブ課題 A	2 千	2 千	2 千	2 千
サブ課題 B				
サブ課題 C				
合計	2 千	2 千	2 千	2 千

東京大学大学院理学系研究科物理学専攻(非共同利用サーバ・常行研究室所属者向)

	H28 年度	H29 年度	H30 年度	H31 年度
サブ課題 A				
サブ課題 B	1.2 千	2.4 千	2.4 千	2.4 千
サブ課題 C				
合計	1.2 千	2.4 千	2.4 千	2.4 千

２．研究開発内容詳細

２－１．サブ課題 A. 複合相関マテリアルのための電子状態計算基盤 － DFT を超えて超高精度へ

（１）目的・意義

あらゆるマテリアルの物性はアボガドロ数個の電子の間のせめぎ合い（電子相関）によって引き起こされる。電子相関を精密に記述する計算理論の基盤構築は物性理論にとって常に最重要課題であり続けている。特に、極限環境（強相関電子系・超高圧・強光子場）下においては、現れる電子物性は（従来の DFT で求められる）弱相関基底状態のそれからは大きく変調され、金属結合性・イオン性・共有結合性のバランスも変わってくる。金属から半導体・絶縁体までを広くカヴァーする高精度原子論的シミュレーション手法の開発は不可欠である。サブ課題 A では、密度汎関数理論(DFT)の枠を超えて、凝縮固体に対する新たな超精密第一原理計算理論の開拓に挑む。具体的には、(i), 波動関数理論、(ii), 場の理論、さらにはそれらを融合した計算手法の開拓を世界に先駆けて行っていく。これにより、量子力学に基づいた第一原理計算のアプローチを飛躍的に拡充させることを狙う。これら目的はどれもポスト「京」という超並列計算機を用いて初めて達成しうるものであり、本計算手法は、これまで DFT では手の出せなかった難問に答えを出すポテンシャルを秘めている。第一原理計算手法の基盤開拓はあらゆる物性科学に影響をもたらすものであり、その意義は極めて大きい。

（２）実施内容

金属から半導体・絶縁体まで全域をカヴァーする精緻な計算手法開拓のため、半導体・絶縁体（エネルギーギャップを持つ物質）に対して高い記述能力を持つと考えられる波動関数理論を、金属に対しては場の理論の適用を行う。さらには、それら金属・絶縁体転移境界領域への手法の適用とその信頼性の評価を実験とを交えながら行っていく。具体的には以下のように研究を遂行し、速やかに論文・学会発表にて成果を国内外に向けて発信する。

(i), 精密波動関数理論の固体への適用。量子化学計算において Gold standard とも呼ばれている超精密計算手法である連結クラスター理論（CCSD; Coupled-Cluster-Single-Double）の固体物質への適用を行う。これにより、van der Waals 力の計算や、強相関電子系（具体的には遷移金属酸化物モット絶縁体）への適用を行い、計算結果と実験との比較参照研究を行う。その際、最新の EOM-CCSD(Equation-of-motion CCSD) 法を適用することにより、全エネルギーの考察のみならず（実際に ARPES 実験で観測される）一電子準位（バンド構造）の解析にまで踏み込む。凝縮固体において正確なバンド構造を計算する手法としては GW 近似が知られているが、通常自己無撞着ではなくワンショットで計算が行われるため、初期状態依存性が大きな問題になっている。また、電子相関の直接項のみを(RPA で)取り込んだ計算になっており、(このままでは取り込まれ

ていない）交換項に由来する電子相関の扱いが物理的に問題となっている。また、波動関数理論の固体への展開はこれまで極めて限定的であったが、近年急激な盛り上がりを見せはじめている。しかし、まだその有効性の比較や準粒子バンドの解析等はなされていない。本研究では、CCSD+EOM-CCSD 法を用いることにより、自己無撞着にバンド構造、さらにはサテライトピークを解析することができる。また、その有効性の検証を厳密解と比較する形で行う。これによる物性解析はサイエンスの観点のみならず、エンジニアリングの観点からも極めて重要なトピックスとなる。

(ii), 場の理論に基づいた超精密計算手法の開拓。STLS (Singwi-Tosi-Land-Sjolander)理論はこれまで一様電子ガス系に適用され、量子モンテカルロ計算にも劣らぬ、すさまじい全エネルギーの精度を有することが明らかとなっている。実際に、現実の金属中での電子密度と同程度の電子密度(rs=1～5 程度)をもつ一様電子ガス系に対して、STLS 理論は相関エネルギーを 3%のエラー以下で再現できている様子が報告されている。（よく知られた乱雑位相近似(RPA)では 30～60%の誤差。）しかし、これまで STLS 理論を非均一電子系や、実際の固体系に適用した報告は依然としてない。STLS 理論の優れた点として初期状態依存性が本質的になく、計算コストのオーダーは RPA と同程度であるという点がある。本サブ課題では、STLS 計算を孤立原子・分子系から強い電子相関を示す固体系に至るまで網羅的に適用し、その記述能力をチェックする。特に通常の DFT では記述が難しい van der Waals 力、バンドギャップの定量性、鏡像ポテンシャル、強相関物質、異常金属相の記述能力を確認する。

（３）目標・期待される成果

＜アウトプット成果＞

本サブ課題では固体の「基底状態」に焦点をしぼって研究を進めていく。固体の基底電子状態（さらにはそこから得られる``揺らぎ”の情報）にこそ、超伝導や新奇量子相に関する様々な情報が含まれている。信頼の出来る基底状態計算手法なしには、物性理論計算は進められない。これまでの DFT を凌ぐ、より信頼性の高い超精密な理論手法が渇望されている。本サブ課題の目的は、CCSD+EOM-CCSD 法や STLS 理論の固体系における有効性を明らかにすることである。

具体的成果目標としては以下を掲げる。

・平成 29 年度終了時

「xTAPP-STLS（仮名）」と「WaveX」の実装が終了する。超並列計算機用にアルゴリズムの選定とチューニングを行い、テスト計算としていくつかの小さなシステム・モデルに対しての適用を行い、振る舞いを見る。具体的には、厳密解と比較することにより、これら手法の精度を確認する。STLS に関しては、厳密解が解析的に求まる 1 次元 2 電子モデル系へと適用を行い、CCSD+グリーン関数法では孤立原子系・（比較的簡単な）周期系物質へと適用を行い、full-CI 法 (full-configuration interaction)の厳密解と比較することでそれらの適用限界を見定める。

・本格実施フェーズ終了時

「xTAPP-STLS（仮名）」と「WaveX」を超並列計算機上でチューンし、具体的な物質へと適用を行う。計算ターゲットとしては、従来の DFT では記述することが難しい強相関電子系・van der Waals 力・鏡像ポテンシャル・バンドギャップに対する信頼性・サテライトピークの再現性の確認・物性解明を行う。また、強相関電子系において DFT が抱える問題点を明らかにし、DFT の改良に対する示唆を与える。同時に、それぞれの適用結果を即座に論文とし、世界に向けて発信を行っていくことにより、世界を先導する成果を創出してゆく。実験との共同研究も同時に進める。

・　ポスト「京」運用開始 5 年後

より広範な物質群への適用を進める。信頼できる基底状態計算手法適用の結果、新奇強相関物質群への理解・高温超伝導転移温度予想・新奇超伝導体の機構解明・物質の非平衡状態への理解・励起状態の理解が期待される。

＜アウトカム成果＞

・ポスト「京」運用開始 5 年後

銅酸化物高温超伝導体等の基底状態計算から``揺らぎ”の情報を抽出し、超伝導密度汎関数理論と組み合わせることにより、「非」従来型超伝導体への第一原理からのアプローチの展開が期待される。さらには純理論計算からマテリアル設計・新物質探索がよりいっそう活発に行われる。

・ポスト「京」運用開始 10 年後

信頼できる計算結果の存在は DFT の発展をも促すものと考えられ、本研究課題で得られた結果を参考として、精度を実用レベルに保ちつつ計算量を減らした近似計算アルゴリズム・コードが開発される。計算物質科学にも大きな波及効果が期待される。

（４）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと

STLS 理論の計算コストを見積もると、RPA の誘電関数計算部分がボトルネックであることがわかる。ボトルネックになっている RPA 計算の部分だけを考えても、以下の通りである。RPA の誘電関数$\chi_{GG'}(\boldsymbol{q},\omega)$ をエネルギー（ ω ）依存性まで含めて計算しようとすると、計算コストは$N_\omega \times {N_k}^2 \times {N_b}^2 \times {N_{pw}}^2$となる（ここで、$N_\omega$ はエネルギー軸の刻み数、N_k は k 点数、N_b はバンド本数、N_{pw} 平面波基底数である）。実際の系では、$N_\omega = 300$，$N_k = 100$，$N_b = 1000$，$N_{pw} = 10^5$ 程度を考えており、その計算コストは ω に関しての 1 点計算（$N_\omega = 1$）においてさえ、物性研スパコン(SGI Altix ICE 8400EX)の 4100 並列を用いても 43 時間（ 2×10^4ノード時間）かかる（研究協力者：中村和磨氏）。さらに、ωに関する誘電関数を得ようとすると 100 万ノード時間程度と見積もられる。さらに STLS 理論で全エネルギーを見積もる為にはこの計算を 5 回程度反復しなければならない。つまり、1 つの target 物質当り 500 万ノード時間と見積もられ、京では至難の業である（フル占有をしたとして 2 日間程度に相当）。しかし、ここで強調すべき点として、この誘電関数計算は超並列化向きの数理アルゴリズムを有していることであり、超並列

計算機のパフォーマンスを最大限に引き出し得ることを意味する。k 点に関する 2 重の和、ω に関する演算に対して並列化をかけることにより、RPA の誘電関数 $\chi_{GG'}(\boldsymbol{q},\omega)$ のエネルギー(ω)依存性まで含めたデータを得ることが出来る。ポスト「京」では百倍の計算速度をもつと考えると、超並列計算を実行することにより、STLS 理論を様々な物質に「網羅的に」実行することが初めて可能となる。

CCSD+EOM-CCSD 法に関して、計算コストは$N_{band}{}^6 \times N_k{}^4$でスケールする為、最も簡単な Si バルクの場合、4x4x4 の k 点メッシュに対し、非占有軌道を 4 バンドまでで打ち切ったとしても、並列化効率を 10%として試算すると、1 万ノード時間を有する。強相関電子系やファンデアワールス系においてバンド数が 3~4 倍になることを考えると、1000 万ノード時間程度（並列化効率を 10%と仮定）になるものと試算される。これはスパコン「京」を用いてでさえ 4 日間かかる計算となる。本研究では、計算アルゴリズムの最適化と、非占有軌道に対するくりこみの手法、そしてポスト「京」コンピュータを最大限に使うことにより初めて実現しうる計算手法である。また、実際の計算において深刻になる問題としてメモリの問題もある。具体的には、Si バルク 4x4x4 の k 点メッシュにおいて非占有軌道を 4 バンドまでで打ち切ったとしても、計算に必要と見積もられるメモリ量は最低でも 400GB にも及ぶ。計算を実現する上では、メモリをノード上に分割して計算中データを保持する必要がある。具体的に、計算時間の最大のボトルネックとなる箇所は EOM-CCSD において現れる超巨大線形連立方程式の求解であるが、従来法のアーノルディ法に加えてシフティッド-クリロフ部分空間法（研究協力者：曽我部知広氏）を適用することを考える。計算科学者との連携により、超並列計算機に最適化された数理アルゴリズムの開発・実装により初めて実現が可能になる。

（５）実施体制

本サブ課題では、波動関数理論・場の理論の適用とその融合を行う。そのため、両者に関する高い専門性が要求される。サブ課題 B の雇用博士研究員である小杉太一氏（東京大）は DFT/場の理論/波動関数理論の習熟者であり、本サブ課題実施にも大きく携わってもらう。小杉氏は本サブ課題の全テーマに関係し、CCSD 法の実装・適用・アルゴリズム開発と共に、STLS 理論の実装・適用を行う。しかし、全てを小杉氏 1 人で担当するのは負担が大きいため、CCSD の一部のコード整理等には西紘史氏（平成 28 年度、東京大）・古川頼誉氏（平成 28・29 年度、東京大）の補助からなる研究実施体制をとる。さらに、STLS 理論の専門家である高田康民氏（東京大）・吉澤香奈子氏（理研）からなる研究協力体制とり、そこに（STLS 理論の実行に必要な）RPA 計算の専門家である中村和磨氏（九工大）に加わっていただき、STLS 理論実行に関してのノウハウ共有・結果解析等をスムーズに遂行していけるサポート体制をとっている。波動関数理論の CCSD 法に関しては、専門家である重田育照氏（筑波大）からの研究協力を得る。計算科学者としては、曽我部知広氏（名大）に研究協力者として加わっていただき、数理アルゴリズムに関してアドバイスを得る。本サブ課

題において、計算機科学者や実験家との議論が不可欠になるものと予想されるが、経験豊富な押山淳氏（東大、平成 30 年度より名大）に協力研究者・本サブ課題のアドバイザーとして加わっていただき、万全の体制をとっている。

また、サブ課題 B と共同で、分散力を第一原理的に取り込んだ原子間ポテンシャルの開発および応用を進める。これにより DFT では記述できなかったファンデアワールス物質における相変態シミュレーションをフル第一原理計算で実現する。さらにサブ課題 C と共同で固体における配置の選択を行い、実装アルゴリズムにおける情報交換を進めてゆく。

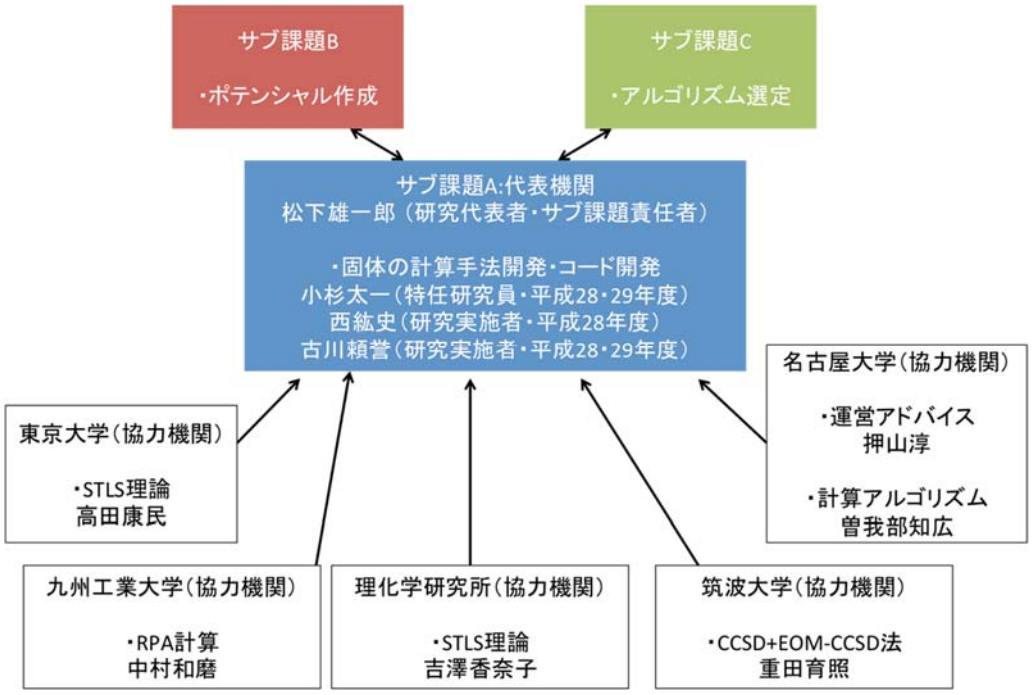


図 2 サブ課題 A の研究体制

２－３．サブ課題 B : 極限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション ― 室温超伝導に向けて

（１）目的・意義

本課題の目的は圧力下における新超伝導相探索および Tc 観測値更新の実験的試みを助けるシミュレーション手法の確立にある。そのために原子自由度を露わに扱った固体-固体転移のシミュレーション手法を開発する。室温超伝導は基礎・応用科学両面にとって究極の目標であり続けている。近年硫化水素が超高圧下で転移温度 200K の高温超伝導を示すことが分かった。この超伝導は圧力下で $3H_2S \rightarrow 2H_3S+S$ という反応により析出する H_3S がもたらす。硫化水素における発見は、水素化合物の加圧と相変態による高 Tc 発現という有望な指針を示唆する。実際、理論シミュレーションの段階では 200K 程度の Tc をもたらす水素化合物高圧相は他にも提案されている。しかし、実験室での実現ま

で至ったのは硫化水素のみである。予言された超伝導相を実現するにはどうすればよいだろうか？実験だけから超伝導発現を目指すアプローチは運の要素が大きい。圧力下での構造変化を見る手段が常圧下に比べ限定される上、加圧セルが破壊されやすく繰返し実験に向かないためである。超伝導相へたどり着く方法(温度・圧力の調整手順)を探すための計算手法があれば室温超伝導達成の試みは大きく加速されるであろう。

圧力印加による超伝導相探索は現状世界中で活発に行われているが、その典型的な方法は遺伝アルゴリズムなどによる安定構造の探索と、発見された構造各々の自由エネルギーを比較するにとどまる。しかしこのアプローチでは、発見された構造が常圧相と大きく異なる組成・局所構造を持つ場合、そもそも実験によりその相に到達出来るのかという問いに答えることができない。この問題に取り組むには圧力印加による固体・固体構造転移をシミュレートする手法が必要である。原子スケールの構造変化を取り扱う典型的手法である分子動力学法は、取り扱える時間スケールは未だ ns オーダーに留まっており、分・時間・日などの時間スケールで起こる現象である固体・固体転移への応用は不可能である。自由度の粗視化によりこの点を克服する試みは近年進みつつあるが、構造転移の過程で原子がどう動くのかという情報が抜け落ちてしまう弊害は未知である。仮に粗視化を行わないシミュレーションが実現すれば、これは世界的に見ても独自性がありかつ潜在的な発展性の高い成果となる。

手法の応用対象として本サブ課題では圧力誘起超伝導転移をとりあげるが、固体・固体転移のシミュレータはより広範囲の現象に応用可能である。例えば常圧における鉱物や結晶材料には、エネルギーの観点から言えば最安定でないものは多数存在する。このような準安定構造の物質の寿命を調べることが可能になる。他にも固体材料の高圧合成、イオン伝導、水素吸蔵など、産業応用に直接結びつく現象も手法の応用範囲であるため、これらが絡む材料を実際の実験を行うことなく探索することができるようになる。以上のように産業の観点からも波及効果は大きい。

（２）実施内容

化合物固体に圧力をかけた際の相変態過程を調べるための第一原理計算パッケージ「ABSSol（仮名）」を開発する。具体的には「京」向けに最適化された分子動力学コードを基礎として第一原理ポテンシャル計算およびレアイベント・サンプリング法を実装する。「ABSSol（仮名）」は次の機能を具える：

i)電子を量子力学的自由度としてあらわに取り扱う：原子間結合の組換えが記述できる

ii)ミクロな結合の組換えの発生確率を評価できるようにする：分子解離・核形成は結合組換えというレアイベントにより進むが、これが精確に表現できるようになる

本計画で確立を目指す中核技術は固体-固体転移のシミュレーション上での実現およびその加速である。この部分の開発を効果的に進めるために、初期は経験的ポテンシャルを用いた古典分子動力学法にもとづきレアイベントサンプリング法の実装および並列化を進める。その後、「京」で開発済の第一原理電子状態計算パッケージ「xTAPP」「RSDFT」の分子動力学ルーチンとサンプリングルーチンの結合を行う。これにより出来たコード群を「ABSSol（仮名）」プロトタイプとする。

応用段階では「ABSSol（仮名）」を用いて水素化合物固体において起こる分子解離・超伝導相核形成のシミュレーションを行う。まず具体的題材としては硫化水素を取り扱う。硫化水素が圧力下で発現する結晶相は加圧・冷却の手順に大きく依存する。ある特定の温度以上で加圧を行うと水素分子が解離してしまう。一方低温のまま加圧を続けても反応障壁を乗り越えられない。どちらの場合も高温超伝導相は析出しない。本課題では広範囲の温度・圧力領域について水素分子の解離レートおよび超伝導相の核形成速度をシミュレーションにより評価し、前者が起こりやすい部分、後者が起こりにくい部分を温度-圧力平面にマッピングする。実験データとマップを比較し整合性を検証する。また過去超伝導相が予言されているが実験で観測されていない水素化合物についてマップを作成し、実験的実現のための最適経路を提案する。

研究開発と並行して既存の結晶構造探査アプリを用いての新超伝導相の探索も他機関クラスタで随時進め、最適実験経路と合わせた高確度な新高温超伝導体の提案を目指す。

（３）目標・期待される成果

＜アウトプット成果＞

・平成 29 年度終了時

固体相変態のシミュレーションプログラム「ABSSol（仮名）」の、基礎理論とアルゴリズムの定式化、および古典分子動力学コードを基礎としたプロトタイプの開発を完了する。具体的には次の機能を備えたコードを実装する i) 典型的物質における低温での構造変化をレアイベントサンプリング法で実現する ii) 実現した構造変化過程の実際の反応速度を見積もる。原子間ポテンシャルとしては現象論的ポテンシャルと、第一原理計算を参照した半現象論的ポテンシャル(電子雲の効果を部分的に取り込める)を利用可能にする。また簡単な物質(分子・単原子固体)に対する応用結果を論文としてまとめ、投稿する。固体については、広い座標空間から核形成へのパスを効率的に探索する方法を詳しく検討する。

この時点で確立する成果は、本サブ課題での必要性のみならず、より広い研究分野にとっての有用性も高いと考える。具体的には、コードの基礎となるアルゴリズムは次のよ

うな問題に対する処方箋を与えるものである: 1) 複雑な物質における構造変化のパスを、反応座標のような経験的仮定に頼ることなく非経験的に探索する 2)物質が熱揺らぎのもとで断続的な構造変化を示すような状況は、熱平衡のような仮定が適当でない場合がありえるため、このような仮定を用いず構造変化の実現率を定量化する。 3) 物質の構造変化過程は高温と低温で異なる場合がある(前者はエントロピーの効果を伴う)が、熱揺らぎの小ささゆえに稀にしか起こらない後者の過程を実現し、構造変化過程の温度依存性を議論可能にする。これらは現代の分子動力学シミュレーションが共通して直面する問題について、全く異なる視点から解決策を与えるものである。

・本格実施フェーズ終了時
「ABSSol（仮名）」に電子自由度の効果を取り込む精度をさらに向上し、また複雑な単位格子を持つ化合物固体にも適用可能なよう計算コスト削減・並列化効率向上を実現する。前者については半経験的ポテンシャルを作る際に参照する電子状態計算の精度を、サブ課題 A の知見も参考としながら向上させる。またより精密な計算アプリとして、xTAPP や RSDFT など「京」でチューンされた第一原理分子動力学法コードとのレアイベントサンプリングコードの結合も完了する。この段階のコードを関連ドキュメントと共に外部公開し、基礎科学・産業など分野によらず利用可能な状態にする。

並行して次のような結果を論文として報告していく : (1) 基礎アルゴリズム・実装技術・開発アプリのパフォーマンスベンチマークを計算物理分野の論文誌へ投稿する (2) 圧力下における水素化合物にコードを応用し、硫化水素といった既知の圧力誘起超伝導体の相変態過程を解明する。(3) 理論的に圧力誘起高温超伝導相が提案されているが実験で実現されていない物質について、コード応用を通して実験による到達方法(どのように加圧・加温を行うかなど)を導き出す。

本格実施フェーズ終了時に期待できる成果物は、第一に固体-固体転移の反応パスと反応速度を粗視化無しに取り扱う一般的シミュレーション法およびアプリである。基礎科学の観点からは、これは従来時間スケールの観点から不可能だったシミュレーションを可能にするものであり、これまで未解明であった様々な固体相の分離・形成過程を明らかにするために有用である。産業への応用の観点からは、高圧合成プロセスや水素吸蔵など、材料開発に直接的に関係する固体反応現象は数多く、開発アプリを用いれば実際の実験を行うことなくこれらの現象をシミュレート出来るようになり、材料開発の効率化に寄与すると期待する。また本サブ課題で取り扱う応用例としては水素化合物における圧力誘起超伝導転移をとりあげる。この応用から得られる知見の基礎学問的な意義としては、反応前後の自由エネルギーの比較に基づく従来の圧力誘起構造転移の議論の枠組みを超えた「反応パスを考慮した議論」の重要性が明らかになるものと期待する。さら

に実験的に未実現の超伝導相について、どのように加圧手順をデザインすれば実験による実現が可能か(あるいは不可能か)という提案を与えることが出来る。理想的に事が進めば、この際提案された手順にもとづき新たな超伝導が実現されるが、より重要なのは「今後も利用可能」な圧力誘起超伝導の系統的探索手法が確立するという点である。

・ポスト「京」運用開始 5 年後
本格実施期間中から実験との協働を継続して進め、計算により提案された圧力誘起新規超伝導相の到達法を検証する。この過程で幾つかの提案については実際に超伝導相が観測されると期待される。さらに前述の通り、「ABSSol(仮名)」の適用対象は超伝導相形成だけではなく、より一般の固体反応もその範疇となるため、水素吸蔵・リチウム電池・圧力下結晶成長など、より広い現象へのアプリの応用、その結果を通したアルゴリズム改良・拡張といった進展が期待できる。このように、固体材料開発を効率化するシミュレーション手法として様々な分野で寄与すると期待される。また、その応用結果を通して、固体反応現象の基礎的機構の理解も進むと思われる。

＜アウトカム成果＞
・ポスト「京」運用開始 5 年後
圧力下水素化合物において実現する超伝導転移温度が更新される。また超伝導相形成以外の様々な固体反応にも「ABSSol(仮名)」の応用が進み、水素吸蔵・イオン電池などのための新たな材料が計算物理主導で提案、基礎研究レベルでのハイパフォーマンスが確認される。さらに、「ABSSol(仮名)」の応用例を参考として、精度を実用レベルに保ちつつ計算量を減らした近似計算アルゴリズム・コードが開発される。
・ポスト「京」運用開始 10 年後
「ABSSol(仮名)」応用による数値実験から実験による検証というプロセスから提案された材料の中から実用可能なものが様々見つかる。集積された計算例にもとづき、従来現象論的であった固体の核形成理論、反応論に微視的自由度を取り入れて拡張するというトレンドが形成され、基礎理論レベルでの刷新を引き起こす。

（4）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと
「京」で最適化された第一原理分子動力学計算アプリは 1000 原子程度の系を 1 ステップ(～0.1fs)時間発展させるのに 1 分程度を要する(RSDFT、 xTAPP; 8000 ノード並列の場合)。古典分子動力学計算にとどまれば同じ計算時間で 100-1000 倍程度のサイズを扱うことは出来る。しかし本課題の対象である固体の相分離・核形成は ns—s という極めて長い時間スケールで進み、システムサイズではなく時間方向のスケールアップを要する。既存の分子動力学アルゴリズムで愚直に時間発展させてこれを再現するのは「京」はおろかポスト「京」でも不可能である。このようなスケールアップを実現する方法の

一つとしてマルコフ状態モデルなど粗視化の試みは存在するが、原子自由度の消去による影響を評価するのは容易ではない。

原子自由度を取り扱いつつ時間のスケールアップを行うために、本サブ課題はポスト京による大並列計算とレアイベントサンプリングによる方法を追求する。予備計算によれば、異なる初期値の分子動力学シミュレーションを並行して実行し、その物理量やポテンシャルにバイアスをかけたサンプリングを行うことで、ほんらい長時間発展を要するレアイベントの生成が可能である。一つずつでも「京」の利用が必要なサイズの分子動力学シミュレーションを 10^2--10^5(あるいは精度向上のためにそれ以上)並列して実行することはポスト「京」により始めて可能となる。

（５）実施体制

計画の調整および研究開発の実行は本サブ課題分担者明石と、問題にフィットした専門性を持つ特任研究員の共同体制により進めていく。共同実施者として分子動力学法にもとづく固体の相転移に関する研究経験を持つ Iurii Nagornov 氏[前職・トリヤッチ州立大(ロシア) Senior Researcher]をポスドクとして雇用(2016/11/01 着任)した。以上の２名を主たるプレーヤーとする。

明石および Nagornov は各々安定(準安定)構造における固体の第一原理計算および古典分子動力学シミュレーションに関する専門性を持つ。しかし本サブ課題の目標は異なる固体相の間の遷移の第一原理的記述であるため、両者の中間領域に関する専門性が要求される。この点をカバーすることを目的としたアドバイザーによるサポート体制が構築されている。第一原理分子動力学計算に関するコード開発者である吉本芳英氏(東京大学)、重田育照氏(筑波大学)がコード開発アドバイザーとして参画する。さらに計算物理学の大型プロジェクトに関する豊富な運営経験を持つ常行真司氏(東京大学)の助言も仰ぐ。

固体相の間の遷移については近年大きく進歩した結晶構造探査法領域との間でよいコミュニケーションが期待される。この方向の発展性を見込み、第一原理構造探査アプリの草分け的存在である USPEX の開発者 Artem Oganov もアドバイザーとして擁する。高圧下構造探査の応用としては、ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」サブ課題 C「地球惑星深部物質の構造と物性」との相乗効果を見込み、飯高敏晃氏(理化学研究所) 、石河孝洋氏(大阪大学)とも連携する。開発期間スタート後、データ同化に基づく結晶構造探索手法開発を発表した辻本直人氏(東京大学)を連携グループに迎えた。

アプリ開発中期～後期においてシミュレーション結果の検証および新構造の実現のために実験家とも密接な情報交換を行う。本サブ課題では超高圧下での結晶構造解析および電気抵抗測定に関する世界的第一人者である清水克哉氏と情報交換を行う。

雇用ポスドクについては、スキルアップの観点からはこれまでの古典計算から第一原理計算への専門範囲の拡大が期待できる。また研究成果については大きな波及効果が期待で

き、適切な成果発表を通じて知名度の向上を図る。特に、協力機関である Skoltech のメンバーとは母国語による密接なコミュニケーションが可能であり、彼らとの連携研究を通してコネクションの拡大、ひいては母国における良いポジションの獲得を目指す。

また他サブ課題との連携により，複合的な問題についての成果創出も図る．具体的な問題として，サブ課題 A の高精度電子状態計算手法の活用により，分子間力などを第一原理的に取り入れた原子間ポテンシャルの開発および，分子性結晶の構造転移の問題への応用を目指す．サブ課題 C との協同課題としては，相変化メモリ材料の光誘起構造相変態の機構解明を掲げる．

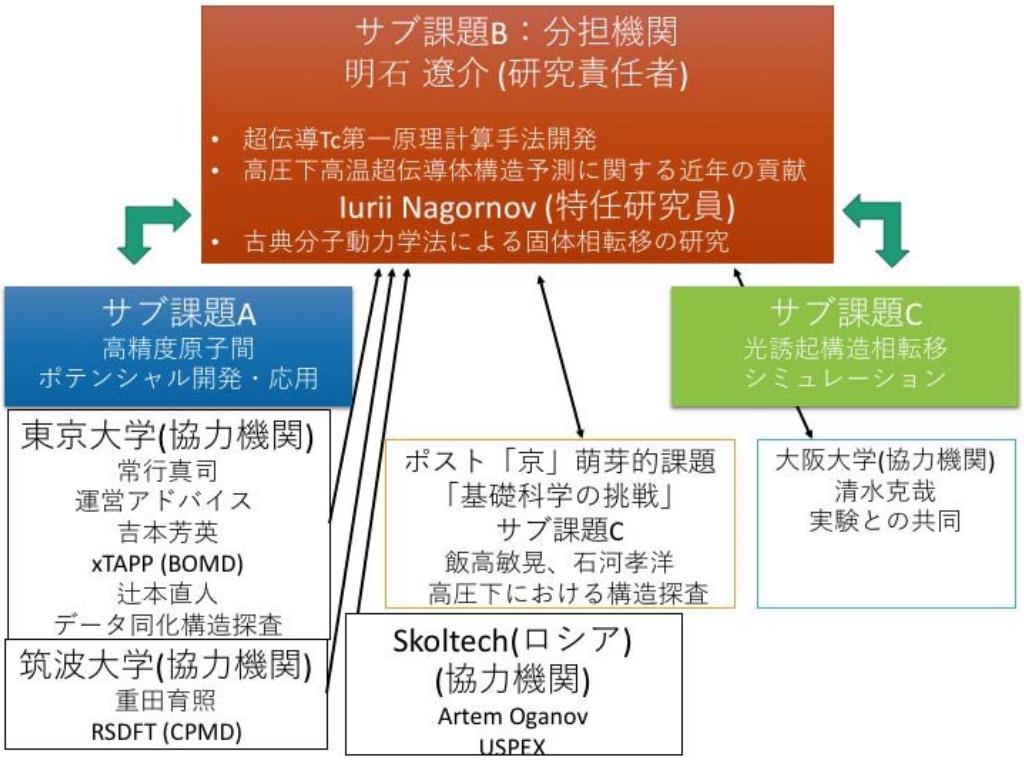


図 3 サブ課題 B の研究体制

２－３．サブ課題 C. 強光子場中マテリアルの原子論的シミュレーション － 波動関数理論から臨む光と物質の相互作用

（１）目的・意義

最先端の光電場波形成型技術を用いることで、人類の観測可能な最短の時間解像度はフェムト秒を切り、アト秒に迫りつつある。これまでその重要性が認識されつつも、間接的にしか観測することが出来なかった電子間散乱に起因する物質の緩和過程は、まさにアト秒の解像度を手に入れることで初めて露わに観測することが可能になる。こうした物質中電子の超高速ダイナミクス、そしてそこに決定的に影響を及ぼす多体効果の直接観測、さらにはそれらを駆使した超高速電子マニピュレーションがアト秒光科学の究極の目標の一つである。専ら物質科学の対象は電子基底状態と熱励起状態であったが、光科学により励起状態の量子多体ダイナミクスが露になる事が期待されている。

こうした現象の理解に、原子論的シミュレーションの一つである時間依存密度汎関数理論(TD-DFT)が極めて有効なことが本サブ課題責任者とその共同研究者により示されてきた。しかしその反面、レーザー加工等を念頭に置くような非常に高強度な電場を物質に照射した際に、電子間散乱およびそれにともなう緩和過程が TD-DFT には決定的に欠けていることも、同様にサブ課題責任者により実験結果との入念な比較から示されてきた。本課題の目的は TD-DFT を超えて、電子相関/電子衝突を適切に記述する第一原理理論に基づく理論的枠組みを開発・応用することで、こうした現象のメカニズムを微視的な観点から明らかにすることである。固体を対象とした時間依存波動関数理論の適用例は未だなく、本課題により世界で初めてその結果を得る。本課題の遂行により、物質科学における最重要課題の一つである電子の多体効果の理解が深まるとともに、レーザー加工といった高強度レーザーを使った応用研究の学理の深化が期待できる。

（２）実施内容

本課題では、より小さな計算コストで電子相関を取り込む事を目指した、固体を対象とした時間依存の多体波動関数理論に基づく理論的枠組みを開発し、数値計算を遂行する。同理論としては電子相関を効率よく取り込めることが石川・佐藤(協力機関に所属)によって示された TD-CASSCF 法を基礎に置き、計算精度と計算コストのバランスが取れた近似手法を TD-MCSCF の枠組みの中で開発する。本課題は課題責任者の篠原康が全業務を遂行する。

調査・準備期間にはベースコードとなる ARTED(https://github.com/ARTED)を基に第一原理ハミルトニアンにたいする TD-MCSCF 法を実装した ATTOMCSCF の開発に取り組む。平行して小規模モデル系に対して、TD-MCSCF 法を実装した mATTOMCSCF の計算を進め、計算精度と計算コストを両立する近似手法、および高効率アルゴリズムの模索を行う。本格実施期間には ATTOMCSCF で小規模な京に対して実験と直接比較できる条件で計算を進めると共に、大規模系に適用するための近似手法の開発を行う。

実験と直接に比較できる計算では、様々な光電場波形に対する固体の時間発展シミュレーションを行う。電場強度、振動数を系統的に変えた光電場波形に対してシミュレーションを行い、固体の非線形光学応答を調べる。特に電子間散乱に伴う緩和過程を調べるために、一体縮約密度行列の非対角要素から緩和の時定数とそのメカニズムを明らかにする。

（３）目標・期待される成果

・平成 29 年度終了時

ARTED をベースに、三次元固体に対して多配置波動関数理論に基づくアプローチを実装した ATTOMCSCF、及びそのプラットフォームとなる小規模模型固体に対しても同じアプローチを実装した mATTOMCSCF の開発を行う。mATTOMCSCF で要素的な技術開発を行い、そこで得られた知見を逐次 ATTOMCSCF へと反映させていく。

模型固体においてすら、固体励起状態に対する時間依存波動関数理論によるアプローチは現状本プロジェクトが世界初であるため、模型固体を対象とする mATTOMCSCF の遂行そのものが基礎科学的に重要な意味を持つ。mATTOMCSCF を用いて、注目している現象毎にどういった配置が最も寄与しているのかを調べ、多配置波動関数理論のコンテクストで量子ダイナミクスに表れる多体効果を理解する。これらの知見を用いて少ない配置で精度よく計算が遂行できる配置間相互作用理論の構築に取り組む。

これらの知見を用いて ATTOMCSCF を開発する。ATTOMCSCF については、特にその基本エンジンとなる、数百万個の FFT 計算を数千ノードで遂行する並列化アルゴリズムの開発とチューニングに取り組む。

・本格実施フェーズ終了時

mATTOMCSCF を用いた世界初の時間依存波動関数理論の固体への適用結果を論文として出版する。また、mATTOMCSF を用いて開発した配置間相互作用理論の結果を論文として出版する。

三次元現実系における緩和時定数を ATTOMCSCF を用いて定量的に評価し、緩和過程メカニズムの統一的な理解を、論文にまとめて報告する。本課題の遂行に伴って副次的に得られる理論、及びアルゴリズムについても計算科学的な観点から論文にまとめる。論文に報告後 ATTOMCSCF、及び mATTOMCSCF はドキュメントと共に Github 上等で公開を行う。

平成 29 年度終了時に、ATTOMCSCF の基本エンジンとして、数百万個の FFT 計算を数千ノードで遂行する並列化アルゴリズムが開発されている。この開発事項の副産物としてハイブリッド汎関数を用いた TD-DFT と TD-HF が遂行可能となる。前者は TD-DFT の枠内ではあるものの、バンドギャップの精度が高いことが知られている。一方、非線形電子ダイナミクスへの適用例は一例しかなく、その系統的な励起状態の調査はなされていないため、その系統的な調査に取り組み、論文にまとめる。また、TD-HF は現実物質の記述の精度は

TD-DFT に著しく低いことが知られているが、電子・正孔対相互作用を含んでいること、多配置波動関数の観点から基礎的に重要であるため、並行して系統的な電子ダイナミクス計算に取り組み、その定量的評価に取り組む。本計算は本プロジェクトで得られる計算資源では全く足りないため、「京」の一般利用課題にて計算を遂行し、本フェーズ終了までに論文としてまとめる。

・ポスト「京」運用開始 5 年後

小さな計算コストで定量的な電子間散乱・緩和過程を記述する高効率電子ダイナミクスシミュレーターを、本課題で遂行する多配置相互作用理論での知見をもとに開発する。この軽量高精度シミュレーターにより、より広範のパラメーターを探索することが可能になり、光科学を原子スケールから明らかにし、光工学を原子スケールの情報からデザインする道が拓かれることが期待される。

＜アウトカム成果＞

・ポスト「京」運用開始 5 年後

i)本課題遂行の中で培った高効率解法・高精度近似をもちいて、複雑な物質における緩和過程の定性的・定量的評価 ii)高付加価値レーザー加工を例とする強光子場を用いたマテリアル制御のシミュレーター開発と同シミュレーターを用いた現実のマテリアル制御過程への貢献 の二点が期待される。

・ポスト「京」運用開始 10 年後

固体の強光子場現象の理論シミュレーションの先取権が得られること、国内の実験家との綿密な共同により、日本発の強光子場科学、およびその学理を通じた応用研究・産業応用の戦略的進展が期待される。

（4）「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと

TD-MCSCF は時間依存 Hartree-Fock(TD-HF)方程式と類似の構造をしており、計算時間の多くが交換項と呼ばれる項の計算に費やされる。固体において、交換項は FFT で数値的に評価される。本課題では並列環境に分散して確保した配列同士の積に対する小規模かつ多量の FFT を行う必要があり、並列化には工夫が必要とされる。本計算が TD-DFT との計算コストの観点からの主要な差であり、典型的に数千倍の計算コストが要求される。計算すべき独立な FFT の数と通信すべきデータセットの数の比は典型的に 2000 倍あり、適切な通信アルゴリズムを実装することにより、通信を隠蔽し高い並列化効率を達成することが期待できる。本節では並列化効率は 100%であるとして、計算コストを見積もる。

東大物性研の旧 system B(kashiwa)で本課題のベースコードである ARTED 内にある交換項に対して求めたベンチマークから、「京」での TD-MCSCF の交換項に必要とされる計算時間を見積もると、現実的な固体 Si の計算パラメーター(活性バンド数：8 本、k

点サンプリング：2048 点、時間ステップ数：10000)で 20 万ノード時間となる。本課題では配置として二電子励起配置まで考慮するとしてこの 10 倍程度の総計算時間を見積もると、目標とする計算については 200 万ノード時間が一つの電場波形に対する要求計算コストとなる。

200 万ノード時間は概ね「京」を完全に 24 時間占有する計算コストに等しく、「京」を用いることで、本課題の計算は現実的な計算時間で実行することができる。しかし、本課題で遂行する研究は、複数の電場波形に対しての系統的な調査を経ることによってはじめてその理解ができるものであり、一パラメーターにおける計算の遂行で完結するものではない。したがって、先の見積もりの数十～百回程度の計算資源(数千万～一億ノード時間に対応)が課題の遂行には不可欠で、ポスト「京」の計算資源が必要とされる。

（５）実施体制

サブ課題 C 責任者である、篠原康が本サブ課題にあたる全ての委託業務遂行にあたる。本責任者は固体の強光子場現象に継続的に取り組んでおり、必要な計算手法の開発、及びコードへの実装に取り組んできた。特に本研究でベースとする ARTED コードの開発者の一人でもある。

サブ課題 A とサブ課題 C で用いる手法は似通っており、特に計算効率を律するアルゴリズムの選定においては共有事項が多くなる事が予想される。密接に情報をやり取りし、本課題の効率的な推進に努める。

サブ課題 B とサブ課題 C では、共同して励起状態を介した相変態のメカニズム解明に取り組む。光誘起構造相転移を理解する上で重要になるのはトリガーとなっている電子励起過程と引き続く反応経路の解明である。前者と後者をそれぞれサブ課題 C とサブ課題 B が担当し、マルチスケール・マルチフィズィクスの包括的な理解に取り組む。

協力機関の東京大学の佐藤健氏、石川顕一氏には TD-MCSCF 一般と、強光子場現象への適用事例についてアドバイスを求め、本サブ課題遂行に協力して頂く。同大学の池町拓也氏には固体の強光子場現象とそのシミュレーションの経験から、本サブ課題で調べるべき現象・物理量についての議論を通じて協力を仰ぐ。協力機関の大阪大学の越智正之氏には、固体の波動関数理論とそのコードへの実装経験から、本サブ課題で開発する理論とコードについてアドバイスを求める。

ポスト「京」重点課題⑦「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」サブ課題 B 光・電子融合デバイスと、特に技術面での密接な連携を図る。特に本課題業務参加者の矢花一浩氏、植本光治氏等と共同で開発している SALMON-TDDFT(http://salmon-tddft.jp/wiki/Main_Page, 旧 ARTED、旧 GCEED)は「京」でもそ

の高いパフォーマンスが示されている。SALMON-TDDFT の共同開発体制を通じて、密接に情報交換を行う。

研究責任者が参画しているコヒーレントフォトン技術によるイノベーション拠点(COI-ICCPT, http://www.ipst.s.u-tokyo.ac.jp/iccpt/)では日常的にレーザー加工を目指した固体の強光子場現象を調べている実験家との接点があり、頻繁に情報交換をしている。この場を通じて、理論シミュレーションへの実験家からのフィードバックのみならず、実験家への提案など双方向の共同体制を図る。

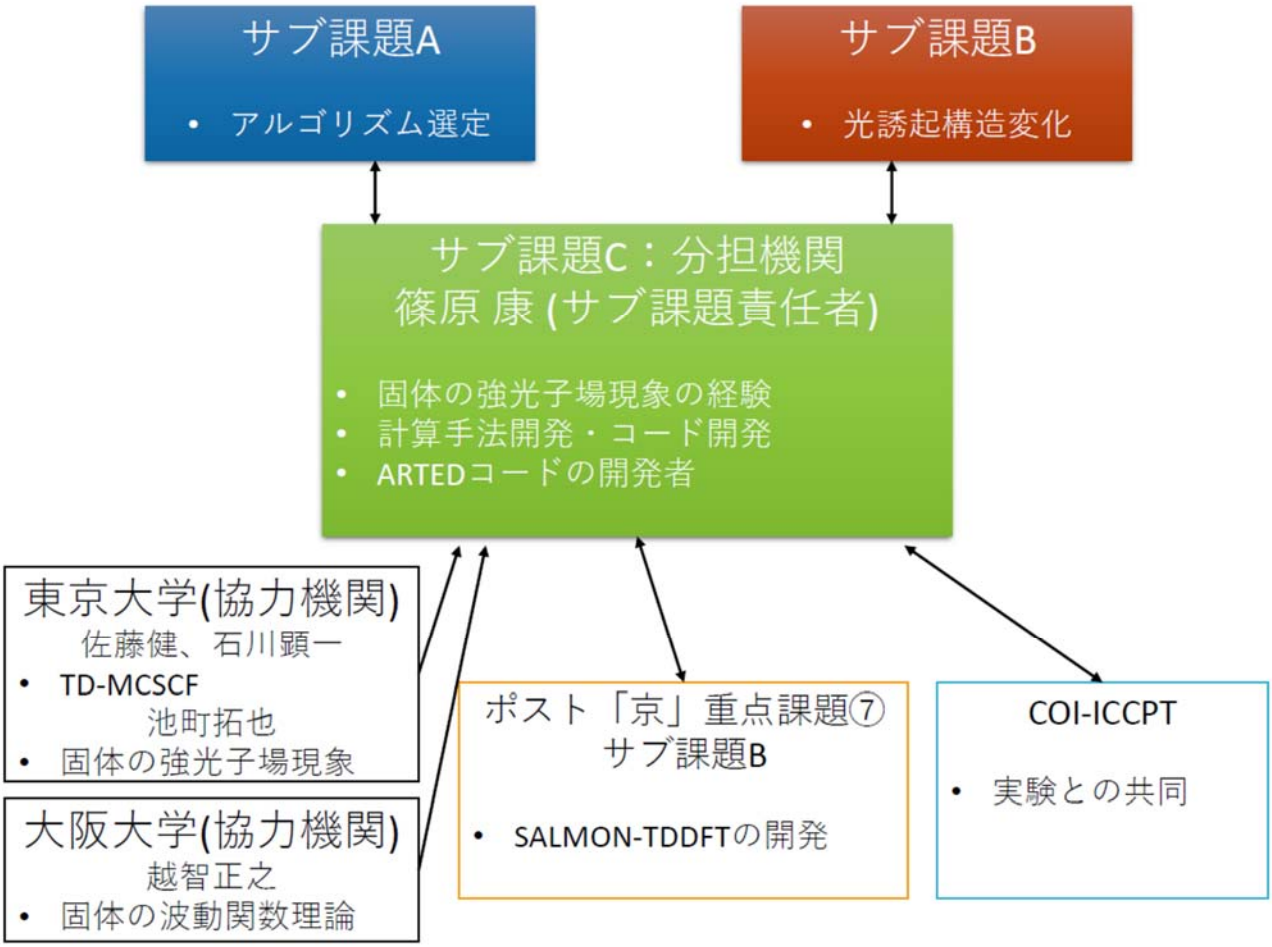


図 4 サブ課題 C の研究体制

３．採択時の留意事項への対応状況

留意事項 1:サブ課題 A で、CCSD 理論と STLS 理論をどう統合させるのか

CCSD 理論は絶縁体・半導体に対して良い近似となるものと予想される。一方、STLS 理論は金属に対して良い近似となると考えられる。サブ課題 A の目的としては、金属から半導体・絶縁体まで全域をカヴァーする精緻な計算手法開拓であり、それぞれの両極限の物質に対し信頼できる手法を確立・確認・報告した上で、金属絶縁体転移近傍の電子物性（物性理論最大の難問の一つ）に対しての記述能力のチェックを実験との比較参照を行いながら進めていく。さらには、半導体に対する STLS 理論、半導体・絶縁体に対する CCSD+EOM-CCSD 法の記述能力の評価も同時に行っていく。すでにサブ課題 A の計画の方には、この点を明らかにして盛り込んだ。

留意事項 2:本プロジェクトで雇用する研究者（ポスドク等）の将来のステップアップまで見据えた登用の計画について記載

「１－（６）実施体制」に詳細を記述

４．中間評価における指摘事項への対応状況

(1). 課題全体として達成すべき成果を明確にするとともに、その成果実現に向けた定量的・定性的な目標（年間目標及び最終目標）を明確にすること。

1. (3)目標・期待されるアウトプット成果に課題全体として達成すべき成果を明確に追記した。

(2). 計算科学技術分野における研究開発の論文数、学会発表数は、事業の成果を議論する上で１つの指標となりうるため、分野の特性、体制を考慮の上、論文、学会発表を通じて十分に成果を発信するような計画とすること。

計画の中途で、課題遂行の中間生産物を用いた応用を逐次まとめる計画を陽に記述した。この応用を論文、及び学会発表として発信する。

(3). 予備計算などを通じて、サイエンス、エンジニアリング的な目標を明確にすること。その目標に対して、ポスト「京」でいつまでに何をどこまで明らかにすることを目指すのかを明確にすること。その時点でポスト「京」で初めてできる画期的な利活用について具体的に説明すること。
予備計算を踏まえて、正確な見積もりに本文を修正した。

(4). ３つのサブ課題それぞれが当該分野で課題とされている事項であり一定の意義はあるが、かなり狭い範囲の理論的なテーマであり、利活用についてより具体的な説明を要する。
サブ課題の意義が広い範囲の理論的テーマである旨を記載した。また、1.(3)の目標・期待されるアウトプット成果に以下のように追記した。本研究課題では、物質・材料科学において大きな飛躍を堰き止めていた難題を取り除くことが本研究課題の目標である。これにより、物質・材料科学の新たなフェーズへと押し上げる極めて重要な課題となっている。

(5). ３つのサブ課題とも何が独自性・優位性になるのか、世界的な状況報告も含めて、再検討を行い、具体的に示すこと。
世界的な状況を含めて、独自性・優位性について具体的に記載した。

(6). 各サブ課題で「京」や「ポスト京」に向けてソフトを公開しようとしているのはよいが、実際にどのように利用されるのかを明らかにすること。特に、サブ課題 B では産業界にどのようなインパクトを与えられるのかを明確にすること。
ソフト公開の流れ、および研究実施期間中の応用対象、期間終了後の潜在的な応用対象について詳しく記述した。また、サブ課題 B では本文の実施内容中の本格実施フェーズ終了時の部分において、産業界でのインパクトに関して詳細に記述を行った。

(7). 課題間の連携が弱く、その効果がよくわからない。課題間の連携を再検討すること。
サブ課題責任者の間で課題間の連携のあり方を議論し，体制と研究課題の二つについて次のようなアクションを取った.
i）体制面: 週一回のランチミーティングを 9 月末より開始した.
各課題の進捗相互確認と問題の共有を密に行うことを目的とし，論文などの形でまとめられていない成果やコードの実装など具体的な問題について気軽に情報交換を行える機会を週一回設けた.

ii）研究課題面: サブ課題間で連携して取り組むべき問題を設定した．本格実施フェーズ中に論文として成果を挙げることを目標とする．詳細を各サブ課題の研究体制に追記した。追記した詳細は以下の通りである。

==========

サブ課題 AB 連携課題「分散力を第一原理的に取り込んだ原子間ポテンシャルの開発および応用」

分子性固体や層状物質におけるユニット間の結合は静的/動的に誘起された双極子状態の間に働く相互作用(分散力)により支配される．この効果を取り込むには高次の摂動波動関数の間の相互作用を計算する必要があるが，これは従来の密度汎関数理論では難しく，半現象論的な拡張汎関数の提案にとどまっているのが現状である．分散力に支配された固体の凝集および構造転移を精確に取り扱える方法の開発は，基礎物理における最先端の課題であるのみならず，それにより一般の分子性固体の凝集や構造転移のシミュレーションが可能になるという点で実用的な波及効果も大きく，本課題で取り上げるに値する．我々はサブ課題 A と B の連携によりこの問題に取り組む．サブ課題 A で開発する電子状態計算手法は高次摂動の効果を非経験的に取り扱えるため，これに基づく全エネルギー計算から，分散力を考慮した原子間ポテンシャル関数を構成する．これをサブ課題 B で開発する固体転移の加速手法と組み合わせ，低温における分子性固体の凝集・構造転移のシミュレーションに応用する．

サブ課題 BC 連携課題「光誘起キャリアがドライヴする構造変化のマルチタイムスケールダイナミクスの解明」

光励起をトリガーとした構造相変化は、サブナノ秒の超高速情報記録過程として期待されている。

DVD-RAM における GeSb2Te5 の相変化過程を代表として、光誘起構造相転移は既に実用化している一方、その微視的なメカニズムの手掛かりが得られたのは 10 年前であり、その理解が決定的に得られたとは言い難い。

光誘起構造相変化は典型的な固体相変態よりは遥かに短い時間スケールで起こるが、電子と電場の相互作用を露わに扱った時間依存計算を要するため、現状のアルゴリズムをそのまま適用することで実現するのは難しい。我々はサブ課題 B のレアイベントシミュレーションとサブ課題 C の強光場シミュレーションの知見を合わせて、光誘起キャリアがドライヴする構造変化のマルチタイムスケールダイナミクスの解明に挑む。

サブ課題 C では、基底状態に光が照射された際の、励起直後の電子状態を求め、構造相転移を記述するシミュレーションの初期条件を決める。

サブ課題 B では..光照射下での原子のダイナミクスにレアイベントサンプリング法を適用して、大きな原子変位の実現時間の加速を試みる。

サブ課題 AC 連携課題「固体における配置の選択と実装アルゴリズムにおける情報交換」

サブ課題 A とサブ課題 C はいずれも、固体を対象とした配置の取り扱い、さらに二電子積分が研究遂行に当たった基盤である。固体に対する配置間相互作用や結合クラスタ法はま

だ歴史が浅く、決定版と言える実装や先行研究はまだ醸成されていない。こうした萌芽的側面に両課題で情報交換と議論を重ねて取り組んでいく。同じ背景で固体に対する二電子積分の並列計算スキームについても、両サブ課題で共同で開発を進める。

（別紙１）　実施機関一覧

	実施機関	備考
	東京工業大学	松下 雄一郎
サブ課題Ａ	東京工業大学	分担機関（サブ課題責任者）
	東京大学	協力機関
	九州工業大学	協力機関
	理化学研究所	協力機関
	筑波大学	協力機関
	名古屋大学	協力機関
サブ課題Ｂ	東京大学	分担機関（サブ課題責任者）
	東京大学	協力機関
	筑波大学	協力機関
	大阪大学	協力機関
	理化学研究所	協力機関
	The Skolkovo Institute of Science and Technology	協力機関
サブ課題Ｃ	東京大学	分担機関（サブ課題責任者）
	東京大学	協力機関
	大阪大学	協力機関