令和元年度 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)

令和元年度

「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)」 成果報告書

> 令和2年5月29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 大学が実施した令和元年度「「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)」」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
	実施機関(代表機関)	
	委託業務の目的	
	令和元年度(報告年度)の実施内容	
4	1-1. 実施計画	1
2	1-2. 実施内容(成果)	3
2	1-3. 活動(研究会等)	.10
2	1-4. 実施体制	. 11

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)」

2. 実施機関(代表機関)

	機関名		国立大学法人東京工業大学			
		所在地	〒152-8550 東京都目黒区大岡山二丁目12番1号			
		ふりがな	まつした ゆういちろう	生年	西暦 198	82年11月12日(37歳)
	≑田 日古	氏 名	松下 雄一郎	月日	※ 2020 ^左	F4月1日現在
代	課題 責任者	所属部署名	科学技術創成研究院		役職	特任准教授
表	貝仕伯	連絡先	Te1. 03-5734-3306 Fax. 03-5734-2999			
機		建裕元	E-mail <u>ymatsu@msl.titech.ac.jp</u>			
関		ふりがな	かどわき かずよ			
		氏 名	門脇 和世			
	事務連絡	事務	研究推進部研究資金支援	課受託	役職	主任
	担当者	所属部署名	研究契約グループ		1文400	土江
	1534	油紋生	Tel. 03-5734-2027 Fax. 03-5734-2969			5734-2969
		連絡先	E-mail kenshi.jutaku@jim.titech.ac.jp			

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. 令和元年度(報告年度)の実施内容

4-1. 実施計画

平成31年度は、本格実施フェーズの最終年度として、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、平成30年度に策定した実施計画(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)に従い、国立大学法人東京工業大学で実施する。

- 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) の並列化に向けた新アルゴリズム開発とその適用

平成30年度に並列化を実装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))に対し、スパコン「京」やポスト「京」上での超並列化を

最大限生かす新しいアルゴリズムの開発とその適用を実施する。アルゴリズム開発に関して 萌芽的研究課題「基礎科学の挑戦」のサブ課題Dの櫻井グループ(山下氏、二村氏、櫻井氏) と共同で進める。得られたアルゴリズムは即座に論文として発表し、情報発信を行う。

b) 波動関数理論 (CCSD) の2次元系・3次元系への適用と課題間連携の実施

WaveX を具体的な 2 次元・3 次元半導体へと適用を行う。その際に、サテライトピークやイオン化イオン化インパクトなどの従来の DFT では記述することが難しい電子相関に由来する物理量にフォーカスし、それぞれの物性を議論する。また、それらの計算データと実験データを比較する。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。また、同時平行に、サブ課題 B との連携課題「分子間力固体における相変態シミュレーション」、サブ課題 C との連携課題「電子相関効果を取り込んだ電子ダイナミクスシミュレーション」に関して共同研究の可能性を調査し、実施する。

- 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) 多水素化合物結晶相およびその超伝導の探求

圧力下水素化物に対してアプリ「AtomREM」を適用し、結晶格子中における水素の挙動と集積の過程を調べる。常温常圧相より水素を多数含む結晶相の形成可能性と、その相において実現する電子状態を検討し、未発見超伝導相の可能性を模索する。有望なものが見つかった場合実現のための実験を適宜提案する。

b) 開発アプリの改良・公開

アプリ「AtomREM」について、ポスト「京」での本格稼動を見据え、レアイベント生成効率、計算パフォーマンス、エネルギー障壁の精度、反応生成物の確度などについて改良を継続する。またオープンソースコードとしての公開作業を進める。利活用のためにユーザーインターフェースの改良や、アルゴリズムのパラメタチューニングの自動化などにも取り組む。

c)課題連携などを通じての分子・固体における新奇反応経路の探索

「極限マテリアル」のサブ課題 A(高精度電子状態計算)および C(強光子場下物質シミュレーション)の 開発手法を併用して、従来の方法では精度よく記述できなかった系における新たな反応経路のシミュレーションを試みる。その他萌芽課題・重点課題とも適宜連絡を取りながら取り組む。

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 による固体の高強度場現象の記述

一次元模型を計算する mATTOMCSCF で、高強度電場に対する電子ダイナミクスのシミュレーションを行い、物理現象(高次高調波発生や絶縁体非線形光吸収過程)の記述に取り組む。シミュレーションの結果を解析し、そのメカニズムを明らかにする。

- b) ポスト「京」での計算遂行に向けた並列化効率向上チューニング ポスト「京」の仕様での効率的な実行に向け、公表されたポスト「京」の仕様に合わせた並列化効率向 上チューニングに取り組む。
- c) mATTOMCSCF, ATTOMCSCF 開発の中途生産物による固体の高強度場現象の記述 mATTOMCSCF, ATTOMCSCF の開発にあたって、その要素技術を使ったコードを開発してきた。これらのコードを使った計算はコストが mATTOMCSCF, ATTOMCSCF に比べて小さく、mATTOMCSCF, ATTOMCSCF の結果を理解する上で必要不可欠な視点を与えるものである。これらのコードを使って、高強度電場に対する電子ダ

イナミクスのシミュレーションを行い、物理現象の記述に取り組み、そのメカニズムを明らかにする。

4-2. 実施内容(成果)

[全体総括]

令和元年度は、本格実施フェーズの最終年度として、スパコン「富岳」での成果創出加速へ向け、各サブ課題における開発アプリのさらなる高度化と現実物質への適用開始と総括される。各サブ課題における成果は次の通りである。

「サブ課題 A 総括]

サブ課題 A の本年度における実施内容は開発アプリ「WaveX」のスパコン「富岳」に向けた並列化アルゴリズムの開発と実装、またその適用である。具体的には、

- a) WaveX の並列化アルゴリズムの開発と実装
- b) WaveX の 2 次元物質への適用
- c) サブ課題 B との課題間連携の実施

を実施した。a)において、並列計算のボトルネックが高次元 (7 次元) テンソル縮約であることを見出し、運動量保存則まで考慮した効率的なテンソルのメモリ分散法を提案し、そのアルゴリズムの実装を行なった。b)においては、WaveX プログラムコードを具体的な 2 次元物質として単層 BN シートをターゲットに具体的な適用を行い、従来の DFT・実験値との構造に対する計算比較を行い、実験値格子定数を 2.4%の誤差で再現していることを明らかにした。さらに他のサブ課題との連携として、サブ課題 B と共同で反応過程探索のためのポテンシャル面の開発を行なった。以上により本課題の研究開発目標の遂行および今後の発展的計算のための基礎作りが達成された [出版論文 4 件、国内学会発表 4 件(うち招待 1 件)]。

[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「AtomREM」の実物質への応用およびさらなる発展の試みと総括される。具体的には項 4-1 で述べた

- a) 多水素化合物結晶相およびその超伝導の探求
- b) 開発アプリの改良・公開
- c) 課題連携などを通じての分子・固体における新奇反応経路の探索

を実施した。特に a) は本課題の最終目標である、高圧下超伝導体の反応過程探索の具体例として遂行された。近年実験で見つかった硫化水素の高温超伝導相について開発アプリを適用し、水素が解離することで元の超伝導相が分解する過程の原子シミュレーションに成功した。極低温での分解過程の具体例が原子スケールで示されたのは「AtomREM」により初めて成し得た成果である。また、「AtomREM」の性能、使い勝手の改良を進め、オープンソースコードとして公開した。さらに他のサブ課題との連携を通して、電子相関効果(サブ課題 A) および光子場下(サブ課題 C) のもとでの反応過程探索のためのポテンシャル面の開発を試みた。以上により本課題の研究開発目標の遂行および今後の発展的計算のための基礎作りが達成された [出版論文 2 件、国内学会発表 7 件(うち招待 3 件)、コード公開 1 件]。

[サブ課題 C 総括]

サブ課題 C では、mATTOMCSCF と ATTOMCSCF の「富岳」上での本格実行に向けた最適化と、これまでに開発してきた技術を使った学術面での成果創出と総括される。詳細は項 4-1 に譲り、以下にその概要をを記載した。本課題では

- a) mATTOMCSCF による固体の高強度場現象の記述
- b) ポスト「京」での計算遂行に向けた並列化効率向上チューニング
- c) mATTOMCSCF, ATTOMCSCF 開発の中途生産物による固体の高強度場現象の記述

を実施した。a) では一次元系での取り回しの良さを生かし、高強度場現象の理解するための物理を詳細に調べた。強い電場が印加された状態における電子間相互作用に起因する電子状態の変化を明らかにした。また、開発技術の一部分を実装したコードを Github 上で公開した。b) では「富岳」での本格実施を念頭に、公開されたアーキテクチャを意識し、スレッド並列についての並列化の機能を強化し、そのベンチマークを取得した。c) では、コードの開発途中の成果を使って、固体の高強度場現象のひとつである高次高調波発生過程の理解に、実験グループと共同して取り組んだ。本研究により、結晶の異方性が、高次高調波発生効率と照射電場の偏光との相対角依存性に現れていることを明らかにした。[国際学会招待講演2件、コード公開1件]

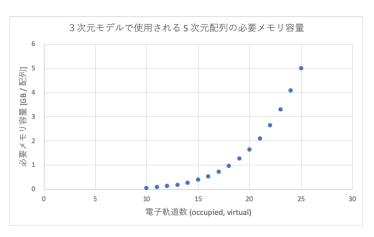
【実施内容、検討内容および、その成果】

サブ課題A

a) WaveX の並列化アルゴリズムの開発と実装

WaveX コードの CCSD (結合クラスター) 計算において、スパコン「富岳」に向けた並列計算のボトルネックを調べた。WaveX では、MPI 並列を採用している。メモリに関しては、2 電子励起因子(7 階テンソル。運動量を表す添字3 つと、電子バンドを表す添字4 つを持つ。)が最もメモリを圧迫する部分であるが、大規模並列計算機に適したメモリ分散を行わないと、通信時間が全計算時間の大半を占めてしまうことがわかった。そこで、萌芽的研究課題「基礎科学の挑戦」のサブ課題Dの櫻井グループ(山下氏、二村氏、櫻井氏)と共同で、ノード間通信をできる限り低減した新しいアルゴリズムの開発を行った。そのアイディアは2電子励起因子の7つの添字の内、電子の運動量に関する2つの添字をインデックスとしプ

ロセス番号へと識別するというものであ る。これにより、通信の呼び出しを3重ル ープの内側にあったものを、第1層の深さ にまで抑えることができる。また、2電子励 起因子をそのまま計算機上に保持するには 7次元配列が必要となるが、このアイディ アにより必要な配列は5次元配列へと削減 され、必要メモリ量の観点からより大規模 な計算を行えるようになる。新しいアルゴ arXiv:1911.00242(2019) 公開した。また、そ て必要なメモリ容量 の有効性確認として、炭素 1 次元鎖物質へ



リズムは論文としてアーカイブ上にて 図 A1 WaveX コードを用いた 3 次元モデル計算におい

の適用を実施し、アルゴリズムが正しく動作していることを確認した。

また、そのパイロット的 WaveX プログラムコードを用いて、3 次元物質を考えた場合、スパコン「富 岳」において、適用可能なシステムサイズを見積もった。電子軌道数(軌道 occupied と virtual で同数 と仮定)に対して 1 つの配列を保持するのに必要なメモリ量を図 A1 に示す(容量が $N_{band}{}^4N_{k}$ に比例す る事から、外挿した。ここで Nband はユニットセル中の電子軌道数を表す)。この図より、電子軌道数が 18 まではスパコン「富岳」において計算が可能であるとの見通しを得た。実際の計算において、電子軌道数 が 18 の周期系 CC 法計算は世界最大の計算であり、欠陥を含め多くの系が計算対象に入ってくる十分な 大きさであるとの見積もりを得た。

また、計算時間についての見積もりとして、テンソル積要素数と BLAS3 の行列行列積 (GEMM) から、 スパコン「富岳」ではファイルの読み込みを除けば1回の計算当たり数時間程度と見積もられた。これに より、スパコン「富岳」における成果創出フェーズへの準備が整えることが出来た。

b) WaveX の 2 次元物質への適用

WaveX プログラムコードを具体的な2次元物質として単層 窒化ボロン(BN)シートをターゲットに適用を行い、従来 の DFT・実験値との構造に対する計算比較を行い、全エネ ルギーに対するパイロット的計算結果を得た(図 A2 参 照)。全エネルギー以外の諸物理量(準粒子スペクトルや、 サテライトピーク、イオン化インパクトなど)の解析には、 グリーン関数計算が必要となるが、その計算を実行するに は、a)で開発した新しいメモリ分散法アルゴリズムだけで はなく、グリーン関数計算のためのクリロフ部分空間法に 関する新たな並列計算機上の数理アルゴリズムを追加で 開発する必要があることがわかった。 CCSD 計算の結果、

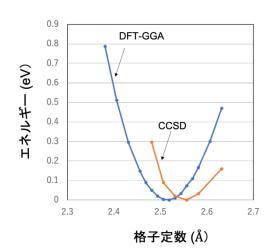


図 A2 単層 BN シートに対する DFT (GGA 近 似)と CCSD の全エネルギー比較

BN シートの格子定数を 2.56 Å と予言した。一方で、DFT (GGA 近似使用) では、2.51 Å であった。この計算結果は、実験値 (2.5 Å) を CCSD では 2.4 %の誤差で再現していることを確認した。

サブ課題との連携として、サブ課題 B と共同で反応過程探索のためのポテンシャル面の計算を行なった。ポリアセチレンをターゲットに、格子定数に対する全エネルギーを計算した(図 A3 参照)。その結果、ハートリーフォック法の全エネルギーよりも下がっていることが確認された。これは相関エネルギーの取り込みに成功していることを表している。この相関エネルギーには、ヴァン・デア・ワールス力が含まれており、サブ課題 B で扱う分子性固体の固体・固体相転移現象を計算する際には極めて重要な役割を演じることになる。

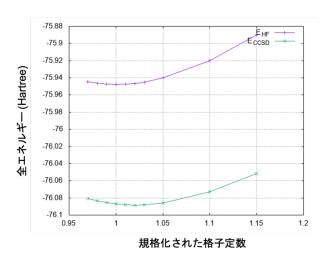


図 A3 ポリアセチレンの格子定数の変化に対する全エネルギー。ハートリーフォック(HF)の格子 定数で規格化している。

サブ課題B

a) 多水素化合物結晶相およびその超伝導の探求

近年発見された、高圧下において硫化水素固体が示す超伝導相について、開発アプリ「AtomREM」を用いて結晶構造変化の過程をシミュレートした。先行研究によると、硫化水素(H₂S)固体は100GPa以上の超高圧において、水素を過剰に含む新しい固体相(H₃S)と硫黄の固体相へ分離する。この状況で転移温度200ケルビンもの高温超伝導が観測される。超伝導を示すの

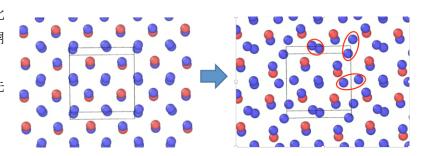


図 B1 H_3S -BCC 相において発見された水素分子解離過程。青丸と赤丸は各々水素原子および硫黄原子。右パネルにおいて局所的な H_2 形成を丸囲いで示す。

は H₃S 相と考えられている。しかし、この高温超伝導相を減圧下でも安定化させる試みは現状成功していない。これは減圧に伴い、H₃S 相が分解しているものと考えられるが、その分解過程は解明されてい

ない。そこで我々はこの H_s S 固体相が分解する反応経路を調べるため、高圧下の構造からエネルギー障壁の低い反応過程を探索した。まず分子の分離にともなう電子状態の変化を精度よく記述するポテンシャルを実装した。これは以下の項 b)-ii でも述べるが、まず電子自由度を含む第一原理計算を様々な原子変位について行い、この際のエネルギー変化を再現するよう Neural Network 型ポテンシャル関数を最適化することでなされた。続いて得られたポテンシャル関数を用いて「AtomREM」によるシミュレーションを行った。既知の H_s S 超伝導相の結晶構造は対称性が高い BCC 格子をとる(図 B1 左)。これを初期値としてエネルギー障壁の低い構造変化経路を「AtomREM」により系統的に探索した。その結果、図 B1 右のように水素が H_s 分子を局所的に形成する過程が観測された。電子状態計算によると、 H_s S-BCC 相においては原子の配置の効果によりフェルミレベル近傍に電子状態が特異的に集中しており、これが高い転移温度の原因と考えられる。今回の結果は過剰水素が H_s として解離することでこのメカニズムが消失し、結果超伝導転移が消失するというシナリオを示唆する。本結果は学会にて発表された (Yuri S. Nagornov、明石遼介、日本物理学会第75回年次大会)。

b) 開発アプリの改良・公開

アプリ「AtomREM」について以下の改良を進めた。

i)シミュレーションにおいてレアイベントの生成効率に影響するパラメータについて検討した。 AtomREM には昨年度までに開発した確率微分方程式求解アルゴリズムを用いている(詳細は R. Akashi and Y. S. Nagornov, J. Phys. Soc. Jpn. 87, 063801 (2018); Y. S. Nagornov and R. Akashi, Physica A 528, 121481 (2019))。これは大雑把には原子座標の情報を持つ「walker」を、補正された原子間ポテンシャルの上で同時に時間発展させる。この際原子間ポテンシャルの補正度合いをコントロールするパラメータの設定により、レアイベントの生成時間および成功率が変化し、両者はトレードオフの関係にあることが分かっている。そこで今年度はこのトレードオフについて調査を進め、パラメータを自動で最適化するアルゴリズムを実装した。これによりレアイベント生成に要するシミュレーションの試行回数を減らすことができ、探索時間が削減された。

ii)エネルギー障壁の計算精度およびポテンシャル面の準安定点(反応生成物)が正しく表現されることを目指し、シミュレーションに用いる原子ポテンシャルに電子状態の効果を取り込む改良を行った。具体的には電子の効果を含むが計算コストが大きい第一原理計算を、実際の物質について、様々な原子変位のもとで実行し、得られた原子座標と全エネルギーの関係を学習データとし、これを再現するよう Deep Neural Network 形式の関数を最適化した。これにより計算コストの低さと精度を両立したポテンシャル関数を得ることができる。この方法により前項 a) で述べた過水素化硫化水素 H_aS について具体的にポテンシャル関数を構成し、適用した。

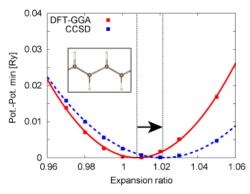
iii) 開発したアプリ「AtomREM」をオープンソースコードとして公開した。利活用のため、コードの使用法、インプットパラメータ、計算例をまとめた論文を Computer Physics Communications 誌に投稿、

採録された。公開に際して、上記 i)のパラメタの自動チューニングなども実装した。

c) 課題連携などを通じての分子・固体における新奇反応経路の探索

サブ課題 A(高精度電子状態計算)および C(強光子場下物質 シミュレーション)の開発手法を用いて、従来の方法では 取り扱いが難しかった系における反応経路のシミュレーシ ョンの試みに取り組んだ。その足がかりとして、本年度は 新たな効果を取り入れたポテンシャル平面の性質を調べ、 その非自明な性質を発見した。

i) サブ課題 A(高精度電子状態計算)で開発されたアプリ 「WaveX」を用いて、炭化水素の構造変化を記述する原子 間ポテンシャルの実装に取り組んだ。「WaveX」は電子の状 態の高精度第一原理計算を可能にする。そこでこの高精度 計算が、比較的精度の低い従来の第一原理計算と比べどの 程度異なるポテンシャル平面を与えるかを調べた。炭化水 素鎖(ポリアセチレン)について、様々な原子変位について 「WaveX」による電子状態計算およびと従来の第一原理計 算(密度汎関数理論による)を行った(図 B2 上)。すると原 子間結合距離が大きい領域で、前者で求めたポテンシャル エネルギーが後者の方法に比べ系統的に小さくなる傾向が 見られた。一般に原子間距離が大きい場合、電子の避けあ いによるエネルギー安定化の度合い (相関効果)を見積も ることは難しい。上の傾向は WaveX によりこの相関効果が 図)に光を定常的に当てた時のポテンシャ 精確に評価された帰結といえる。さらにこれにより、最適 ル変化。周波数は 5.7eV とした。 な原子間結合距離は WaveX で求めたものの方が大きくなっ



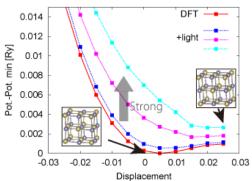


図 B2 (上) ポリアセチレン(挿入図)の原 子間距離を一様に変化させた時のポテン シャル変化。赤(DFT-GGA)は従来の第一 原理計算(密度汎関数理論)によるもの。青 (CCSD)は WaveX による。(下) GeTe(挿入

た。図 B2(上)にポテンシャル極小をとる原子間距離の変化を矢印で示す。この結果から、WaveX による 高精度ポテンシャルにより反応経路を探した場合、その結果は従来の第一原理計算のそれとは異なるも のとなると期待される。

ii) サブ課題 C(強光子場下物質シミュレーション)との連携課題として、定常的に光を固体に当てたと きの原子ダイナミクスを記述する理論を検討した。まず光が定常的に照射されているときの原子間ポテ ンシャルについて、観測可能量である誘電率を用いた実用的な近似表式を新たに定式化した。続いて具 体的な光相変化材料 GeTe について、原子位置を変化させたときの誘電率を計算し、これを用いて光照 射下のポテンシャル補正を評価した。その結果の一例を図 B2 下に示す。GeTe は歪んだ立方格子様の構 造が安定である。これに特定の周波数の光を当てると、ポテンシャルの安定点が消える。これは歪みが 消え立方晶に近い菱面体構造が安定化することに対応する。実際の光相変化材料では光を照射することでアモルファス相と結晶相が切り替わる。今回の結果(光照射による歪んだ構造の不安定化)はこの現象の背後にある機構の表れと解釈できる。以上の定式化・およびテスト計算は光相変化材料における構造変化の制御シミュレーションの基礎となる。

サブ課題C

a) mATTOMCSCF による固体の高強度場現象の記述

一次元模型を計算するmATTOMCSCFで、高強度電場に対する電子ダイナミクスのシミュレーションを行った。時間依存 Hartree-Fock(TD-HF)方程式における電子・正孔間引力を担う交換項の高強度場下における役割を調べた。前々年度、前年度に本課題で調べた固体の高次高調波発生過程のシミュレーションにおいて、交換項が電子・正孔対生成を促進している兆候を得ていた。これは、高強度電場により有効的なバンドギャップの縮小を示唆している。この仮説を検証するために、定常電場を印加したシミュレーションを行い、有効的なバンドギャップの時間発展を評価した。その結果、定常電場がかかっている際には、交換項はバンドギャップを変調せず、代わりに直接項がバンドギャップを増大させる役目を演じていることが分かった。一方で、交換項は、電場が時間に依存して変化している間だけバンドギャップを減少させる役目を果たしていることを明らかにした。既存の高強度電場に対する固体の量子ダイナミクスの大多数のシミュレーションにおいては、電子の運動は、十分に電子間相互作用を考慮していない理論的枠組みで評価されてきた。本研究は、高強度電場が印加された状態の電子間相互作用に由来する電子状態の変化をTD-HF 方程式の範囲で評価した初めての計算である。電場を印加した電子状態の変化は、絶縁体レーザー加工等の最初期過程における非線形光吸収を理解し、その効率化を進める上で、極めて重要な知見とかる

また、mATTOMCSCF における時間依存 Hartree-Fock 方程式を解く機能のみを実装したアプリを mATTOHF として、Github 上で公開を行った: https://github.com/Yasushi-Shinohara/mATTOHF。

b) ポスト「京」での計算遂行に向けた並列化効率向上チューニング

ポスト「京」(以降、「富岳」)の仕様での効率的な実行に向け、公表された「富岳」の仕様に合わせた並列化効率向上チューニングに取り組んだ。元のコードでは、非 OpenMP 環境でも動作するよう、OpenMP を有効にするコンパイルオプションを入れずとも動作する汎用コードとしていた。こうしたコードでは、OpenMP によるスレッド並列部分の前後で逐次並列化の処理を行う構成になりやすくオーバーヘッドの影響を受けやすい。一方「富岳」では1ノードに 48+2 コアが搭載され、「京」に比べて多くのコアをスレッド並列で遂行することを念頭に置いた構成となっている。また、現代的なコンパイラは OpenMP をデフォルトでサポートしている。そこで、コードの非 OpenMP 環境への冗長性を排し、OpenMP を前提としてコードの構成の刷新を行った。

一般にスレッド並列の並列化効率は同じ数の MPI 並列よりも効率が落ちる。一方で、mATTOMCSCF と ATTOMCSCF では MPI_ALLREDUCE 関数を頻繁に呼ぶため、数千一数万プロセス程度になると、通信のボトルネックが顕著になる。スレッド並列数を増やすことで、これを抑制でき、また MPI 通信用のメモリも削減できる。「富岳」に代表されるメニーコアアーキテクチャでは、ノード内にも複数の MPI 並列を立ち上げ

ることで、最適なスレッド並列・MPI 並列を評価する必要がある。この条件を模擬し、mATTOMCSCF/ATTOMCSCF で共通して計算時間の多くを占めるfullCI部分について、一ノード内で、両並列数の積を56で一定にして、最適条件を評価した。その結果、56スレッド・1MPI並列、1スレッド・56MPI並列の極端な条件を除き、実効性能は平均値を基準に93-118%程度で安定したパフォーマンスを見せることを確認した。このことから、メニーコアアーキテクチャにジョブを投入する際、計算速度の観点からは、2-28スレッドの広い範囲で安定した速度を発揮することが期待される。特に、これらの性能は28スレッドという大きなスレッド並列まで性能が維持されており、現在の一般的なメニーコアアーキテクチャであれば、ノード内は2MPI並列程度に抑える事ができ、通信コストの削減、メモリ容量削減に資することが期待される。

c) mATTOMCSCF, ATTOMCSCF 開発の中途生産物による固体の高強度場現象の記述

mATTOMCSCF、ATTOMCSCFの開発にあたって、その要素技術を使ったコードを開発してきた。これらのコードを使った計算はコストが mATTOMCSCF、ATTOMCSCF に比べて小さく、mATTOMCSCF、ATTOMCSCF の結果を理解する上で必要不可欠な視点を与えるものである。これらのコードを使って、高強度電場に対する電子ダイナミクスのシミュレーションを行い、物理現象の記述に取り組み、そのメカニズムを明らかにした。対象とした物理現象は、近年盛んに調べられるようになった固体からの高次高調波発生過程である。固体からの高次高調波発生過程には、固体中にひしめく多くの量子状態が寄与するため、その単純な理解を得るのが困難で、多くの自由度を考慮したシミュレーションが有効である。mATTOMCSCF、ATTOMCSCF の開発に伴う要素技術を用いたコードを使って、次世代太陽電池材料として期待されているハイブリッドハロゲン化ペロブスカイトからの高次高調波発生過程の理解に取り組んだ。その結果、実験で得られていた照射電場の偏光と結晶との相対角に依存して大きく変化する高調波発生効率が再現された。その結果を解析することで、結晶の持つ異方性が非線形光学応答に顕著に反映されていることを明らかにした。

4-3. 活動(研究会等)

【共催】

- 1,第9回材料系ワークショップ~「富岳」で飛躍へ!計算データの価値~ 令和2年2月17-18日、秋葉原コンベンションホール
- 2, 第3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 令和元年8月1日、東北大学金属材料研究所講堂

【協賛】

1, 第1回 CDMSI アプリ高度化合宿 2019

令和元年6月25-27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)第5回シンポジウム「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」

令和元年8月9日、東京大学伊藤国際学術研究センター

4-4. 実施体制

業務項目	実 施 場 所	担 当 責 任 者
①(サブ課題A)複合相関	神奈川県横浜市緑区長津	特任講師 松下 雄一郎
マテリアルのための電子	田町四二五九国立大学法	
状態計算基盤-DFTを超	人東京工業大学科学技術	
えて超高精度へ	創成研究院 フロンティ	
	ア材料研究所	
② (サブ課題B) 極限高圧	東京都文京区本郷七丁目	助教 明石 遼介
下マテリアルの相変態シ	三番一号国立大学法人東	
ミュレーションー室温超	京大学大学院理学系研究	
伝導に向けて	科	
③(サブ課題C)強光子場	東京都文京区本郷七丁目	特任助教 篠原 康
中マテリアルの原子論的	三番一号国立大学法人東	
シミュレーション:波動	京大学大学院工学系研究	
関数理論から臨む光と物	科	
質の相互作用		
④プロジェクトの総合的		特任講師 松下 雄一郎
推進	田町四二五九国立大学法	
	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	

様式第21

学会等発表実績

委託業務題目「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)」

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	発表者氏名	発表した場所	発表した時期	玉
目、口頭・ポスター発		(学会等名)		内・外
表の別)		(の別
Quantum algorithms	小杉太一,	第67回 応用物理学	2020/3/1	
for Green's	松下雄一郎	会 春季学術講演会		
functions and linear				
response functions				
on quantum computers				
(口頭)				
量子コンピュータを	小杉太一,	第75回 物理学会		
用いた分子の線形応	松下雄一郎	年次大会		
答関数の計算(口頭)				
連結クラスター理論に				
よる準粒子スペクトル				
計算:古典と量子コン	松下雄一郎、	第29回日本MRS年次	2019年11月	国内
ピュータ上での実装と	小杉太一	大会	2019年11月	国内
適用(口頭)【招待講				
演】				
結合クラスター法によ	 小杉太一,	2019年 物理学会 秋		
る分子のグリーン関数	/ / / / / / / / / / / / / / / / / / /	李大会	2019年9月	国内
の解析 (口頭)	(大文)、水压 (大文)	学八云 		
反応座標を用いない	明石遼介、	東北大学金属材料	2019/08/01	国内
反応経路探索: 固体	Yuri S.	研究所(第3回ポス		
系への応用(口頭発	Nagornov、水	ト「京」萌芽的課題		
表)	口敦喜	「基礎科学の挑		
		戦」・「極限マテリ		
		アル」合同公開シン		

		ポジウム)		
AtomREM: A Program	Yuri S.	岐阜大学柳戸キャ	2019/09/10-13	国内
Code for Atomistic	Nagornov、明	ンパス(日本物理		
Chemical Reaction	石遼介	学会2019年秋季大		
Simulation Using		会)		
Weighted Langevin				
Mechanics (口頭発				
表)				
Weighted Langevin	明石遼介	京都大学基礎物理	2019/10/26-11/08	国内
mechanics for		学研究所(Nuclear		
potential escape		Fission Dynamics		
problems (口頭発表)		2019)		
Some basic	明石遼介	理化学研究所計算	2020/01/15-17	国内
methodologies for		科学研究センター		
the next-generation		(International		
electronic and ionic		Workshop on		
structures		High-Performance		
simulations (口頭発		Computing and		
表)		Programming on		
		Quantum Chemistry		
		and Physics 2020		
		(HPCPQCP2020))		
交換相関密度汎関数	明石遼介	イマジンホテル&リ	2020/02/06-08	国内
開発の新展開(口頭発		ゾート函館(第九回		
表)		「凝縮系理論の最		
		前線」)		
多粒子系における稀	Yuri S.	秋葉原コンベンシ	2020/02/17-18	国内
な構造変態のシミュ	Nagornov	ョンホール(第9回		
レーター「AtomREM」		材料系ワークショ		
(ポスター発表)		ップ~「富岳」で飛		
		躍へ!計算データ		
		の価値~)		
Nonempirical	Yuri S.	名古屋大学東山キ	2020/03/16-19	国内
seeking of the	Nagornov,	ャンパス(日本物理		
minimum energy	水口敦喜、明	学会第75回年次大		

escape paths in	石遼介	会)		
solids: Application	F ~ 2/1			
to H3S under				
pressure(口頭発表)				
Theoretical study on				
solid-state high				
harmonic generation:		Mini-Workshop on		
from a	Yasushi	Nonlinear Response	0010/5/0	
one-dimensional	Shinohara	in Laser-Matter	2019/7/8	国内
model to an ab-initio		Interaction		
three-dimensional				
approach、招待講演				
D. I		The 22nd Asian		
Real-time ab-initio		Workshop on		
simulations for	Yasushi	First-Principles	0010/10/00	
crystalline solids	Shinohara	Electronic	2019/10/29	国内
driven by strong		Structure		
laser pulse、招待講演		Calculations		
Theoretical study				
on high-order		CIAiS		
harmonic generation	Yasushi	International	2020/2/28	国内
reflecting	Shinohara		2020/2/28	国内
spatiotemporal		Symposium 2020		
symmetries、口頭発表				
多体効果を取り込んだ		第3回ポスト「京」萌		
多体効果を取り込んに		芽的課題「基礎科学		
回体の電子タイプミク スシミュレーション、	篠原康	の挑戦」・「極限マ	2019/8/1	国内
· ·		テリアル」合同公開		
口頭発表		シンポジウム		
	篠原 康、鈴			
周波数領域角度分解光	木 剛 、魯			
電子分光法による	楊帆、渡邉	日本物理学会2019年		
Ta2NiSe5における光誘	真莉、徐 佳	↑ 秋季大会	2019/9/10	国内
起絶縁体金属転移の研	笛、高木 英			
究(理論)、口頭発表	典、野原 実、			
	片山 尚幸、			

	澤博、藤澤正美、 金井 輝人、 板川 貴一 流 一			
Electron-hole attraction effect under time-dependent electric field within a generalized Landau-Zener model、 口頭発表	Yasushi Shinohara	APS march meeting	2020/3/3	国外
電子・正孔対相互作用 を取り込んだ固体電子 ダイナミクスの第一原 理計算、口頭発表	篠原康	第67回応用物理学会 春季学術講演会	2020/3/12	国内
時間に依存するBloch 軌道で表現した空間反 転対称性に起因する偶 数次高次高調波消失の 微視的理論、口頭発表	篠原康	日本物理学会第75回 年次大会	2020/3/19	国内
時間依存 Schrödinger 方程式を用いた固体の 偶数次高調波と空間反 転対 称性の有無に関 する理論研究、ポスタ 一発表	篠原康	第80回応用物理学会 秋季学術講演会	2019/9/18	国内
ハイブリッド汎関数を 用いた固体非線形光学 応答の原子論的シミュ レーション、ポスター 発表	篠原康	第6回「京」を中核と するHPCIシステム利 用研究課題 成果報 告会~スーパーコン ピュータ「富岳」の	2019/11/1	国内

電子・正孔対相互作用 を取り込んだ固体の実 時間第一原理シミュレ	篠原康	胎動、計算科学、AI の融合に向けて~ 第9回材料系ワーク	2020/2/17	国内
ーション、ポスター発 表	(条//示/)承	ショップ	2020/2/11	五九1
High-Harmonic Generation from Crystalline Solids under Carrier Envelope Phase Controlled Pulse、ポ スター発表	Yasushi Shinohara, Shoken Yamamura, and Kenichi L. Ishikawa	CLEO/Europe-EQEC, ICM Center	2019/6/25	国外
A microscopic theroy for selection rules of solid-state high-harmonic generation based on time-dependent Schrödinger equation、ポスター発表	Yasushi Shinohara	High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress	2020/3/24	国外

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文(発表題	発表者氏名	発表した場所	発表した時期	国内•
目)		(学会誌・雑誌等名)		外の別
Implementation of quantum imaginary-time evolution method on NISQ devices: Nonlocal	Hirofumi Nishi, Taichi Kosugi, and	arXiv: 2005.12715	2020	国外
approximation	Yu-ichiro Matsushita			
Construction of Green's functions on a quantum computer: applications	Taichi Kosugi and Yu-ichiro	Physical Review A 101, 012330	2020	国外

to molecular systems	Matsushita			
Linear-response				
functions of molecules	Taichi			
on a quantum computer:	Kosugi and	Physical Review	0000	园 4
Charge and spin	Yu-ichiro	Research	2020	国外
responses and optical	Matsushita			
absorption				
	Takumi			
	Yamashita,			
A parallel computing	Taichi			
method for the	Kosugi,	arXiv:1911.00242	2019	国外
coupled-cluster singles	Yu-ichiro	a1 A1 V · 1911. UU242	2019	
and doubles	Matsushita,			
	and Tetsuya			
	Sakurai			
Non-empirical weighted	Yuri S.	Physica A 528,	2019/08/15	国外
Langevin mechanics for	Nagornov,	121481 (2019)		
the potential	Ryosuke			
escape problem:	Akashi			
Parallel algorithm and				
application to the				
Argon clusters				
AtomREM: Non-empirical	Yuri S.	Computer Physics	未定	国外
seeker of the minimum	Nagornov,	Communications,		
energy escape paths on	Ryosuke	(採録決定)(2020)		
many-dimensional	Akashi			
potential landscapes				
without coarse				
graining				
	Hideki			
High-order harmonic	Hirori ,			
generation from hybrid	Peiyu Xia,			
organic-inorganic	Yasushi	APL Materials.	2019/4/5	国外
perovskite thin films	Shinohara,			
Perovskie chim illims	Tomohito			
	Otobe ,			

Ya	asuyuki		
Sa	anari,		
H	irokazu		
Ta	ahara,		
No	obuhisa		
Is	shii , Jiro		
I-	tatani,		
Ke	enichi L.		
Is	shikawa,		

「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

> 令和2年3月31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			額の確認後、制定
(2017. 6. 5)			
2. 0	_	_	代表機関変更を受け、版数変更して対応。
(2018. 3. 22)	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ジ	ションの位置づけ4
(5)年次計画	6
(6) 実施体制	9
(7)必要計算資源	11
2. 研究開発内容詳細	13
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
	13
(1)目的・意義	13
(2) 実施内容	13
(3) 目標・期待される成果	14
(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	15
(5) 実施体制	16
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17
(1)目的・意義	17
(2) 実施内容	18
(3) 目標・期待される成果	19
(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	22
(5) 実施体制	22
$2-3$. サブ課題 \mathbb{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	24
(1) 目的・意義	24
(2) 実施内容	24
(3) 目標・期待される成果	25
(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	26
(5) 実施体制	27
3. 採択時の留意事項への対応状況	29
4. 中間評価における指摘事項への対応	29

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運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 μ m 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。

アウトカム成果:

・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

1			
	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	
課題全体		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。	
WINZIII		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	調査研究・準値	本格実施	
(分担機関・責任者)	平成28年度	平成29年度	平成30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	(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	(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) 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	(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	(実施内容) a) スパコン「京」上において、比較的系の小さな見型的な半導体・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・ウェアに最適なアルゴリンムの開発を行う

プ課題B を限高圧下マテリアルの相変態シミュレーション一室温超伝導に向けて(東京大学大学院理学系研究科・明 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)前年度までに開発したプリのポスト「京」上で並列性能向上も)典型的な圧力誘起高温(本導相形成実験のプロト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、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。 (実施内容)1、ポスト「京」上での開発アプリを用いた計算の施および並列化性能改善が大力では、ア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。 (1、ポスト「京」上での開発アプリを用いた計算の施および並列化性能改善が大力では、1、原子ポテンシャルの第2、実践内容)1、ポスト「京」上での開発アプリを用いた計算の施および並列化性能改善が大力では、1、第上での並列性能力は、1、第二上での関発でプリを用いた計算の施および並列化性能改善が大力が表記を表して、1、第二上での関系では、1、第二上での関系では、1、第二上での関系では、1、第二上での関系では、1、第二上での関系では、1、第二上での関系では、1、第二上での対力を対象が表記を表し、1、第二上での対力を対象が表記を表し、1、第二上での対力を対象が表記を表し、1、第二上での対力を対象が表記を表し、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1、1
のレート計算を通した精度

サブ課題C

康)

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 (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行る。

(実施内容)

ATTOMCSCF, mATTOMCSCFのシミュ レーションから、電子散き に起因する緩和過程の解析 を行う。緩和時定数の評価

(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:

サブ課題B: 分担機関 明石遼介(サブ課題責任者) Iurii Nagornov (サブ課題実施者) 小杉太一(サブ課題実施者) 固体固体相変態 サブ課題A:代表機関 松下雄一郎(研究代表者・サブ課題責任者) 電子系基底状態

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
池高古本川藤子斯 健 市 化 保 英 一 佐 代本 常 其 使 官 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 添付 2-9

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vanderWaals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 $\chi_{GG'}(q,\omega)$ 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_{ω} 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_{ω} = 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_{ω} = 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 $\chi_{GG'}(q,\omega)$ 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。

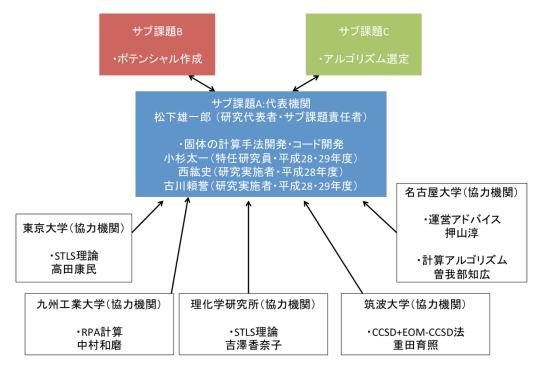


図 2 サブ課題 A の研究体制

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 添付 2-18 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.

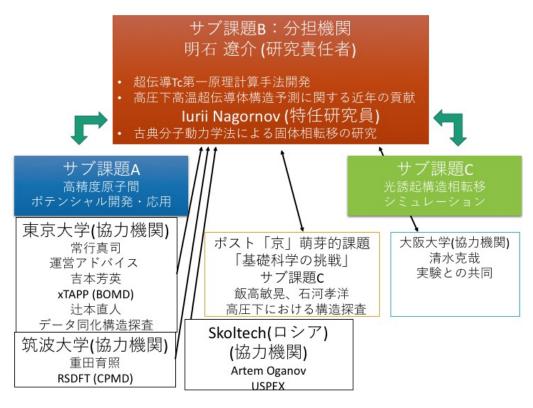


図3 サブ課題 B の研究体制

添付 2-23

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」 添付 2-27 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(COIICCPT, 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。

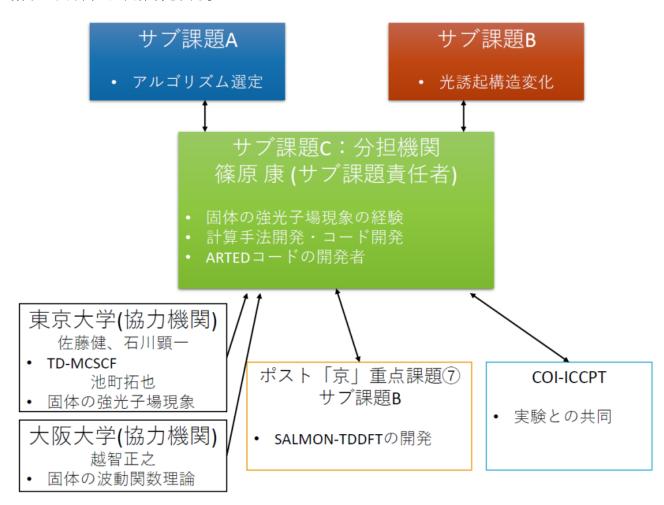


図4 サブ課題 C の研究体制

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。

<u>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</u> 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 添付 2-29

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