

21世紀の錬金術としての計算機ナノマテリアルデザイン



技術解説

吉田 博*

Computational Nano-materials Design as a 21st Century's Alchemy

Key Words : computational nano-materials design, *ab initio* calculation, nanoscience, nanotechnology

はじめに

所望の機能や物性を有する新物質を物質の存在様式の公準や理論に基づいて自由に創成する錬金術は紀元前からの人類の夢であった。近年、物質の原子レベルやナノスケールレベルでの基本法則である量子力学(第一原理)に基づいた第一原理計算手法の開発と半導体技術の進歩によるコンピュータの急速な発展より、原子番号だけを入力パラメータにして、第一原理から現実物質の物性予測を行うことが可能となりつつある。その結果、狙った物性や機能を示す仮想物質を計算機上でデザインし、また、量子シミュレーションによる解析からマテリアルデザイン、プロセスデザインやデバイスデザインのための新しいガイドラインを発見することが、単なる夢ではなく現実的になりつつある。これらは量子力学に基づいた計算機マテリアルデザインがその実現に向けてすでに一步を踏み出していることを示している。このような計算機ナノマテリアルデザイン研究の現状を報告する。

20世紀の物性物理学と21世紀の物性物理学

20世紀は物理学の世紀と言われていた。物質の微視的世界の基本法則である量子力学(第一原理)に立脚し、デカルト的合理精神に基づいて、微視的機構

となる基本要素を還元し、これをもとに自然を統一性(ユニバーサリティー)によって説明する基本要素還元型研究が主流であった。これらの基本要素に基づき、物質における分子、原子、電子、原子核等の構成要素の運動を制御して新しい物質機能が開発され、また、構成要素の結合を制御することによって新しい物質が作られてきた。生命科学の発展も遺伝情報の伝達の分子機構が明らかになって急速な発展を遂げている。一方、21世紀の研究の中心課題となる環境問題、エネルギー問題、高齢化(少子化)問題、安全保障・気象・自然災害などの問題は、多数の要素が絡み合った多様性(ダイバシティ)をもつ複雑なシステムである。21世紀は、量子力学(第一原理)をエンジニアリングやテクノロジーとして利用し、基本要素還元型研究によって得られた基本要素を逆に統合する基本要素統合型研究により、人類の未来や幸福のために奉仕する世紀となると予測される。物質を構成する基本要素を物質の存在様式の理論や公準に従って統合し、新機能物質をデザインする研究は錬金術に似ている。すなわち、物質の全一性(ユニテ)を支配するヘルメス哲学の公準に従って卑金属を貴金属に金属変成する錬金術と相通じるものがある。このような意味で、計算機ナノマテリアルデザインはデカルト哲学の対極にあるヘルメス哲学の精神により近く、『21世紀の錬金術』とも呼ばれている。量子力学をエンジニアリングとして利用することにより、科学技術の発展の結果生じた社会における諸課題である環境問題、エネルギー問題、高齢化(少子化)問題、安全・安心保障問題などの解決を通して人類の遠い未来や幸福に奉仕することができる。第一原理計算に基づいたマテリアルデザインには、環境調和材料、高効率エネルギー変換材料、高齢化福祉医療材料、そして安全・安心のための高感度セ



* Hiroshi KATAYAMA-YOSHIDA
1951年4月生
現在、大阪大学産業科学研究所・量子機能科学研究部門・量子物性研究分野および産研ナノテクセンター・計算機ナノマテリアルデザイン分野、教授、理学博士、マテリアルデザイン
TEL 06-6879-8535
FAX 06-6879-8539
E-Mail hiroshi@sanken.osaka-u.ac.jp

ンサーや高次機能調和材料などのデザインを通して、古代や中世の錬金術の公準であったヘルメス哲学の代わりに、21世紀では量子力学を公準とした『21世紀の錬金術』としての大きな貢献と将来の発展が期待されている。

産業構造の転換と計算機ナノマテリアルデザイン

電子産業を例にとると、マテリアルの基礎の上にデバイスが作製され、それに立脚してシステム・ソフトウェアが構築されるという三段階(マテリアル→デバイス→システム・ソフトウェア)の階層性が存在する。21世紀には、マテリアルからデバイスへ、デバイスからシステム・ソフトウェアへと産業構造が大きく変化し、マテリアルやデバイスを中心とした工業化社会からシステム・ソフトウェアを中心とする知識社会へとそのパラダイムが大きくシフトする。新しい概念に基づいたシステム・ソフトウェアを構築しようとするれば、それを可能にする新しいデバイスが必要となり、また、新しいデバイスの実現のためには新機能をもつマテリアルの創製が不可欠となる。逆に、新機能をもつマテリアルが発見されたとき、マテリアル→デバイス→システム・ソフトウェアからなる三段階の階層性を通して、科学技術や経済社会文化全般に与えるインパクトは大きく、21世紀においても新機能をもつマテリアルの効率的な研究開発が人類の未来と幸福を大きく左右する。他の追随を許さない優れたマテリアルの発見やデバイス開発を効率よく行い、いち早く形式知をプロパテント化により知的財産として権利化し、また、ノウハウや秘伝・極意などの暗黙知を効率的に獲得するためにも、従来からの実験主体による試行錯誤的なマテリアル開発に加えて、原子レベルやナノスケール・レベルでの物理学の基本法則である量子力学(第一原理)計算に基づいたマテリアルデザインとの協力が不可欠となってくる。このような理由により、第一原理計算により先手必勝を狙うマテリアルデザインは、工業化社会から知識社会へと産業構造が大きく変化する21世紀において、不可欠なものとなる。

計算機ナノマテリアルデザインエンジン

コンピュータの計算能力と計算物理学的手法に大きな進歩があり、原子番号だけを入力パラメータにした第一原理計算により、多様な系についての物性

を定量的に予測することが可能になってきた。自然を記述する簡単なモデルを演繹し、実験で決める経験的パラメータを含む従来のモデル(模型)計算と比較して、第一原理計算は、世の中にまだ存在しない仮想物質や新物質について、電子状態や物性を定量的に予言できる唯一の理論的枠組みといっても良く、『凝縮系物理学における標準模型』と呼ばれている。第一原理計算による物性予測に基礎をおいたマテリアルデザインの可能性や現実性が議論されており、第一原理計算による物性予測と考え抜いた独創的なアイデアを併用することにより、大阪大学の研究者を中心にグランドチャレンジとも言えるマテリアルデザインの研究が進行している。このような研究は、世界の中でも「阪大オリジナル」とよばれ、マテリアルデザイン手法だけでなく、公財政を投じて開発されたデザインのための計算物理学的手法である第一原理計算コードが一般に無償で公開され、講習会なども行われて多くの研究者や技術者に利用されている。計算手法の開発と公開は、錬金術に例えれば、古代ギリシャのヘルメス哲学を公準とし、鉛などの卑金属を貴金属である金に金属変成する際に不可欠の『賢者の石(The Philosopher's Stone)』の創製に対応している。

物質の原子レベルでの大まかな原子構造配置が決まれば、これを出発点として、第一原理から原子番号だけを入力パラメータとして安定な構造配置、電子状態、物性を予測することは日常的研究として行われている。基底状態での物理量である安定構造配置、格子定数、体積弾性率などは実験と比較し、約1%以内の誤差で定量的に予測することができる。一方、第一原理計算の理論的フレームワークは局所密度近似(LDA)によっているため、励起状態については不十分な点があるが、最近ではLDAを超えるための多くの新規計算手法(beyond LDA)が次々に開発されている。計算機ナノマテリアルデザインのツールとしては、考え抜いたアイデアと併用すれば、物質の存在様式を規定する基底状態については現在でも十分に実用に耐えうるものである。

しかし、マテリアルデザインの本質は、原子の構造配置が与えられたときにその物性を予測する問題の逆問題を解くことである。すなわち、目的とする機能が与えられたときに、膨大な原子構造配置の自由度の中から目的とする機能を発現する最適なマテ

リアルな構成原子種と原子構造配置を見つけてデザインするという、いわば逆問題を解くところに計算機ナノマテリアルデザインの本質がある。このような逆問題は、周期表の100程度の種類の原子の組み合わせを考えても、ほぼ無限の自由度の中からの最適な構造配置を探すことであり、現実的には解くのが難しい。そこで、筆者らは、このような逆問題をストレートに解く代わりに、次のような逐次遍歴的逆問題の解法を採用し、目的とする機能を満たす新機能マテリアルを効率よく発見し、デザインする手法を採用している(図1)。

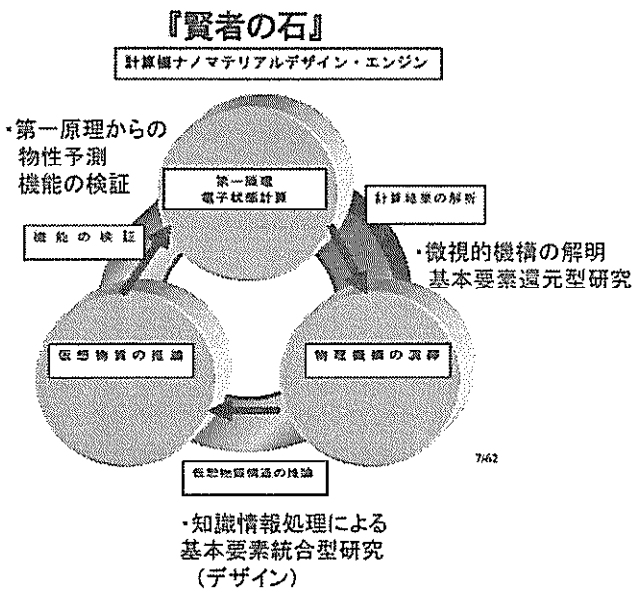


図1：計算機ナノマテリアルデザインエンジンの概念図

計算機ナノマテリアルデザインエンジンは、第一原理計算手法を用いて量子系を支配している微視的機構を解明する基本要素還元型研究と、解明された微視的機構をデータ・ベースとして知識情報処理によりこれらを統合して仮想物質を推論する基本要素統合型研究を両輪として構成されている。デザインした仮想物質は第一原理計算によりその機能や構造安定性を検証し、要求される条件を満足しない場合(大抵の場合は満足しない)はその微視的機構と原因を解明することにより、さらに優れた仮想物質を推論しデザインする。このような基本要素還元型研究と基本要素統合型研究の二つのプロセスを巡回することにより目的とする機能を満足する新物質や新物質創製プロセスを効率よくデザインし、最後に実験

グループによる実証実験を行い、これを検証するという方法論を選択している。これにより、現在では驚くほど多くの新機能物質をデザインすることが現実的になりつつある。そのような例を次に報告する。

固体宇宙における時空の制御と計算機ナノマテリアルデザイン

宇宙という漢字を漢和辞典で調べてみると時間・空間(=時空)という意味であると書かれており【宇=空間、宙=時間、従って、宇宙=時空】、紀元前6世紀にはすでに使われており、古代中国人の直感的自然認識のレベルには驚かされる。人間のスケールからずっと遠くの宇宙(10^{23} - 10^{26} m)を望遠鏡で観測し研究する学問が宇宙物理学であるが、逆に地に足をつけて、顕微鏡で物質を拡大し原子レベルやナノスケールレベル(10^{-10} - 10^{-9} m)で観察・研究すると、そこには、「固体宇宙」という宇宙(=時空)が存在する。21世紀の錬金術師の見る「固体宇宙」では、例えば、スピン秩序に着目すると時間反転対称性の破れによって強磁性状態が発現し、一方、双極子秩序に着目すると空間反転対称性の破れによって強誘電性状態が発現し、また、ゲージ対称性(グローバル・ゲージ対称性)の破れによって超伝導状態が発現する。そこには、宇宙の創世である“ビッグ・バン”に相当する絶縁体・金属転移なども存在する。絶縁体・金属転移により、局在していた電子の波動関数は平面波となって結晶全体に広がるナノ・ダイナミクスはまさに“ビッグ・バン”に相当し、宇宙で展開する生命現象にも匹敵する興味深い物理現象が次々に現れてくる。しかも重要なポイントは、宇宙物理学や高エネルギー物理学における宇宙とは大きく異なり、21世紀の錬金術師の見る固体宇宙では時間反転対称性や空間反転対称性の破れを、第一原理計算に基づいて自由にデザインし、制御し、しかも新機能を作り出すことができる。

極端な例では、時間反転対称性と空間反転対称性を同じ物質の中で破り、強磁性と強誘電性を同時に2相共存させ、量子揺らぎや位相制御を利用し、電場(ゲート電圧)により磁化(帯磁率)を大きく変化させ、また、磁場によって電荷分極(誘電率)を大きく変化させ、巨大物性応答が実現され、これを制御することができる。これを利用し、強磁性体と強誘電

体を融合した新しい機能を持つフュージョン・フェロトニクスやマルチ・フェロイックデバイスへの応用が第一原理計算によるデザインに基づいて行われつつある。また、最近では、酸化物や半導体に遷移金属不純物やB, Si, C, Nなどの非磁性不純をドーピングして、電子相関の比較的強い狭い不純物バンドを制御する「深い不純物バンドエンジニアリング」により、時間反転対称性を破り完全スピン分極した強磁性体を磁性不純物なしで実現し、電子の持つ電荷とスピンの自由度を両方制御する半導体スピントロニクスのための材料デザインなども行われている。このような計算機ナノ材料デザインの結果は、幸いなことにデザインの後に行われた実証実験により多くの新機能材料が現実合成され、現在、多くの特許出願や取得にまでつながっている。

計算機ナノ材料デザインは、21世紀の量子力学(第一原理)計算に基づいたエンジニアリングとして、環境調和材料、高効率エネルギー変換材料(太陽電池、燃料電池、熱電材料)、生体調和材料、環境調和材料、安全・安心のための高感度センサー、生体調和材料などの材料デザインに次々と応用されつつあり、その結果は思いのほかパワフルであり、基礎科学にも大きなフィードバックがあることから、21世紀の科学技術としてその大きな発展が期待されている。

おわりに

密度汎関数理論における局所密度近似(LDA)に基づく第一原理計算の抱える問題とその限界についても多くの指摘がなされている。たとえば、電子相関が主役を演じる遷移金属化合物やf電子系においては第一原理計算が定性的にも正しい結果を与えない場合があります。第一原理計算の発展を支えてきたLDAが、様々な局面で不十分であることは誰しもが認めるところである。このような現状を変革してゆくための研究は、多体電子論の研究者達を中心に進められており、例えば第一原理計算との融合を視野に置いた新しい計算手法の開発(21世紀の『賢者の石』の開発)や現実物質や新機能物質の物性予測やデザインができる人材(21世紀の錬金術師)の育成を目指した新しい人材育成ネットワークなどが実績をあげつつある。計算機ナノ材料デザイ

ンは、これらの背景を視野に入れて、多体電子論のもとづく、LDAをこえる第一原理電子状態計算のための方法論の開発、その成果を踏まえた、次世代量子シミュレータの手法の開発と公開、さらに、これらの次世代量子シミュレーションを用いた計算機ナノ材料デザインとその実証について、大きな発展をもたらす可能性を秘めている。この分野の研究の現状と進むべき研究の方向性、およびその将来展望について紹介した。このような研究を推進することにより、量子力学に基づいた第一原理からの物性予測やデザイン手法である21世紀の『賢者の石』が開発され、それを用いた新物質の材料デザインと実証からなる21世紀の錬金術が現実になってくると思われる。

参考文献

第一原理計算に基づく材料デザインに関する実例

- (1) K. Sato and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys., 39, L555 (2000).
- (2) H. Akinaga, T. Manago and M. Shirai : Jpn. J. Appl. Phys., 39, L1118 (2000).
- (3) K. Sato and H. Katayama-Yoshida : Semicond. Sci. Technol. 17, 367 (2002).
- (4) K. Sato and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys., 40, L485 (2001).
- (5) K. Sato and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys., 40, L651 (2001).
- (6) K. Sato, and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys., 40, L334 (2001).
- (7) K. Sato, P.H.Dederichs, and H. Katayama-Yoshida : Europhysics. Lett. 61, 403(2003).
- (8) K. Sato, P. H. Dederichs, K. Araki, and H. Katayama-Yoshida : Phys. Stat. Solid. c (2003)2855.
- (9) An van Dinh, K. Sato, and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys., 42, L888 (2003).
- (10) M. Seike, A. Yanase, K. Sato, and H. Katayama-Yoshida : Jpn. J. Appl. Phys. 42, L1061 (2003).
- (11) M. Seike, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, Jpn J. of Appl.

Phys.43, (2004) L579-L581.

- (12) K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L934-L936.

第一原理計算に基づくマテリアルデザインを基にした最近の特許出願や取得の例

- (1) 吉田 博, 白井光雲, 道北俊行(特願2004-135971) シリコン結晶中のCu不純物のゲッターリング方法
- (2) 吉田 博・船島洋紀・浜田幾太郎・播磨尚朝・柳瀬 章(特願2004-085615) 二次元酸化物自然超格子を用いた高効率熱電材料とその熱電特性の調整方法
- (3) 吉田 博, 劔持一英, 清家聖嘉, 佐藤和則, 柳瀬 章(特願2004-05517) 遷移金属又は希土類金属などの磁性不純物を含まず, 不完全な殻を持つ元素を固溶した透明強磁性化合物およびその強磁性特性の調整方法
- (4) 吉田 博, 佐藤和則(特願2002-177540, 日本特許第3571034号, 台湾出願92116467, PCT/JP03/07447): 磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置
- (5) 吉田 博, 荒木和也, 佐藤和則(特願2002-166803) (PCT/JP03/07161): 強磁性VI族系半導体, 強磁性III-V族系化合物半導体, または強磁性II-VI族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法
- (6) 吉田 博, 中山博幸(特願2002-156937)(国際出願PCT/JP03/06426): 内殻励起によりグラフェイトからダイヤモンドを製造する方法
- (7) 吉田 博, 佐藤和則(特願2002-019409, 国際出願JCT/JP03/00748): 磁性半導体を用いた円偏光スピントラップレーザーおよびレーザー光の発生方法
- (8) 吉田 博, 佐藤和則(特願2002-019409, 国際特願PCT/JP00/04433, 国際特開WO 01/16411A1, EP特許番号1219731, 韓国特許出願2002-7000066, 韓国特許登録番号0446144): 強磁性p型単結晶酸化亜鉛およびその製造方法
- (9) 吉田 博(日本特許番号第3568394号, 米国特許番号USP6340393B1, 欧州連合特許公開EP 1036863A, 国際特願PCT/JP99/03383, 国際特開WO00/01/01867): 低抵抗n型ダイヤモンドの合成法
- (10) 吉田 博(日本特許番号第3525141号, 米国特許USP6013129, 欧州連合特許公開EP0903429A3): 抵抗率が低いn型又はp型金属シリコンの製造方法
- (11) H. Yoshida et al. Method for Preparing Low-resistant p-type SrTiO₃ (United States Patent: US 6,790,278 B2, Sept. 14, 2004).

この記事をお読みになり, 著者の研究室の訪問見学をご希望の方は, 当協会事務局へご連絡ください。事務局で著者と日程を調整して, お知らせいたします。

申し込み期限: 本誌発行から2か月後の月末日

申し込み先: 生産技術振興協会 tel 06-6395-4895 E-mail seisan@maple.ocn.ne.jp

必要事項: お名前, ご所属, 希望日時(選択の幅をもたせてください), 複数人の場合はそれぞれのお名前, ご所属, 代表者の連絡先

著者の都合でご希望に沿えない場合もありますので, 予めご了承ください。