

電子状態計算のススメ



若 者

小 倉 昌 子*

How I started electronic structure calculations

Key Words : Electronic structure calculation, Density functional theory,
KKR Green's function method

はじめに

今回「生産と技術」に寄稿する機会を与えていただいたので、私が専門にしている電子状態計算について書かせていただきます。「理論計算は難しいもの」というイメージを持っている方も多いので、それを払拭するべくこれまでの私の経験を書こうと思います。「爆笑問題のススメ」みたいなタイトルで申し訳ないですが、これを機に電子状態計算に興味を持ってくださる方がいればよいと思います。

1. そもそもきっかけ

私が電子状態計算をはじめたのは学部の4回生の時である。卒業研究としてCu中不純物のナイトシフトを計算した。このように書くと、4回生の時から物性理論グループに所属してそのままずっと理論計算に浸っているように思われるかもしれないが、その頃私の所属していた大阪大学理学研究科の南園忠則教授の研究室は原子核実験のグループだった。そこでは主に β -NMR法を用いた実験を行っていた。 β -NMR法とは加速器で生成された β 性不安定核をプローブとして用いる核磁気共鳴法で、 β 崩壊の際に β 線が角度分布を持って放出されることを利用している。NMRなので原子核モーメントだけで

なく結晶中の超微細磁場や電場勾配を測定することができ、物性研究にも利用されている。

そんなわけで実験で測定した超微細場や電場勾配を議論するために一部の学生が電子状態計算を習いに同研究科の赤井久純教授のもとに通っていた。その頃私は南園研究室の中でも β 崩壊の対称性に関する研究の班にいたはずなのだが、どういうわけか理論計算を習いに行かされた。その時に教えていただいたのが現在私の専門としているKKRグリーン関数法なのだが、当時は計算コードを使うだけで実際にどんな計算が行われているかなどほとんどわからなかった。大学院に入ってからそのまま同研究室に所属して実験して計算する日々が続いた。

南園研究室で精力的に行われていた研究のひとつに不安定核の四重極モーメントの測定というのがある。NMRで測定する場合、不安定核を植え込んだ結晶中の電場勾配の情報が必要になる。電場勾配が実験的に得られている場合は問題ないが、そうでない場合は電子状態計算から求められた電場勾配の値を使用する。このような点からも原子核物理学における電子状態計算の役割は大きい。

この電場勾配の計算についてKKRグリーン関数法は問題を抱えていた。通常のKKR法ではお互いに重ならないような球を定義し、ポテンシャルはその球の内側で球対称、外側でゼロであるというモデルを用いていた。複雑な構造の結晶になると、このモデルでは定義された球のサイズによって電場勾配の結果が著しく変わってしまうのである。この問題を回避するためにはモデルを一切使わない「フルポテンシャル」の計算が必要である。この問題はずいぶん前から指摘されていて、日本でもずいぶん前にはフルポテンシャルKKRに取り組んだ方がいらっしやっただがうまくいかなかったらしく、当時は皆が



*Masako OGURA
1977年11月生
2004年大阪大学大学院理学研究科物理学専攻
現在、大阪大学大学院理学研究科物理学専攻赤井研究室、助手、博士(理学)、物性理論物理学
TEL 06-6850-6749
FAX 06-6850-5741
E-mail : ogura@phys.sci.osaka-u.ac.jp

尻込みして開発が進んでいなかった。そこで南園先生は自分の研究室でフルポテンシャルKKRの開発を行うことを考えた。ここが南園先生のすごいところだと思うのだが、目的は核構造の解明であるとはいえ、全く別分野の計算手法の開発という仕事に自分の学生を送り込んだりするようなことは普通はしないと思う。このような柔軟性というか総合力というかは私も身につけたいところなのだが及ばない。そんなわけで博士課程1年のときにフルポテンシャルKKRの開発をすることに決めた。博士課程に進学したものの自分の実験を行うためのチームタイムがちゃんと取れるのかもすごく不安だったからというのが第一の理由だったように思うが、計算手法の開発というのがどれだけ難しいかというのはあまり考えていなかった。

2. フルポテンシャルKKR

KKRグリーン関数法というのはKorringa, Kohn, Rostokerによって開発された電子状態計算手法で散乱問題に基づいた手法である。他の手法では固有値問題を解いて電子状態を求めるのに対し、この手法ではその名の通りグリーン関数を計算するのが特徴で、そのために様々な利点がある。KKR法をフルポテンシャルへ拡張するアイデアはずいぶん前にドイツのユーリッヒのグループによって提案されている。だから彼らの論文の通りにひとつひとつ計算を進めていけばいいわけだが、困ったことに詳細に書いてある唯一の論文がドイツ語だった。数式だけは読めるので、仕方なく数式だけ追って本文は適当に解釈(?)してコーディングを進めた。

その頃研究室では数ヶ月単位の長期の実験を延々と行っており、実験中の待ち時間というのがけっこう長かったのでβ線がズビズバいう音を聞きながら(実験室では検出器からのシグナルをスピーカーにも入れている)せっせとプログラムを書いた。まともなプログラムを書いたのはこれがはじめてだったので、自分のシフト中(実験は昼夜2交代制だった)にプログラムを書いて、シフトが明けると赤井先生のところに行って確認していただく、というのを繰り返していた。赤井先生も忙しいのにさぞ迷惑だったと思う。おかげで赤井研究室の同級生から「赤井先生は自分の研究室の学生をほったらかして、よその研究室の学生ばかりひいきしている」みたいなこ

とまで言われてしまった。

そんなこんなでコーディングを進めていったところ、1年もしないうちにセルフコンシステントな解が得られるようになった。ここまでできたのは日本では私をはじめで、よく「成功の秘訣は何か?」と聞かれるのだが、その答えは自分でもよくわからない。強いて言うなら、その昔フルポテンシャルKKRに挑戦した方々は計算を速くするためだとかメモリを節約するためだとかでずいぶんややこしいことをされていたらしい。私は計算時間だとかメモリ容量だとか全く考えないで(それもどうかと思うのだが)、最も単純で最もわかりやすい方法を使って計算を進めたのでうまくいったのだと思う。

セルフコンシステントな解が得られたと言っても、その頃の計算は必ずしも正しい解を出さなかった。例えば、半導体の計算をするとフェルミレベルが価電子帯の端に少しだけひっかかって金属になってしまうことが多かった。この後はこのよううまくいかない原因を追及して計算手法を修正するという作業を長いこと続けた。苦しかったのはこの時期で、よく研究室に泊まりこんで鬱な日々を過ごした。なんとか当初の目的である電場勾配の計算ができるようになったので学位を取得できたが、それから算出した原子核モーメントについては先生方を納得させることができなかった。電子状態計算手法の開発ということで審査していただいた。最初は手法の開発だけで本当に学位が取れるのかしらと思っていたが、私のように一から計算手法を完成させたことのある研究者は意外と少ないらしい。その後は理論グループに移り、フルポテンシャルKKR法を中心とした研究を進めて現在に至る。

3. 計算機マテリアルデザイン

近年の電子状態計算手法の発展により、既存の物質の個別性の起源や機能性の機構を解明することや実験を定量的に議論することだけでなく、望ましい物性や機能を有する新しい物質を計算機上で設計することも可能になってきている。実際に新しい物質をあれこれ作るより、計算機上でシミュレートする方が手軽で早いし、環境への負荷も少ない。それで良さそうなものだけ実際に作ればよいだろう、ということである。このような「計算機マテリアルデザイン」は新しい産業形態の形として関心が高まりつ

つある。特に大阪大学を中心とした電子状態計算のコミュニティでは「計算機マテリアルデザイン」に関する様々な研究・教育プロジェクトを積極的に推進している。

ここ数年、年2回のペースで「CMD (Computational Materials Design) ワークショップ (<http://www.dyn.ap.eng.osaka-u.ac.jp/CMD9/>)」という名前で国内で開発された様々な電子状態計算コードのチュートリアルを行っているが、合宿性のハードな講習会にも関わらず様々な企業や大学、研究機関などからたくさんの方が参加されている。受講生は理論的見解を取り入れたい実験屋さん、新しい物質をデザインして特許を取って一儲けしたい野心家さんなどいろいろであろうが、電子状態計算への関心の高まりを感じる。実験出身の私としては、物質設計まで行かずとも自分の測定し

たものに対して理論計算があればよりよい考察・議論が展開できるであろうし、それが自分で自由にできればさらによりよいことだと思う。電子状態計算手法にも様々なものがあるので、このような講習会に参加して目的にあったものを選んで習得されるのがよいと思う。幸い日本では良い計算コードが無償で公開されているので興味のある方はぜひ挑戦していただきたい。

こうなってくると、開発する側にはより信頼性の高い手法、より使いやすい計算コードの開発が望まれる。電子状態計算は発展してきたと言ってもまだまだできないことがたくさんある。そのような問題を解決するための大きなプロジェクトも進行中であり、私個人としても現状に甘んじることなく研究を推進してゆきたいと考えている。

