

物質設計評価施設の現状と展望

物質設計評価施設長 広井 善二

1. はじめに

物質設計評価施設は物性研究所の第2期組織改編に伴い1996年に設立された。その使命は「DSC サイクル」により物質科学を推進することにある。「D」は Design を、「S」は Synthesis を、「C」は Characterization を意味し、図1に示すように、物質の設計、合成、評価をぐるぐる回転させることにより物性物理学の新しい分野を切り拓くことを目指している。Dを担うのはスーパーコンピュータを擁する計算物理であり、Sは固体化学を基礎とし、Cは基本的なバルク物性測定によってなされる。その最も顕著な成功例は、1999年、当時、上田寛研究室の助教であった陰山氏(現京都大学工学系研究科教授)により見出された銅化合物 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ に関する研究であろう。その特異な量子スピン物性が強磁場磁化測定や NMR 実験などにより詳細に調べられ、複雑な磁化プラトー現象が観測された。その結果は数値計算手法により検討され、さらなる試料合成や物性実験に強い動機を与えた。これら一連の研究は、1つの物質を介して合成・実験・計算が一体となって効果的に相互作用し、新たな物性物理研究の潮流を産み出す典型例となった。DSC サイクルは物質設計評価施設内に留まる概念ではなく、物性研究所全体、さらには、世界的に強相関物質研究全般に渡る基本的な理念として受け入れられつつあると言っても過言ではない。

物質設計評価施設は当初10年時限の組織として設立されたが、国立大学の独立行政法人化に伴う時限の廃止により恒久的な組織となった。2006年には外部評価が行われ、その研究アクティビティーに高い評価を頂いた。特に物性物理学を極めるべき研究所に固体化学グループが存在することの重要性が認識され、他の研究機関に類をみない物理と化学の緊密な連携が物性研の大きな強みとなっていることが指摘された。

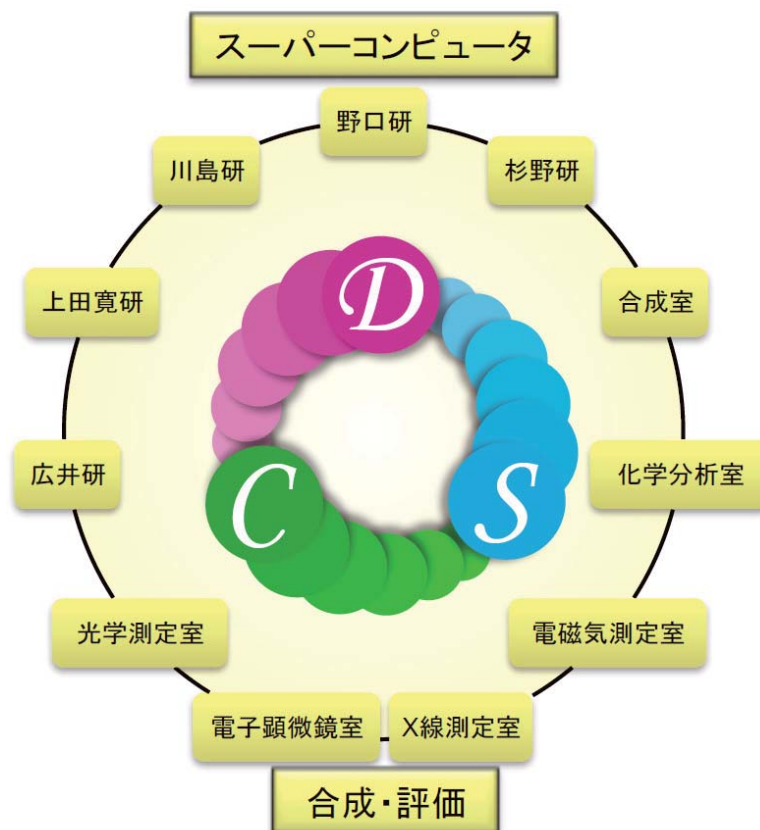


図1 物質設計評価施設の構成と DSC サイクル

2. 現状

図 1 の組織図に示すように、物質設計評価施設には、現在、実験系として上田寛、広井研究室が、計算物理系として川島、野口、杉野研究室がある(杉野所員は物性理論研究部門との兼任)。さらに、合成評価部には、合成室、化学分析室、X 線測定室、電子顕微鏡室、電磁気測定室、光学測定室の 6 実験室があり、それぞれ特徴ある実験装置を有し、上田、広井所員および他の関連所員の協力の下、技術職員と助教により共同利用および所内利用に供されている。一方、設計部は川島、野口、杉野所員の下、技術職員、助教を中心として物性研究専用のスーパーコンピュータを管理運営し、所内外の計算物理コミュニティに貢献するとともに、所内のネットワーク関連の業務を行っている。以下に 5 研究室の最近のアクティビティーに触れ、共同利用の現状については次章で述べる。

上田寛研究室

上田寛研究室は物質設計評価施設発足時からのメンバーとして新奇な物性を示す物質の開発を目的として活動してきた。主な研究成果として、(1) NaV_2O_5 における新奇電荷秩序転移と悪魔の花相図の発見および機構解明、(2) Shastry-Sutherland 格子物質 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の開発と量子化磁化プラトー現象の発見および機構解明、(3) スピネル物質および低次元磁性体における軌道秩序誘起新奇相転移の発見および機構解明、(4) A サイト秩序型ペロフスカイト物質の開発と室温巨大磁気抵抗の実現、(5) ベータバナジウムブロンズにおける電荷秩序転移と圧力誘起超伝導の発見、(6) クロムホランダイトにおける強磁性金属-絶縁体転移の発見および機構解明、などが挙げられる。いずれも固体化学をベースとする物質合成と所内外および海外のグループとの精密物性評価、理論解析の緊密な連携により達成できたものであり、DSC サイクルによる成果と言える。

広井研究室

広井研究室は 1998 年から物質設計評価施設の一翼を担ってきた。新物質探索が主な任務であり、強相関電子系物質、特に、超伝導体の探索に力を注いでいる。主な成果として 2001 年に報告したパイロクロア酸化物初の超伝導体 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ や 2004 年に発見した β 型パイロクロア酸化物 KO_2O_6 におけるラットリング誘起超伝導などが挙げられる。特に後者は、非調和フォノンと伝導電子の相互作用を調べるためのユニークな物質として、現在でも活発に研究が行われている。一方、量子スピン系の物質開発にも力を注ぎ、典型的なフラストレーションの舞台となるカゴメ格子反強磁性体のモデル物質となる銅鉱物の研究を行っている。例えば、2001 年に第一報を出し 2009 年以降再び活発に研究を行っている銅鉱物ボルボサイトは、歪んだカゴメ格子を有し、試料の質の向上と共に磁化ステップや軌道スイッチ転移など興味深い現象が見出されてきたが、未だにその基底状態がよく分からない謎に満ちた物質である。現在、瀧川研による NMR 実験、強磁場施設における磁化測定が進行中である。また、量子スピンカゴメ反強磁性体の基底状態にギャップがあるかないかという積年の課題に関して、スーパーコンピュータを用いた数値計算が行われており、実験との相互作用を通して DSC サイクルを形成しつつある。今後もさらなる新物質探索を通して、物性物理学の新たな潮流を産み出していきたいと考えている。

川島研究室

川島研究室では、2004 年より統計力学的な観点から低次元スピン系・ボーズ系などにおける質的に新しい量子相や、量子臨界現象の研究を行っている。例えば VBS 相などに代表される磁気無秩序相と磁気秩序相との間に現れる特異な相転移現象として脱閉じ込め転移を大規模数値計算によって解明しようとしている。これは、2011 年に物性研究所が HPCI 戦略プロジェクト分野 2 の代表機関となって以降、プロジェクトとしての研究テーマにもなっており、物性研究所共同利用スパコンだけでなく、京コンピュータなども利用して取り組んでいる。冷却原子と光格子系に関しては、ボーズハバードモデルのワーム更新法の改良とそれによる運動量分布関数の計算、ソフトコア双極子相互作用系における超固体の立証、有限温度 Gross-Pitaevski 方程式の精度評価、ワーム更新法の並列化の試みなどを行ってきた。磁性体に関する研究では、物性研中辻グループによる三角格子 $S=1$ 反強磁性体 NiGa_2S_4 の研究結果に触発されて始めた古典モデルの数値計算において、空間対称性の破れを伴う 1 次転移を見出した。また、鉄系超伝導体の母物質における構造相転移と磁気的相転移の間の関係について、有効古典スピンモデルの数値計算に基づく計算により、2 つの転移が隣接して起こるシ

ナリオを提案した。更に、強相関量子系研究にブレイクスルーをもたらす可能性のある新しい手法としてテンソルネットワークが最近盛んに議論されているが、テンソル積状態の一種である 2 次元 AKLT 状態のエンタングルメントスペクトルが 1 次元量子系に対応していることを数値的に立証した。また、テンソルネットワークの一種である MERA の方法を用いて、シャストリサザランド格子上の磁性体モデルに関して、トリプレット励起の超固体状態が存在する可能性を示唆する結果を得た。

今後の展望として、2013 年度からは、量子モンテカルロ法による研究だけでなく、テンソルネットワークなどの新しい計算手法を応用して、スピンと軌道自由度の結合した系における量子現象を解明する計画を立てている。具体的な活動としては、物性研の藤堂グループなど他グループとともに月例の勉強会を柏と京コンピュータのある神戸で交互に開催している。今後はこれを継続し、量子モンテカルロ法など既存の手法では解決不可能であった問題にも取り組む予定である。例えば、軌道スピン相互作用の強い系のあるものは、スピン液体相を持つことで知られるキタエフモデルで良く記述されるのではないかという議論があるが、われわれは、キタエフモデルをより現実物質に近づけたモデルに関して数値計算をすることによって、現実物質における新奇秩序の可能性を検討する予定である。また、冷却原子に関する研究では、グラファイト表面のヘリウム系や回転系など、実験的に実現されつつある状況に即した計算に重点をおいて、新しい量子現象の現実物質における実現に寄与したいと考えている。

野口研究室

野口研究室では、ソフトマター、生物物理について計算機を駆使して研究している。2008 年の研究室発足以降、生体膜やミセルの物性、赤血球や脂質膜からなる小胞の様々な環境下での形態変化などを研究してきた。赤血球や脂質小胞は柔らかく、少しの力で大きく変形することができる。細管中で赤血球がパラシュート状やスリッパ状に変形しながら列を作って流れていくことや、周期的なせん断流において、赤血球や脂質小胞が細胞内外の粘性比などに依存して変形を伴い、多様な運動モードを持つことなどを明らかにした。生体膜の融合、分裂過程についても研究している。最近、膜融合の中間体のひとつの自由エネルギーの計算法を提案した。今後、他の中間体についても自由エネルギーを見積もり、融合の物理的な機構の全容解明に取り組んでいく。新しいテーマとして、細胞小器官の形態の形成機構やせん断流下での界面活性剤の構造形成についても研究を進めている。特に、後者においてはせん断流によってラメラ構造が不安定化し、流れと垂直方向に波打ったロール状の多層膜がシミュレーションで得られている。この構造の散乱パターンは実験で得られているオニオン(多重膜ベシクル)相の前駆構造とよく一致している。今後、京スパコンも用いて大規模計算を行い、オニオン相の形成機構の解明に取り組んでいく予定である。

杉野研究室

杉野研究室では 2002 年の発足以来、物質をスーパーコンピュータ上で数値的に再現させて調べる「第一原理計算法」を用いて物性研究を行っている。研究対象は、炭素系物質から金属酸化物系、固体(結晶や格子欠陥)から液体、さらに、表面・界面系に及ぶ。特にエネルギー変換の物質科学という切り口から、京コンピュータ等を用いて固体・液体界面の反応動力学シミュレーションを行い、燃料電池過程の解明や白金代替の可能性探索などを行ってきた。同時に、レーザー科学等への適用を目指した基礎的な取り組みとして、時間依存密度汎関数法や二粒子グリーン関数法を用いることにより計算対象を励起状態に拡張するための取り組みを行っている。今後は、ますます計算の高精度化、シミュレーションの大規模・長時間化の必要性が高まり、密度汎関数理論等の従来の枠組みを超える新手法の構築の必要性が出てくるものと考えている。これに対応して、本研究室ではテンソルネットワーク解析や多体摂動論にもとづく新たな高精度第一原理計算の開発に注力していく。また、スーパーコンピュータがますます分散処理化する現状に鑑み、通信量を最小化するアルゴリズムの研究を行い、動力学シミュレーションの大規模・長時間化を目指す。より広範な物質や物性現象の理解や予測を可能にするための手法開発を行うことにより、第一原理計算の発展に貢献したいと考えている。

3. 共同利用

物質設計評価施設の合成評価部における様々な実験装置と設計部のスーパーコンピュータは全国共同利用に供されている。それぞれ、外部委員を含む「物質合成・評価設備共同利用委員会」、「スーパーコンピュータ共同利用委員会」（「スーパーコンピュータ課題審査委員会」における審議を経て）で申請課題を審査し、「物質設計評価施設運営委員会」において採択している。さらに、採択課題は所員会、共同利用施設専門委員会において承認される。

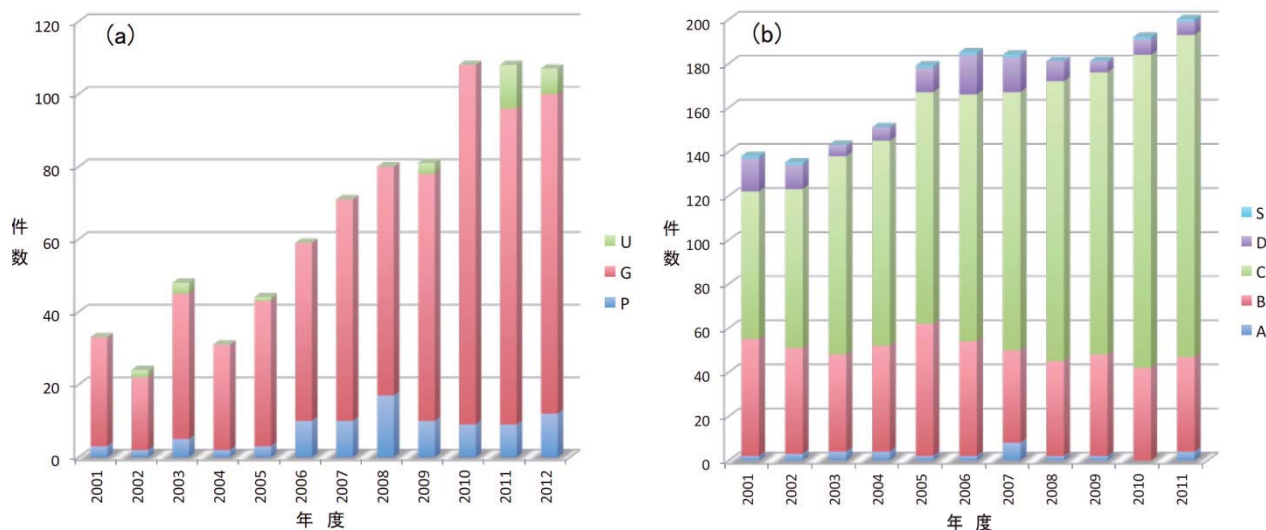


図2 物質合成・評価設備共同利用(a)とスーパーコンピュータ共同利用(b)の採択課題数の年次変化

物質合成・評価設備共同利用には、外部利用者と所内研究者による共同研究を想定した P クラス、通常の装置利用のための G クラス、緊急性を有する課題のための U クラスが設定されている。主力となる装置として、合成室の浮遊帯溶解結晶育成装置やブリッジマン炉、化学分析室の ICP 分析装置、X 線測定室の粉末、ラウエ、単結晶回折装置、電子顕微鏡室の透過および反射電子顕微鏡と局所組成分析装置、電磁気測定室の SQUID 磁束計(MPMS)や多目的物性評価装置 (PPMS)、光学測定室の顕微ラマン分光装置などが挙げられる。図 2 に過去 10 年間の採択課題数の推移を示す。2000 年の柏移転以降、採択件数が徐々に増加し、最近では年間 100 件程度を受け入れている。昨今の厳しい経済状況のため特に地方の大学において研究環境が悪化しており、物質設計評価施設の基礎的な物性評価装置の重要性が高まっていることを反映しているものと考えられる。一方、各実験室は所内利用のための共通実験室としての役割も果たしている。例えば、X 線測定室では毎年 400 名を超える延べ人数の実験が行われており、所内の物質研究の基盤として貢献している。

スーパーコンピュータシステムは 2010 年 7 月に更新され、現在は、疎結合並列計算機(SGI ICE 8400 EX、3840 CPU)にベクトル型計算機(NEC SX-9、64 CPU)を加えた複合システムとなっている。図 2 に示すように、年間申請プロジェクト数は 180 前後、ユーザ数は 500 前後で安定的に推移している。計算機の利用率も主たる SGI 機で 90%前後と非常によく利用されている。また、物性物理学コミュニティの研究者の更なる大規模計算への展開を促すため、大規模並列実行のために占有的利用などを含む特別な利用形態を提供するなどしてきた。更に京コンピュータの後継 CPU にあたる FX10 の導入準備中であり、2013 年 4 月より 4 ラック(384 CPU)が共同利用に供せられる予定である。

4. 今後の展望

物質設計評価施設設立から 16 年が経過した。その間、2000 年の柏移転に伴い大幅な装置更新がなされ、研究および共同利用の活性が高まった。しかしながら合成評価部の各種装置に関しては、時間の経過とともに老朽化が進んで故障が増加し、何らかの手段による装置更新が急務となっている。合成評価部の提供する装置は基本的な物質評価装置であり一見地味な存在に見えるが、新物質の探索や開発には不可欠なものであり、所内外の DSC サイクルの基盤を支えるものである。スーパーコンピュータ共同利用に関しては、物性研究所ユーザコミュニティの特色を更に生かすような機種更新や

運用を行っていく必要がある。物性研究においては、ユーザが既存のソフトウェアを用いて計算するだけでなく、それぞれの個別課題に対してオリジナルなプログラムを作成して計算を行う場合が多い。物性研究所においても、物性物理学における独創的な新手法やアルゴリズムの開発、それらをいち早くとり入れた計算を推奨してきたが、近年はそこに並列化という要素が加わっている。予想される将来の更なる高度並列化の流れに対応し、誰もが簡便に使えるコミュニティコードの開発と普及を進めると同時に、今後の物性研究の原動力となる新手法・アルゴリズムの開発を促進するため、これらに焦点を当てた研究会の企画や資源配分の工夫などを行っていくことが重要である。

近年、物性研究所には国際強磁場科学研究施設、計算物質科学研究センター、極限コヒーレント光科学研究センターが設立され、これに引き続き、現在、部門再編が所の将来問題として議論されている。一方、2013年3月をもって、長年に渡り物質設計評価施設を支えてきた上田寛所員が退職となる。物質設計評価施設はいろいろな意味で変化の時期にあり、今後のあり方に関して議論を始めているところである。DSC サイクルを旗印に進めてきたこれまでの研究の流れを見失うことなく、さらに一歩進んだ次元で新たな物質科学研究の潮流を創ることが出来るよう、物質設計評価施設はその中心としての役割を果たしていきたいと考えている。

この文章は、上田寛、川島、野口、杉野所員の協力の下に書かれたものである。また、日頃から物質設計評価施設の活動を支えてくれている多くの助教、技術職員、特任専門職員、非常勤職員、及び、共同利用係の事務職員の方々に感謝する。