

4. 特集：マテリアル・シミュレーションの動向

－ 第 1 原理 計算 を 中心 として －

材料・製造技術ユニット 高野 潤一郎

4.1 はじめに

物質・材料(マテリアル)研究で、シミュレーションが用いられることが多くなってきた。10 年ほど以前には、マテリアル研究においてシミュレーションが用いられる例も少なく、活用例があってもマテリアル研究に対して実際に有益な効果を果たしたと言える例はほとんど見られなかった。しかし、コンピューター性能の急激な向上(科学技術動向 2001 年 10 月号特集記事「スーパーコンピュータの動向」参照)、シミュレーション手法の進展、ナノ(ナノは 10 億分の 1)テクノロジーに代表される微小領域における実験技術の向上といった背景に支えられ、その状況が変わりつつある。

現に、総合科学技術会議が策定した「ナノテクノロジー・材料分野推進戦略(2001 年 9 月)」の中にも、5 つの重点領域の 1 つとして「計測・評価、加工、数値解析・シミュレーションなどの基盤技術と波及分野」が挙げられ、またこの領域における今後 5 年間の達成目標の一つとして、

- ・ 新規材料並びに新デバイス開発におけるシミュレーション活用の定着

が挙げられている。

本稿では、ナノテクノロジーの基盤技術の1つであるマテリアル・シミュレーションの現在の水準について解説し、新規マテリアルの創製研究におけるシミュレーションの利用率向上へ向けた取り組みの必要性を提起する。

4.2 マテリアル研究におけるシミュレーションの役割

マテリアル・シミュレーションはマテリアル研究における「ツール」であり、かつ「計算機実験(模擬実験)」という研究方法である。研究者は、必要に応じて「アイデアを検討する(試してみる、確認してみる、実験し

てみる、…)」ために、精密な装置などを用いる実験に代わり、コンピューターを用いてシミュレーションを行う。

ここで、ナノスケールのマテリアルを対象としたシミュレーションの特長とそれぞれの実例を以下に挙げる。

特長 1) マテリアル開発の迅速化・低コスト化

シミュレーションによってマテリアルの構造、物性、現象を予測し、考えられうる実験の中から最低限必要な実験を選定する。このようにして研究開発に必要な実験回数を減らし、マテリアル開発の迅速化・低コスト化に貢献できる。

・特長 1) の例

半導体デバイスを作製する際には、金属配線に高密度電流が流れることが原因で金属原子が移動する「エレクトロマイグレーション」という現象が問題となることがある。某電機メーカーでは、エレクトロマイグレーションによる金属配線の断線を防止するための添加元素の選定や、剥離を防止するための下地膜マテリアルの選定に原子レベルのマテリアル・シミュレーションを適用し、試行錯誤的な繰返し実験のみで行うと 1 年間程度かかるマテリアル設計を 4 ヶ月にまで短縮することができた。(情報提供は京都大学大学院工学研究科の北村隆行教授)

特長 2) 実験による検証が困難あるいは不可能な事象を、電子論的、原子論的に理解

原子の時々刻々の挙動をシミュレーションによって直接観察することにより、研究対象となっている事象がどのような電子論的、原子論的メカニズムに基づくものかということ、解析することができる。また、マテリアル内部の状況や、極短時間の内に起こる化学反応などの現象に関する情報を得ることができる。

・特長 2) の例

新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) から委託を受けた技術研究組合オングストロームテクノロジー研究機構 (ATP) と産業技術総合研究所 (AIST) を母体とする産官学の集中共同研究体制であるアトムテクノロジー研究体 (JRCAT) およびマックスプランク固体物理研究所 (独国) の共同研究で行った第一原理計算 (第 4.4 節にて解説)により、高強度で各種成型品や繊維に利用されるポリエチレンやポリプロピレンの製造に欠かせないチーグララー・ナッタ触媒が、化学反応においてどのような役割を果たし、どのようにして反応が進むのかというメカニズムを解明できた。

この化学反応は非常に速く、極短時間の内に進行するため、実験により直接検証することが不可能であったため、反応過程の詳細はほとんどわかっていなかった。この研究成果は製造技術の高度化や改良に役立てることができるとして期待されている。

このように複雑な化学反応における原子、分子の振る舞いは、実験だけでは解析できない点が多く、マテリアル・シミュレーションの果たす役割は大きい。

次に、マテリアル研究において、マテリアル・シミュレーションが、どの程度、また、どのような特長の活用を目的として用いられているかを俯瞰するため、学会の学術講演会の動向を見ることとする。数多くの学会でマテリアル・シミュレーションに関する研究成果報告が行われているが、ここでは研究現状の一断面を示す例として (社) 日本金属学会における例を紹介する。

(社) 日本金属学会の春期、秋期の学術講演会では、毎回 1000 件以上の発表がある。東北大学金属材料研究所の川添良幸教授は、「10 年前には数件のみだったシミュレーション関連の研究成果報告が、近年では全講演件数の 1 割程度を占めるようになってきている。」と述べている。

また、科学技術動向研究センターで調査したところによると、2001 年秋期学術講演会における全講演 1388 件の内、マテリアル・シミュレーションに関係の深いと思われる研究成果報告は 120 件あり、これは全講演の 8.6% であった。

4.3 第 7 回技術予測調査におけるマテリアル・シミュレーション

文部科学省科学技術政策研究所では、長期的視野に立って科学技術の発展の方向を探ることを目的とし、1971 年からほぼ 5 年ごとに、大規模かつ網羅的な「技術予測調査」を継続的に実施してきている。2001 年 7 月に公開された最新の第 7 回技術予測調査は、17 の分野にわたって、1000 を越える調査課題を設定し、4000 名近い各分野における専門家の協力の下に実施された調査である。

本調査の「材料・プロセス」分野における全 103 調査課題の内、マテリアル・シミュレーションに関連する 4 課題を図表 1 に示す。

図表 1 の 4 課題のうち、ナノメートルスケール以下での貢献が特に期待される「第一原理計算」(第 4.4 節にて解説)に関連した (3) の課題に着目した。様々な調査項目に対する、材料・プロセス分野全課題への回答平均と、(3) の課題への回答を比較した結果を図表 2 に示した。

また、

- ・ 材料・プロセス分野の全課題について実現予測年を平均すると 2016.6 年であり、課題 (3) の 2018 年は、ほぼ全体平均と同程度である
- ・ 課題 (3) で、現在第一線にある国として回答者が選択したのは、米国 (86%)、日本 (36%)、EU (26%) の順であった (複数回答のため合計は 100% となっていない)

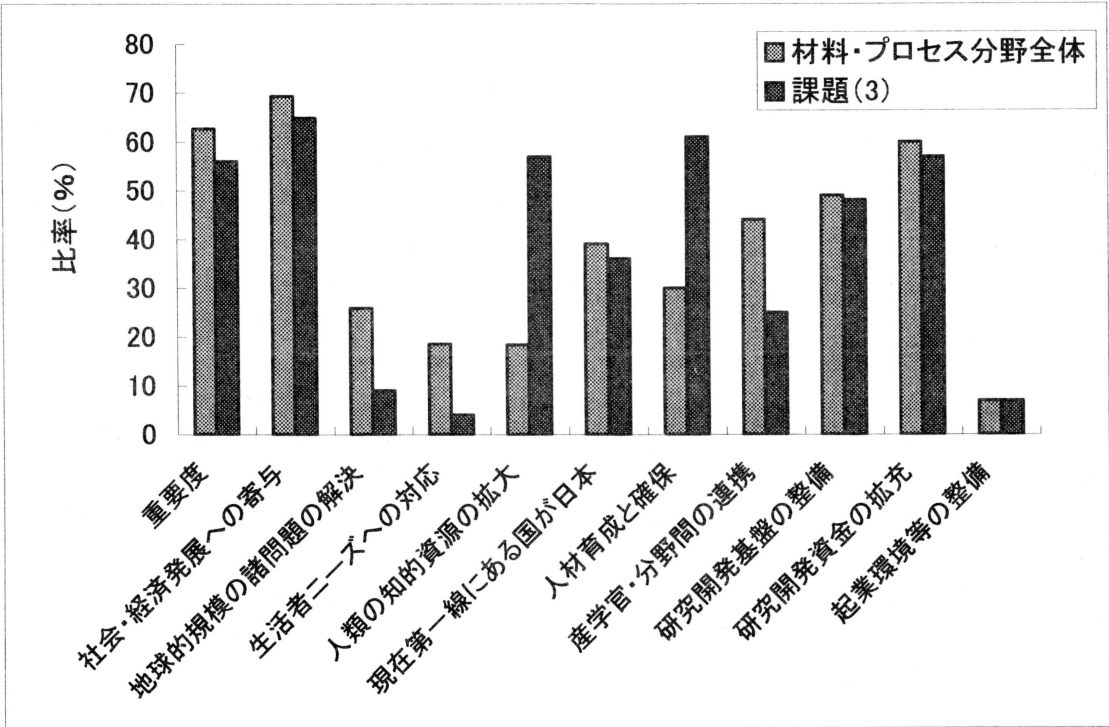
という調査結果が得られている。

図表1 第7回技術予測調査におけるマテリアル・シミュレーション関連課題

マテリアル・シミュレーションに関連の深い技術課題	重要度(%)	実現予測年
(1)コンピュータによる金属系材料の理論的性能設計が可能となる。	55	2016
(2)必要な組成、組織、物性をもつ固体触媒のコンピュータ支援材料設計法が実用化される。	54	2017
(3)第一原理計算に基づいたシミュレーションにより、所定の特性をもつ材料を設計する技術が実用化される。	56	2018
(4)多元系材料において元素組成を与えると、熱平衡状態における構造と物性を厳密に予測し得るコンピュータシミュレーション技術が開発される。	49	2018

(科学技術動向研究センター作成)

図表2 材料・プロセス分野全体の回答平均と課題(3)の回答の比較



(科学技術動向研究センター作成)

4.4 現在の第一原理計算の水準

マテリアル研究の分野では、原子の集合体であるマテリアルの機能がどのようにして発現するのかといった事柄を、個々の原子の電子状態、位置、相互作用、およびこれらの時間変化等の理解を通じて解明し、その機構を積極的に制御することで革新的な機能を持つマテリアルを創製することが重要な研究テーマである。

現在、ナノメートルスケールにおけるマテリアル・シミュレーションについて、これらの要求を満たすために、「第一原理計算」と呼ばれる手法の確立に向けた研究、およびこれを実際のマテリアル研究に適用する研究が進められている。

われわれが日常目にする世界を記述するのは古典力学の基礎方程式であるが、30 ナノメートル程度以下の世界を記述するのは量子力学の基礎方程式で

ある。量子力学の基礎方程式を解く条件を変えることにより、ナノメートルスケールでの種々の物性値が得られる事が知られている。この手法は、実験結果を計算のパラメーターとして一切用いないという、非経験的な計算を行い、求める情報を得るという研究手法であり、「第一原理計算」と呼ばれる。

様々なシミュレーション手法がある中で、第一原理

計算が注目されているのは、実験結果によって決定すべき経験的パラメーターを含む従来のシミュレーション手法とは異なり、量子力学の基礎方程式に基づいて種々のマテリアルの電子密度分布を求めることで、その構造、電子状態、物性を定量的に予測できるほとんど唯一の手法であると考えられているためである。

図表3 第一原理計算の計算規模と産業応用例

計算規模 (Flops)	▼現時点					
	1T	10T	100T	1P	10P	100P
第一原理計算で扱える 原子数* (24CPU 時間以内)	10^2	$10^3 \sim 10^4$		$10^5 \sim 10^6$		
ナノテクノロジー 関連分野	●結晶構造予測					
	●低分子材料構造、機能予測					
	●有機材料機能予測					
	●化学反応予測					
	●反応条件最適化					
	●蛋白質構造解析・創薬					
	●半導体機能予測					

*ここでは演算量が原子数の1から2乗に比例する高速アルゴリズムが実用化すると仮定している。
(出典: (株)日立製作所 機械研究所)

では、現時点における第一原理計算の水準はどの程度なのだろうか。

第一原理計算は、結晶構造を持つマテリアルの構造、電子物性の解明や解析への応用は可能な水準にある。

例えば、シリコンの格子定数や弾性定数に関する計算では実験結果と 1%以内の精度でシミュレーションが可能である。

また、当初シミュレーションによって得られたアルミニウムや鉄から成る人工格子の磁気モーメントが実験値と合わないと言われていたが、実験精度が向上し、理想的な単結晶や人工格子が作製できるようになってくるにつれて、実験値がシミュレーションで得られた値と一致した例もある。

図表3は、現在最高水準の性能を持つスーパーコンピュータを24時間稼働させた場合の、計算規模、第一原理計算で扱える原子数などについてまとめたものである。

研究現場では、大規模な高性能コンピュータを一研究者が独占して使用することは困難である。仮にコンピュータを独占できたとしても、新規デバイス設計に最適なマテリアルを探索するのに、1回のシミュレーションで1ヶ月を要しては、12種類のマテリアルの中から最適なマテリアルを選択するためだけに、高性能コンピュータを1年の間、連続稼働させる必要が生じるが、これはとても現実的とは言えない。実際に、各研究者に割り当てられたコンピューター性能、利用環境上の制限の中で第一原理計算を行うには、数百個の原子を扱うのが精一杯である。

つまり、一辺 10 個の原子が存在するとして 3 次元のマテリアルを考えると、 $10 \times 10 \times 10 = 1000$ 個の原子を扱う必要がある。しかし、現在のコンピュータの性能および利用環境では 1000 個すべての原子に対して第一原理計算を行うことは現実的ではなく、一辺が 10 個の原子からなる立方体よりも小さなマテリアルに対してしか適用できないというのが実状である。

そこで、図表 3 の第一原理計算関連分野という欄に示したような、実際のマテリアル研究に役立つ第一原理計算を行うには、「ペタフロップス・コンピュータ（図表 3 では、計算規模が 1P と表示されている）」の登場が待たれている。（ペタフロップス・コンピュータは、1 秒間に 1000 兆回以上の演算の実行が可能。）

そして、このペタフロップス・コンピュータの登場時期については、第 7 回技術予測調査の情報・通信分野において、2013 年に「100 万プロセッサを結合した演算速度 1 Peta Flops 級の並列コンピュータが実用化される」との予測結果が得られている。

現在よりも大きな空間スケール（より多くの原子が関係する構造、物性、現象の研究に必要）、および長時間スケール（より長い時間にわたる現象の研究に必要）を取り扱えるようになるには、コンピュータ性能の向上のみならず、「シミュレーションに必要な計算量を減少させる手法」の開発が必要であるとして、研究が急がれている。

現在、第一原理計算で取り扱う原子数を N とした場合、計算量は大雑把に言って、 N^3 に比例する。ここで、 m はシミュレーション手法によって異なるが $m = 2 \sim 7$ であり、取り扱う原子数を 10 倍にすると、発生する計算量がおおよそ 100 倍から 1000 万倍に増大するため、シミュレーションで扱う原子数を簡単に増やすことはできないというのが現状である。

そこで多くの研究者が、 $m = 1$ に近づけるため「オーダー N 法」と呼ばれる手法（原子数を 10 倍にしたときの計算量の増大を元の計算量の 10 倍程度に抑える手法）の開発に取り組んでいる。

第一原理計算で取り扱える原子数を増やすためには、シミュレーションの前提となる基礎理論も重要である。

例えば現在、超伝導体の構造、構成元素や超伝導転移温度のような物性値を予測することはできない。

しかし、強相関電子系を扱う理論が確立されれば、その理論を取り込んだ第一原理計算によって、超伝導体の構造や物性値を予測できる可能性があるとして、研究が進められている。

4.5 おわりに

カーボンナノチューブに代表されるような、原子スケールで不純物や構造の乱れがない理想的な系における研究は、実験上の技術的困難などのため、シミュレーションによる理論研究が先行してきた。

しかし、近年の微細加工をはじめとするナノテクノロジーの進展により、半導体産業などでは、シリコン原子が 100 億個あるうちに 1 個の不純物原子がある程度という極めて清浄な系を扱う実験技術が増えてきている。このように極めて不純物が少ないマテリアルを作製できるような実験技術等が開発されてきたために、シミュレーション結果を実験結果の比較が可能となってきた。

今後は、実験結果とシミュレーション結果の直接比較が量的に増大し、そのフィードバックによりシミュレーションの精度や信頼性といった質の向上が期待できる。

また次に示す例でわかるように、今後のナノテクノロジーの着実な推進のためには、実験技術の高度化や理論の構築に対する、高精度・高信頼性のシミュレーションによる支援が欠かせない。

・走査型トンネル顕微鏡 (STM) や原子間力顕微鏡 (AFM) は、ナノテクノロジーにおける重要な実験手段である。STM や AFM では表面状態に関する原子スケールの像が得られる。STM や AFM の探針先端に位置する原子と試料表面原子の間の量子力学的な相互作用を高精度にシミュレーションした結果と得られた原子スケールの像を対応させて比較することにより、観察した試料表面に関するより精確な情報が得られる。

このように、ナノメートルスケールの実験手法においてシミュレーションが果たす役割は大きい。

・現在の実験技術では観測できない、極めて短時間に起こる化学反応メカニズムの解明など、ナノテクノロジー推進の基盤となる種々の理論の構築に対するマテリアル・シミュレーションの貢献も非常に重要である。

ところが、第7回技術予測調査の結果である図表1、図表2を見ると、マテリアル・シミュレーション関連課題の重要性が材料・プロセス分野全体の平均よりもやや低くなっている。材料・プロセス分野の研究者でさえも、ナノテクノロジーを推進する上で基盤技術であるシミュレーションの重要性を十分に認識しているとは言えない状況がうかがえる。

近い将来、ペタフロップス・コンピューターの実現等によって、シミュレーションによるマテリアル設計が実用的になったとき、「マテリアル・シミュレーションを十分に活用できるかどうか」が、各研究組織の「研究開発力の格差」に少なからず影響を及ぼすのではないだろうか。

各研究組織における、ナノテクノロジー・材料分野の研究開発力および競争力の維持・向上を目的とし、今のうちから、新規マテリアルや新デバイスの研究開発におけるシミュレーションの活用率を向上させ、理論研究と実験研究の協働スタイルを定着させるなど、マテリアル・シミュレーションへの注力を図る必要があるだろう。