

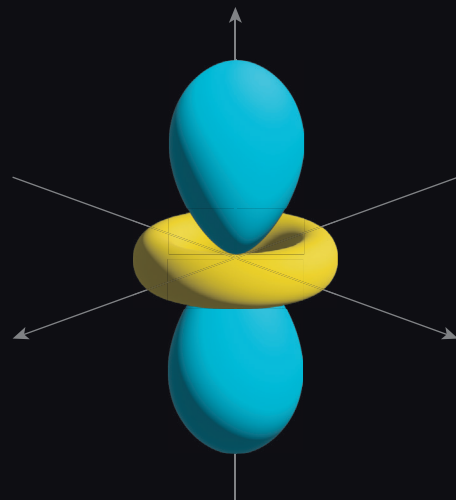
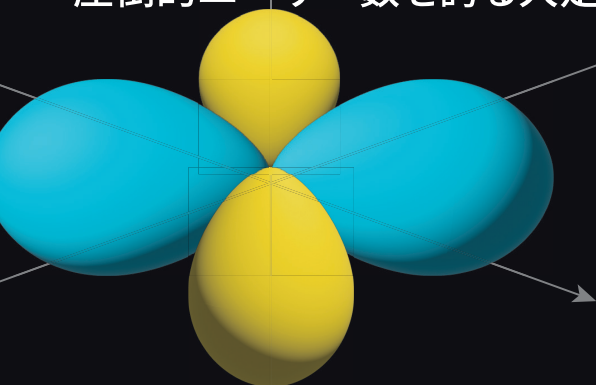
NIMMS NOW

NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS SCIENCE

2026
No.2

Phonopy

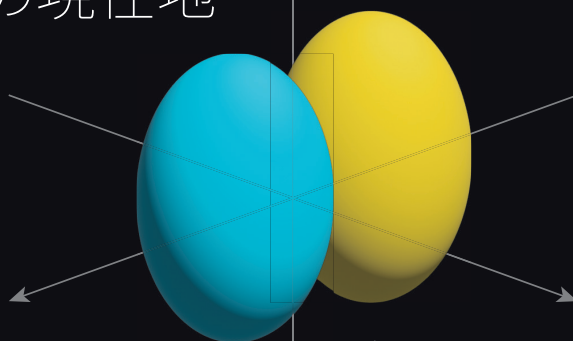
圧倒的ユーザー数を誇る大定番



ALANMODEE
フォノン計算の難題に一手

計算プログラム 大進化

研究を駆動する
静かなるエンジンの
現在地



近似の限界を突破

TurboRVB

CONQUEST

超大規模計算の先駆者



計算プログラム 大進化

研究を駆動する 静かなるエンジンの現在地

物理法則に基づく膨大な計算を実行し、
現象の裏付けや予測を可能にする、計算プログラム。
これをオープンソースのソフトウェアとして公開し、
世界中の研究者が利用できるツールとする取り組みは、
現代の科学においてスタンダードとなっている。

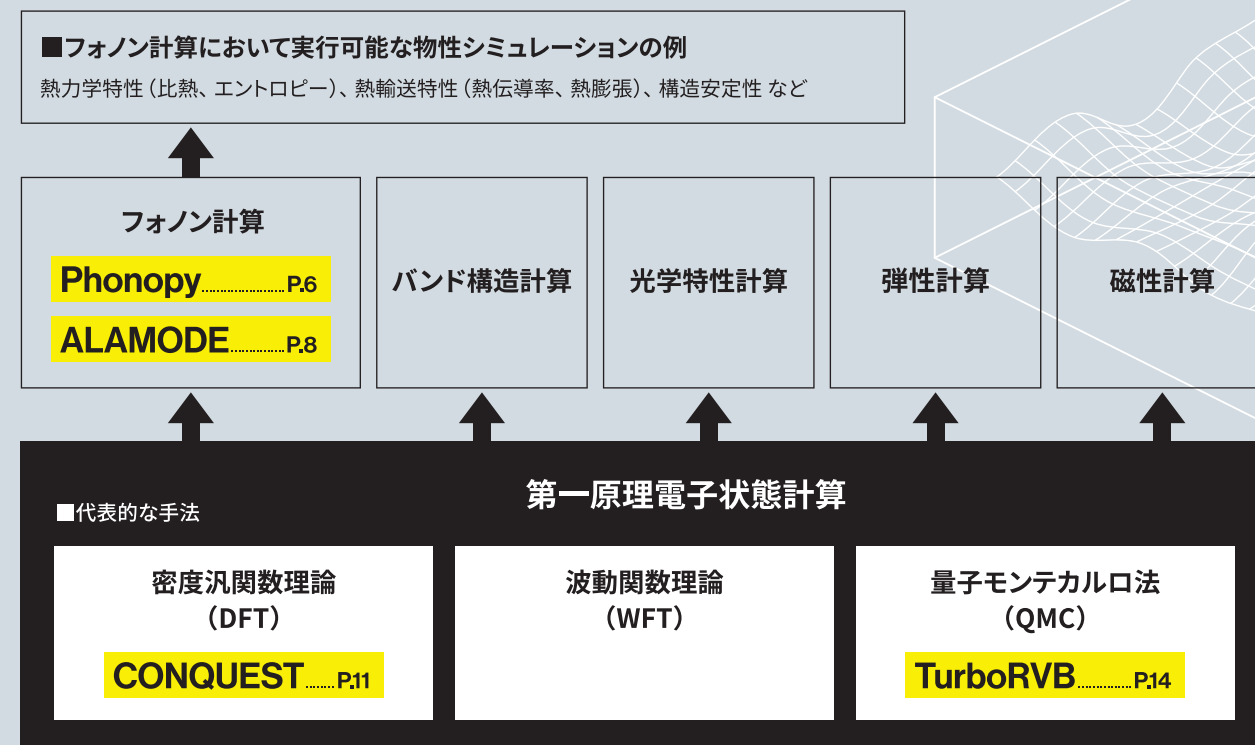
NIMSからも、世界中の研究者が重用する計算ソフトウェアが発信されている。
圧倒的な汎用性を備えるものから、計算規模の拡大や精度の向上に寄与するものまで、
その強みはさまざまだ。

しかも、それらのソフトウェアは日々進化を続けている。
新たな機能の拡充以外にも、OSの更新や計算機の性能向上に応じた最適化など、
その開発や維持は、地道な作業の連続だ。

本号では、研究を静かに、しかし力強く前進させるソフトウェアと
その開発者に光を当てる。
彼らはいかにして複雑な理論を誰もが使えるツールへと昇華させ、
材料研究の新たな地平を拓いているのだろうか。

NIMS発信・4つの計算ソフトウェアの位置づけ

現代の計算科学では、ほぼすべての物性シミュレーションは「第一原理電子状態計算」という1つの土台の上に成り立っている。まず、電子状態計算によって物質のエネルギーや原子に働く「力」といった、最も基本的な物理量を決定する。その値を入力情報として、具体的な物性を予測するための各種計算へと展開していく。なかでも「フォノン計算」は、材料の熱物性や構造安定性を予測できるきわめて重要な計算項目だ。以下に、本号で紹介するソフトウェア、「Phonopy」「ALAMODE」「CONQUEST」「TurboRVB」の位置づけを示す。



$$m \frac{d^2 r}{dt^2} = F$$



$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = H\Psi$$



機能性材料が魅せる性質、そのカギを握る

“フォノン”を計算する

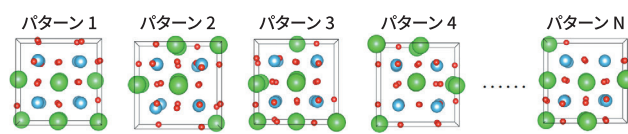
フォノン——多彩な物性の源

結晶中の原子は規則的な骨組み（格子）を形成し、絶えず集団で振動している（格子振動）。この振動は物質中を波として伝わるが、そのエネルギーはあたかも粒子かのようにとびとびの値しかとらない。固体物理学では、この格子振動のエネルギー単位を「フォノン」という仮想的な粒子として扱うことにより、現象の理解や予測に役立ててきた。フォノンのふるまいへの理解は、材料の機能を設計するうえで重要だ。なぜなら、物質が示す根源的な性質の多くに、フォノンが深く関わっているからだ。たとえば、電子がフォノンに衝突して進行を妨げられることが、金属の「電気抵抗」の重要な起源になる。絶縁体の「熱伝導」も、フォノン同士のぶつかり合いに起因する現象だ。さらに、原子の振動が不安定になれば、結晶構造がガラリと変わる「相転移」が起こる。超伝導や熱電変換、形状記憶——機能性材料が魅せるさまざまな特性のカギを握るのが、まさしくフォノンなのである。

フォノン計算のフローの一例

フォノン計算ソフトウェア

STEP1 構造変位データの作成



第一原理電子状態計算ソフトウェアの“司令塔”として、原子を意図的にずらした構造変位データを複数用意する。

STEP3 バネ定数の算出

第一原理電子状態計算ソフトウェアから、STEP2で算出された膨大な「力」のデータを受け取る。原子の変位と力の応答の相関から、結晶を構成する原子間のバネの硬さ（バネ定数）を統計的に逆算する。

STEP4 原子の振動状態を算出し、物性予測へ

STEP3で求めたバネ定数を物理法則（主にニュートンの運動方程式）に代入すると、まずは原子の振動モードと振動数が明らかになる。さらに、その結果をもとに、比熱や構造安定性といった、具体的な物性のシミュレーションへと展開できる。

どうやってフォノンを計算するか

では、どうすればフォノンのふるまいを計算できるのか。その基本となる考え方が、原子同士を仮想のバネでつないだ「バネモデル」である。結晶中の原子を安定な位置から動かすと、原子をつなぐバネが、元の位置に戻ろうとする力（復元力）をもたらす。この復元力に基づき“バネの硬さ”（バネ定数）を算出することが、フォノン計算の核心だ。そして、それを物理法則（主にニュートンの運動方程式）に当てはめてフォノンの振動を予測する。これがフォノン計算の大まかなフローだ。

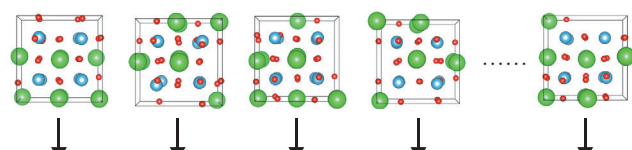
それに欠かせないのが「第一原理電子状態計算」だ。これは実験値によらず、物理の基本法則である量子力学のみに基づいて物質中の電子状態を求める計算手法である。この計算によって、原子に働く「力」を高い精度で求めることができる。なかでも、材料科学の分野では「密度汎関数理論（DFT、P.10に解説）」が重用されている。

ただし、原子を1つずつ動かすだけではバネの特徴を正確に把握できない。なぜなら、バネ定数は原子がおかれた環境（周囲の原子の種類・数など）によって変化するうえ、3つ以上の原子が互いに影響を及ぼす複雑なバネも存在するからだ。そのため、複数の原子をさまざまな方向に動かし、そのときに働く力の変化を第一原理電子状態計算で何度も計算する必要がある。

これらの計算フローでは、第一原理電子状態計算ソフトウェアとフォノン計算ソフトウェアが緊密に連携する（下図）。

第一原理電子状態計算ソフトウェア（主に DFT）

STEP2 各原子に働く「力」の算出



カ1 カ2 カ3 カ4 …… カN

STEP1で作成された構造変位データそれぞれにおける電子状態（エネルギーや分布）を、量子力学に基づいて計算。そこから各原子に働く「力」のデータを精密に算出する。

「Phonopy」と「ALAMODE」、適材適所のフォノン計算

世界中の研究者が利用するフォノン計算ソフトウェアが、NIMSから発信されている。その名も、「Phonopy」と「ALAMODE」。

低温下では原子の変位が小さいため、バネは「伸びた距離と復元力が比例する」という理想的なふるまい（調和性）をよく示す。ところが、温度が上がって原子の振動が大きくなるにつれて「バネの硬さが変化する」といった“理想からのズレ（非調和性）”が顕著になる。現実世界で材料が示す複雑な性質は、この調和性と非調和性の両方によって決まる（NOTE参照）。

東後篤史が開発・運用するPhonopyが扱うのは、理想的なバネだ。そのバネ定数を求めることにより、結晶構造の安定性や比熱、熱膨張といった基礎的な物性を予測できる（調和近似）。Phonopyはその汎

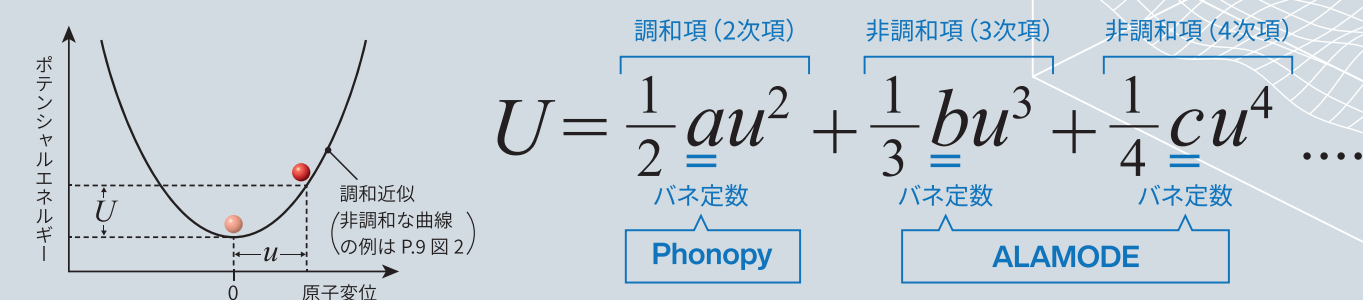
用性はもちろん、計算を高速化する独自のアルゴリズム設計や、インストールのしやすさといった操作性においても、ユーザーから絶大な支持を得ている（P.6参照）。

一方、只野央将が開発・運用する「ALAMODE」は、非調和性を精密に扱うことに特化している。有限温度下で顕著になるこの複雑な性質を巧みに計算に取り入れることで、有限温度での構造安定性や相転移の起こりやすさなど、調和近似では扱えない高度な物性の予測を可能にした（P.8参照）。

基礎物性の土台を築くPhonopyと、現実世界の物性の核心に迫るALAMODE。両者は互いを補完しながら、フォノンの世界を鮮やかに描き出している。

NOTE

エネルギーを複数の“バネ”で分解する



フォノン（格子振動）に起因する物性を予測するためには、結晶を構成するすべてのバネの硬さの指標、すなわち「バネ定数」を求める必要がある。

このバネ定数を求めるためには、「原子の変位 u 」に対する「ポテンシャルエネルギーの変化量 U 」を調べなければならない。その関係性を視覚的に示したものが「ポテンシャルエネルギー曲線」だ（左上図）。しかし、計算の出発点では、この具体的な形は未知だ。

そこでフォノン計算では、まず U を、右上のような単純な数式の足し合わせでモデル化（テイラー展開）する。この関数の「傾き」が、原子に働く「力」に対応する。次に、第一原理電子状態計算（主に DFT）により、さまざまな「変位 u 」に対する、原子に働く「力」のデータを大量に収集する。そして、モデルから得られる力と第一原理電子状態計算で求めた力が最もよく一致するように、バネ定数 (a, b, c) を決定する。

このバネ定数は、曲線の理想的な放物線を決定づける「調和項」の係数と、その歪みを示す「非調和項」の係数に分類される。PhonopyとALAMODE、それぞれが扱うバネの種類とそれによって予測できる物性は、右表の通りだ。（非調和項は5次以降も存在するが、物性への影響が小さいため、通常の計算では考慮しない）

各ソフトウェアの計算領域

	Phonopy	ALAMODE/ Phono3py*	ALAMODE
扱うバネ定数	調和項 (2次項)	非調和項 (3次項)	非調和項 (4次項)
バネの性質	常に硬さが一定の、理想的なバネ	伸び縮みの方向で硬さが異なる、非対称なバネ	温度で硬さが変化する、さらに動的で複雑なバネ
計算できる物性	フォノン分散、比熱、結晶の構造安定性、熱膨張など	熱伝導率	有限温度での構造安定性、相転移、精密な熱伝導率など

* Phono3py…Phonopyをベースに東後が開発した非調和項のフォノン計算ソフトウェア。

Data

利用環境

Linux, macOS, Windows

計算対象

固体結晶

予測できる物性

フォノン分散、比熱、結晶の構造安定性、熱膨張など

公式サイト

<https://phonopy.github.io/phonopy/>

Atsushi Togo

東後 篤史

マテリアル基盤研究センター
材料科学計算基盤グループ
グループリーダー圧倒的ユーザー数を誇る
フォノン計算の定番ソフトウェアPhonopy^{フォノパイ}

幅広い材料の基礎的なフォノン計算を実行できるソフトウェア「Phonopy」。今や世界中の研究者が使うツールとなっている。Phonopyは、なぜユーザーから高い支持を得ているのか。開発者であり、機能拡張やメンテナンスを続ける東後篤史グループリーダーに聞いた。

フォノン計算を“当たり前”に

Phonopyは、目に見えないフォノンのふるまいを数学的に解析し、物質の性質を予測できるオープンソースソフトウェアです。フォノンの周波数や分散、比熱、熱膨張など、基本的な特性をさまざまな材料に対して計算できます。Phonopyが行う計算は、いわゆる「調和近似」と呼ばれるものです。これは、原子同士がぶつかり合うような複雑な効果は無視し、原子同士が「フックの法則^{*1}」に従う理想的なバネでつながっていると捉えた単純なモデルですが、実はこれだけでも物性の本質的な部分の多くを捉えることが可能です。

Phonopyが登場するまで、こうした計算は一部の専門家だけが行うことができる領域でした。それを誰もが手もとのパソコンで実行できるツールとしてリリースしたことにより、「フォノン計算をするなら、まずはPhonopy」と言われるまでになりました。実際、Phonopyに関する私たちの論文は、2015年に公開してから1万件以上引用されています (A. Togo and I. Tanaka, Scr. Mater. 108, 1 (2015))。

高速計算のカギは、結晶構造の対称性

Phonopyは、「第一原理電子状態計算ソフトウェア」と連携してフォノン計算を実行します (P.4 にフロー図)。このうち、最も計算負荷が高いのは電子状態計算の部分で、Phonopy自体の計算コストは個人のパソコンで行えるほど軽く、単純な構造の結晶であれば瞬時に完了します。この高速性は、私がPhonopyを開発するうえで特に注力した点です。その戦略の1つが、「結晶構造の対称性」をうまく利用することでした。

たとえば、桜の花を描くとしたら、まず5枚の花びらのうち1枚を丁寧に描き、それを72度ずつ回転させて配置すれば、労力は5分の1で済みます。それと同じで、結晶のほとんどは高い対称性をもつため、一部さえ精密に計算できれば全体の性質を予測できます。たとえば立方晶の多くは、計算対象を構造全体の48分の1にまで抑えることが可能です。

そこで、私はPhonopyの開発に先立ち、結晶構造の対称性を自動的に特定するプログラムの開発に取り組みました。具体的には、ユーザーが原子の種類や座標などのデータを入力するだけで対称性を自動判定し、結晶の最小単位のブロックを見つけてくれるアルゴリズムを設計しました。これを、フォノン計算の最初のステップである、「第一原理電子状態計算ソフトウェアに対して計算範囲の指示を出す工程 (P.4 計算フロー^{STEP1})」に組み込んだことにより、Phonopyは計算コストの劇的な削減に成功しました。

ちなみに、この対称性を特定するプログラムは「spglib」として単体でも公開しています。今では世界中のさまざまな計算ソフトウェアに標準実装されており、潜在的なユーザー数はPhonopyをはるかに上回ります。

充実のデータベースで快適な利用をサポート

操作性で言えば、Phonopyの特長の1つが導入の手軽さです。「conda^{*2}」や「pip^{*3}」といったパッケージ管理システムを使えば、わずか数回のコマンド入力ですぐにインストールできます。

また、ソフトウェア開発だけでなく、Phonopyで得られたデータそのものをユーザーに提供する取り組みも進めています。NIMSの材料データベース「Materials Data Repository (MDR)」を通じて、約1万種類もの結晶のフォノン計算データを公開しており、直近では、熱伝導のデータも追加しました^{*4}。ユーザーはここから目的とする結晶のデータをダウンロードしてPhonopyに読み込ませることによって、最も時間のかかる第一原理電子状態計算の工程を省略でき、物性の予測を瞬時に行うことができます。専門家の間ではよく知られたデータベースとなっており、多くの方にご利用いただいています。

サイエンスコミュニティを支えるという使命

私がPhonopyの開発を始めたのは、約20年前、大学院で材料工学を学んでいたときのことです。そのころ研究対象としていた半導体材料の熱物性を調べたい、という実際的な動機が発端でした。当時、フォノン計算ができるソフトウェアはいくつかありましたが、私の扱っていた材料が特殊だったこともあり、計算が途中で止まってしまうなど、満足に動作するものがありませんでした。そこで、「幅広い材料に適用できて、破綻なく計算が進むソフトウェア」を独自に開発しようと決意しました。

結果としてPhonopyは多くのユーザーに受け入れられ、サイエンスコミュニティの共有財産となりました。開発者である私のもとには日々、世界中からフィードバックや機能追加の要望が寄せられます。それらの要望への対応や、OSや配布形態に合わせたメンテナンスなどは、論文になるような華やかな仕事ではありません。しかし、研究の基盤となるツールが安定的に動作しつづけることは、その上に多様な研究が成り立っている現在、決して欠かすことができない営みなのです。その一端を担うことには大きなやりがいがあり、それが私の使命だと感じています。

(文・山田久美)

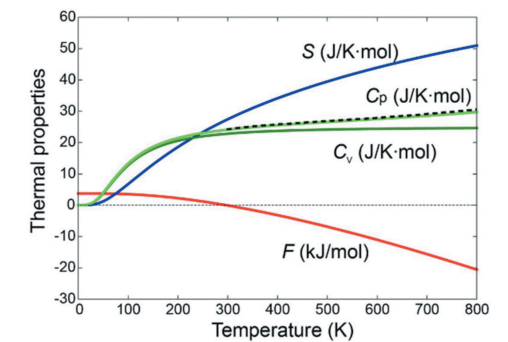
*1 フックの法則…バネなどの弾性体において、変形 (伸びや縮み) の大きさと、元に戻ろうとする力 (復元力) の大きさが比例するという物理法則。

*2 conda…「Python」をはじめとした、さまざまなプログラミング言語のパッケージ (ソフトウェアや機能拡張ツール) を管理するシステム。プロジェクトごとに独立した仮想環境を簡単に構築できるのが最大の特徴。ソフトウェア間に生じる複雑な依存関係 (バージョン競合など) の問題を回避しやすくなることから、科学技術計算やデータサイエンスの分野で広く支持されている。

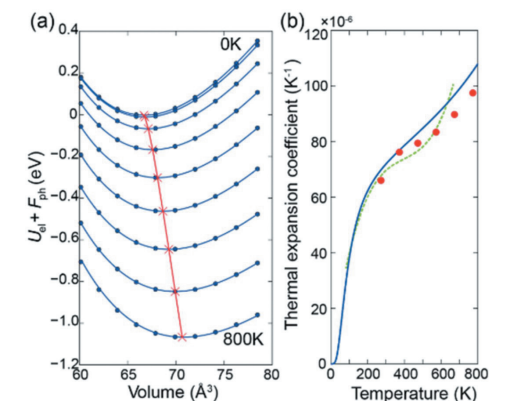
*3 pip…Pythonに標準で付属する公式のパッケージ管理システム。インターネット上の公式リポジトリ「Python Package Index (PyPI)」に登録されているパッケージのインストールなどを手軽に行うことができる。本記事で紹介するPhonopyも、このPyPIを通じて配布されている。

*4 MDR phonon calculation database (<https://mdr.nims.go.jp/collections/d7aab932-8512-4b9a-b93d-b61f6e5e7019>)

Phonopyによる計算結果の一例

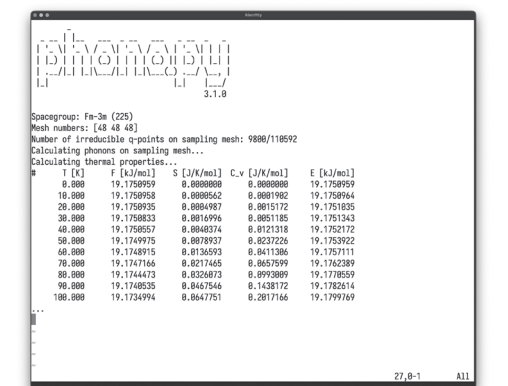
■熱力学特性の計算例
(エントロピー、自由エネルギー、比熱)

■熱膨張の計算例



(出典: A. Togo and I. Tanaka, Scr. Mater. 108, 1 (2015). CC-BY-4.0)

Phonopyの操作画面



Data

利用環境

Linux, macOS

計算対象

固体結晶(特に非調和性の影響が強い物質)

予測できる物性

有限温度下でのフォノン分散、構造安定性、相転移、格子熱伝導率など

公式サイト

<https://alamode.readthedocs.io/en/latest/>

Terumasa Tadano

只野 央将

磁性・スピントロニクス材料研究センター
磁性理論グループ
グループリーダーフォノン計算の難題
有限温度下での精密予測を実現アラモード
ALAMODE

物質・材料が真価を発揮する有限温度下で、その機能の根源である原子の「熱ゆらぎ」を正確にシミュレートすることは長年の課題だった。それを、先進的なアルゴリズムを実装したことにより突破したのが「ALAMODE」だ。その技術的なブレイクスルーとは何か。開発者の只野央将グループリーダーに聞いた。

ALAMODEで挑む「非調和性」の壁

絶対零度下のフォノン計算(調和近似)では圧倒的な支持を得ている「Phonopy (P.6参照)」ですが、その適用範囲には限界があります。調和近似は、原子の振動がゼロに近いことを前提としているため、有限温度下のような原子が激しく振動する状態を正確に扱うことができません。

たとえば、チタン酸ストロンチウム(SrTiO_3)は約105ケルビン(K)で相転移を起こすことが知られています(図1)。高温相では立方晶構造をとる SrTiO_3 ですが、この立方晶について従来の調和近似を行うと大きな問題が生じます。原子の振動数が虚数という、現実にはあり得ない「イマジナリーフォノン」が現れ、フォノンという物理の描像そのものが破綻してしまうのです(図3青線)。

これは、原子の振動を単純なモデルで捉えすぎているために起こる問題です。その原因は、フォノン計算の基礎となる「ポテンシャルエネルギー曲線」の特徴的な形からひもどくことができます。ポテンシャルエネルギー曲線とは、「原子の位置とエネルギーの関係」を示したグラフです。フォノン計算とは、この曲線の曲率を計算する作業にほかなりません。

SrTiO_3 のような非調和性の影響が強い物質の場合、ポテンシャルエネルギー曲線の中心に、エネルギー的に不安定な「丘」が現れることがあります(図2黒線)。このような曲線に対して従来の調和近似を適用すると、不安定な丘の頂上の曲率を計算してしまい、イマジナリーフォノンを導き出してしまふ結果となります。

これを解消するためには、実際の原子が「丘の頂上に留まるのではなく、2つの谷の間を激しく揺れ動いている」という実態を計算に反映する必要があります。つまり、激しい振動の結果、原子が“実効的”に感じている「有効ポテンシャル」を、精密に計算しなければなりません。それに対し、私は「ALAMODE」というソフトウェアの開発を進め、熱膨張やフォノンの温度変化、相転移などのシミュレーションを実現しました。

モデル化のカギは「自己無撞着」

ALAMODEの基礎理論の1つとなっているのが、「自己無撞着フォノン(SCP)理論」です。この理論は、第一原理電子状態計算では標準的な「自己無撞着」という考え方を、原子の振動状態、すなわち「熱ゆらぎ」の計算に応用したものです。

自己無撞着とは、互いに原因でもあり結果でもある2つの要素が、矛盾なくつり合っている安定した状態を指します。原子の熱ゆらぎの場合はこの関係が、原子が実効的に感じる「有効ポテンシャル」との間に成り立ちます。つまり、ポテンシャルの形によって原子の振動状態(熱ゆらぎの向きや大きさ)は決まりますが、原子が振動すること自体が、今度は有効ポテンシ

ルを変化させてしまうのです。

1950年代に提案されたSCP理論により、このポテンシャルと振動状態との相関を数値モデル化し、両者がつり合う点が見つかるまでループ計算を回すことで、非調和性を取り込んだフォノン計算が可能になることが理論的に示されました。とはいえ、非調和性を取り込んだモデルを構築するためには、本来であれば膨大な量の「密度汎関数理論(DFT)計算」が必要となり、その計算コストの高さから、長らく現実的な手法とはみなされていませんでした。

“机上の空論”を実用ツールに昇華

この壁を打ち破ったのが、「スパースモデリング」と呼ばれるデータ科学手法です。スパースモデリングは、複雑な現象の中から本当に重要なファクターを自動的に抽出・推定する機械学習の枠組みです。この手法を、DFT計算によって得られたデータ群に適用することにより、現実的な量のDFT計算データさえあれば、高精度なモデルを構築することが可能となりました。

私はALAMODEに、この一連の計算フローを効率的に実行させるアルゴリズムを実装しました。たとえば、ループ計算を少ない回数で安定して収束させる「ミキシング法」や、スーパーコンピュータの計算能力を最大限に引き出すための並列計算手法が挙げられます。性質の異なる2つの並列化手法、MPI(チームごとの大規模な分業)とOpenMP(チーム内の緻密な連携)を組み合わせた「ハイブリッド並列化」への対応などにより、ALAMODEは実際の物質に対して、現実的な時間で高精度な計算を行うことができる「実用性」を獲得したのです。実際、ALAMODEを使って、従来の調和近似では破綻してしまった SrTiO_3 のフォノン分散を再現することに成功しました。原子の熱ゆらぎの効果を取り込んだ計算結果(図3赤線)は、中性子散乱実験のデータ(図3丸印)とよく一致しています。

温度を連続的に変化させて相転移を再現

ALAMODEのもう1つの強みは、温度をパラメータとして連続的に変化させながら計算できる点です。これにより、物質の温度変化に伴う構造の変化を詳細に追跡できるようになりました。他のソフトウェアでは、温度を少し変えるだけでもう一度最初から大規模な計算をやり直さなければならないことがほとんどです。それに対してALAMODEでは、一度モデルを構築すれば、少ない追加コストでさまざまな温度での状態をシミュレートできます。この機能は、SCP計算で得られた結果をもとに「自由エネルギー」と、その微分を効率的に計算するアルゴリズムを実装したことにより実現しました。

ALAMODEは、誘電率の温度依存性や熱伝導率なども予測できます。多くの方にこのソフトウェアを使っていただき、室温や高温環境で機能する高性能な材料の効率的な探索に貢献できることを期待しています。

(文・山田久美)

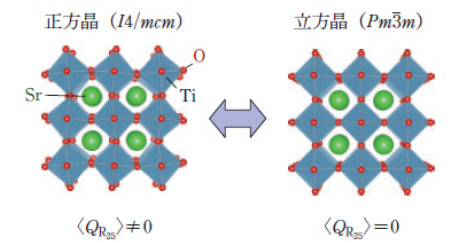


図1 SrTiO_3 の結晶構造

SrTiO_3 は約105Kを下回ると、立方晶から正方晶へと相転移する。

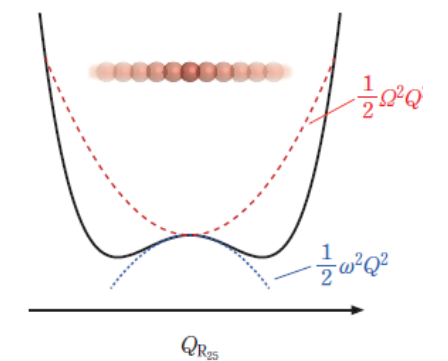


図2 ポテンシャルエネルギー曲線

SrTiO_3 などでは、原子の位置に対するエネルギー(ポテンシャル)が、2つの「谷」と1つの「丘」をもつ特殊な形になることがある(黒線)。従来の調和近似では、丘の頂上における曲率だけを計算してしまうため、原子の振動数が「虚数」という物理的にあり得ない解を導いてしまう。しかし現実には、原子は熱ゆらぎによって2つの谷の間を激しく行き来することで、あたかも1つの安定した谷の中にかかっているようにふるまう。ALAMODEは、原子が“実効的に”感じる谷、すなわち「有効ポテンシャル」(赤線)を精密に導き出す。

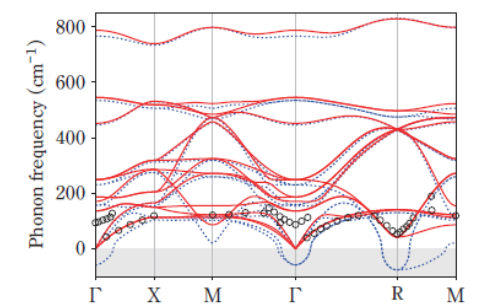


図3 SrTiO_3 のフォノン分散曲線

縦軸は原子の振動数、横軸は結晶内における振動の方向を示す特別な点(波数)。高温で安定な立方晶の SrTiO_3 についての計算結果を比較すると、従来の計算(調和近似、青線)では、振動数がゼロを下回る「イマジナリーフォノン」が現れ、物理描像が破綻している。一方、ALAMODE(非調和近似、赤線)は原子の熱ゆらぎを取り込むことでこの破綻を解消。中性子散乱実験データ(丸印)とよく一致している。特に、相転移の引き金となるR点の不安定性を正確に記述できたことは、ALAMODEの有用性を証明している。

(図1・2・3出典:「応用物理」第89巻第1号, pp. 35-39 (2020))

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = H\Psi$$

すべての物理現象を支配する真の主角

電子状態を計算する

「多体問題」という難問

Chapter1では、材料の機能設計におけるフォノン計算の重要性について述べた (P.4参照)。その計算フローをみても明らかのように、すべての物理現象を支配するのは「電子」だ。原子核の周りを運動する電子が、他の原子や電子とどのように相互作用して、どのような分布で存在するのか——こうした「電子状態」を精度よく求めることこそが、高精度な材料科学シミュレーションの第一歩だ。

この電子状態を、実験値によらず、量子力学の基本法則（第一原理）のみに基づいてコンピュータで計算する手法が「第一原理電子状態計算」である。理論上は、「シュレディンガー方程式」を解けば、あらゆる物質の電子状態（エネルギーや電子分布）を正確に予測できるとされる。

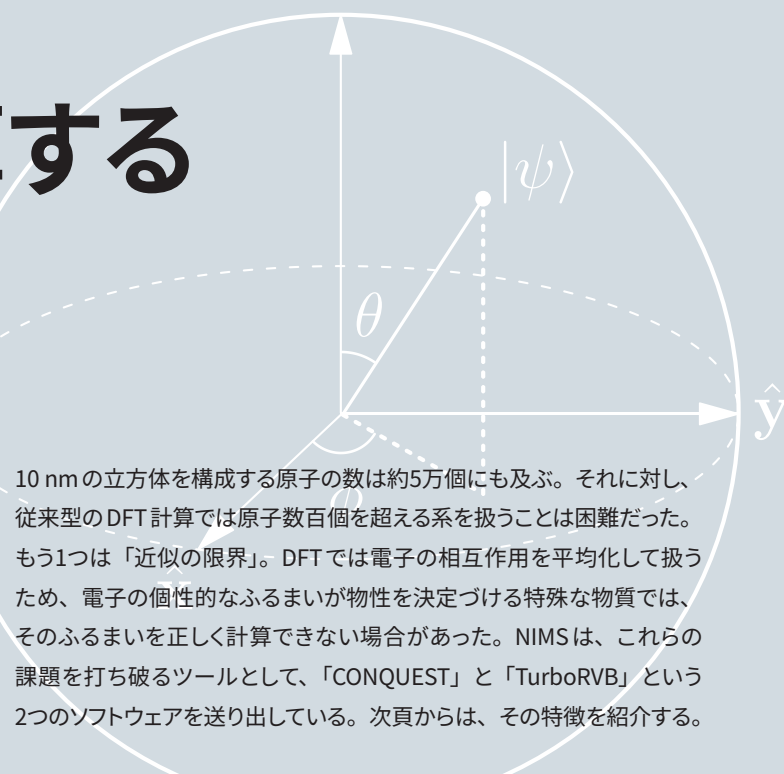
しかし、この方程式を現実の材料計算に適用しようとすると、すぐに「多体問題」という大きな壁に直面する。物質には無数の電子が存在し、常に複雑な力を及ぼし合っている。それら多電子系における複雑な相互作用（多体相互作用）をすべて考慮し、シュレディンガー方程式を厳密に解くことは、今ある世界最高峰のスーパーコンピュータを使っても不可能だ。この難問をいかにして乗り越えるか。それが第一原理電子状態計算の歴史における最大のテーマとなってきた。

DFTの躍進とその限界

「多体問題」という壁を打ち破り、第一原理電子状態計算を実用的な手法へと押し上げたのが、「密度汎関数理論 (DFT)」だ。DFTの画期的な点は、電子の動きを個別に計算するのではなく、「電子密度」に注目した点にある。最大の特徴は、「コーン-シャム方程式」と呼ばれる式のなかで、多体相互作用を近似的に「交換相関ポテンシャル」という1つの関数で表現し、仮想的な1電子の問題に置き換えた点だ (詳しくはNOTE参照)。このアプローチにより、DFTは計算コストの劇的な削減に成功し、材料科学シミュレーションに不可欠な標準手法となった。

しかし、強力なDFTも万能ではない。今日の材料科学の発展のなかでDFTは2つの大きな課題を抱えていた。

1つは「計算量の限界」。原子の密度が比較的低いシリコンでも、一辺

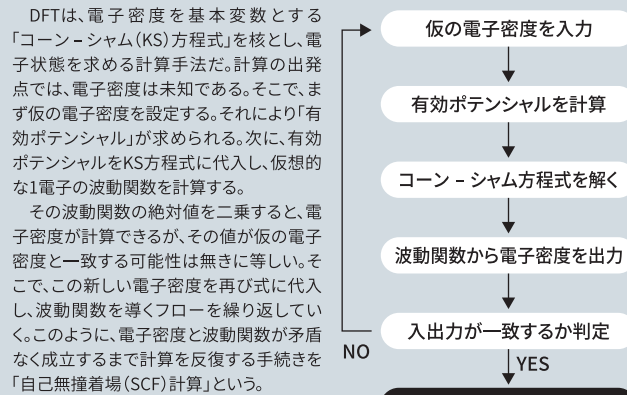


10 nmの立方体を構成する原子の数は約5万個にも及ぶ。それに対し、従来型のDFT計算では原子数百個を超える系を扱うことは困難だった。もう1つは「近似の限界」。DFTでは電子の相互作用を平均化して扱うため、電子の個性的なふるまいが物性を決定づける特殊な物質では、そのふるまいを正しく計算できない場合があった。NIMSは、これらの課題を打ち破るツールとして、「CONQUEST」と「TurboRVB」という2つのソフトウェアを送り出している。次頁からは、その特徴を紹介する。

NOTE

$$-\hat{z} = |1\rangle$$

コーン-シャム方程式とDFT計算のフロー



コーン=シャム方程式

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_{\text{eff}}[\rho](\mathbf{r}) \right] \phi_i(\mathbf{r}) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r})$$

運動エネルギー項 有効ポテンシャルエネルギー項 仮想的な1電子波動関数

$$V_{\text{eff}}[\rho](\mathbf{r}) = V_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + V_H[\rho](\mathbf{r}) + V_{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r})$$

外部エネルギー (原子核との引力) ハートリー項 (電子間の反発) 交換相関ポテンシャル (多体相互作用の近似)

従来型のDFT計算の「計算量の限界」を突破！ 超大規模計算の先駆者

コンクエスト

CONQUEST

大規模で複雑な材料を、第一原理に基づいて解き明かす——その課題に挑むべく、約25年前に開発が始まったソフトウェアが「CONQUEST」だ。宮崎 剛グループリーダーが海外の研究グループと共同で開発を牽引してきたこのツールは、2020年1月にオープンソースで公開を開始。従来型の第一原理電子状態計算が抱えていた「計算量の限界」を打ち破ったその核心技術と、今後の展開について同氏に聞いた。

従来型のDFT計算の限界

実験値によらず、量子力学のみに基づいて物質の電子状態を予測する「第一原理電子状態計算」は、材料科学において強力な手法です。しかし、その精密さゆえに計算コストが膨れ上がり、大規模な計算が難しいという課題を抱えています。

この計算コストの問題を改善し、第一原理電子状態計算の活用範囲を一気に広げたのが「密度汎関数理論 (DFT、左ページ参照)」です。しかし、そのDFTですら、扱うことができる原子の数には限界がありました。DFTの計算量は原子数N個の3乗（オーダーN³）で増大していくため、原子数が数百個を超えると、最新鋭のスーパーコンピュータ（スパコン）をもってしても計算が非常に重くなってしまいます。

特に、アモルファス（非晶質）の不規則な構造や、結晶の界面・欠陥、生体分子といった複雑な系を正確にシミュレートするためには、ときに数万～数百万個もの原子を扱う必要があります。その計算を現実的な時間で完了させるのは、従来型のDFT計算では困難です。

この課題を打ち破るため、私は英・ロンドン大学、仏・ボルドー大学の研究グループと共同で、大規模第一原理計算ソフトウェア「CONQUEST」の開発に取り組んできました。そして、計算の安定性が成熟したと判断し、2020年1月にはCONQUESTをオープンソースとして広く公開しました。開発から約25年、CONQUESTで扱うことができる原子の数は、今や数百万個にまで達しています。数千原子ほどの計算であれば、スパコンではなく個人のワークステーションでも実行いただくことが可能です。

超大規模計算だからこそ見える世界

この強力な計算能力を手に入れたことで、これまで見えなかった世界が見えるようになってきました。その一例が、NIMSの深田直樹グループリーダー（半導体ナノ構造物質グループ）が研究開発を進める、「シリコン (Si) /ゲルマニウム (Ge) コアシェルナノワイヤ」です。この材料は、直径10nm程度の極細なSiの芯を、Geで覆ったワイヤ状の構造体です。電気伝導性と集積性に優れることから、次世代の超高性能トランジスタへの応用が期待されます。

トランジスタには、マイナスの電気を運ぶ「電子」を利用するn型と、プラスの電気を運ぶ「正孔 (ホール)」を利用するp型があります。これらは通常、半導体に不純物を添加 (ドーピング) してつくられますが、ときに不純物が電子と正孔、すなわちキャリアの移動を邪魔してしまい、性能を低下させる場合があります。

Data

利用環境
Linux (スパコン環境推奨)、macOS

計算対象
大規模な固体結晶、ナノ構造 (界面、欠陥、アモルファスなど)、生体系

計算できる物理量
大規模系の全エネルギー、原子に働く力、電子密度および、それらを用いた構造最適化、分子動力学計算など

公式サイト
<https://ordern.github.io>



Tsuyoshi Miyazaki

宮崎 剛

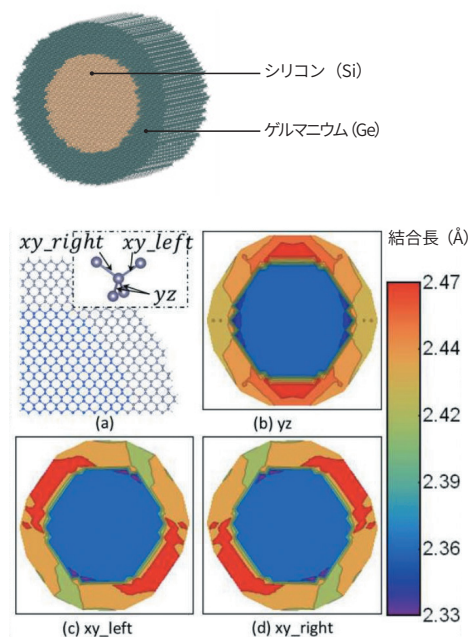
ナノアーキテクトニクス材料研究センター (MANA) 第一原理量子物性グループ グループリーダー



Next page >>

CONQUEST

図1 Si/Geコアシェルナノワイヤの構造と、内部の不均一な歪み分布



Si原子とGe原子はサイズが異なるため、両者が接するコアシェル構造では、原子間の結合長（原子同士を結ぶ“手”の長さ）に不均一な「歪み」が生じる。この図はCONQUESTの計算結果をもとに、ナノワイヤ内部の結合長の分布を色分けによって可視化したもの。Ge-Ge結合は濃い赤になるほど、Si-Si結合は濃い青になるほど、純粋なGe結晶やSi結晶における結合長と比べて、大きく変化していることを示す。(a)は、結晶構造における代表的な3つの結合方向を示した。(b)～(d)は、それらの各方向における結合長の分布を示した。結合長が一律ではなく、ナノワイヤ内部で複雑な歪みが生じていることが分かる。

この問題を解決するために、不純物をドーピングするのはSi、キャリアの“通り道”はGeと、2つの分離を可能とするのが、Si/Geコアシェルナノワイヤです。しかし、実際に性能を高めるためには、電子やホール“の通り道”を精密に設計する必要があります。その設計指針を確立しようにも、この材料は「実験で観察するには小さすぎ、従来型のDFT計算で扱うには大きすぎる」という、長年のジレンマを抱えていました。

そこで、CONQUESTを使って、実物サイズである直径7.2～15.2ナノメートルのモデルについて詳細な計算を行いました。その結果、ナノワイヤ内でも特に結晶の歪みが大きい場所に、正孔の通り道が集中して存在することが初めて明らかになりました（図1、2）。CONQUESTによって超大規模な第一原理電子状態計算が可能になったことで、「原子レベルの歪みを制御すれば、正孔の通り道を設計できる」という、デバイス設計に重要な指針を与える結果が得られたのです。

DFTの高速化のカギ、「電子の局在性」とは

なぜCONQUESTは従来は不可能だった規模の計算を実現できたのか。その最大の理由は、DFTという理論の枠組みはそのままに、計算プロセスの見直しにより、計算量が原子数Nに比例する「オーダーN法」を実現したことにあります。

計算プロセスを見直す際に、私たちが着目したのが「電子の局在性」という性質でした。これは、「電子の影響力は、すぐ近くの原子には強く働くが、遠く離れた原子にはほとんど及ばない」という性質です。事実、従来型のDFT計算でも、最終的な結果を見れば、遠くの電子から原子が受ける影響はほぼゼロであることが分かります。ですが、DFT計算ではその結果を得るためにすべての原子間の相互作用を律儀に計算しなければならず、そのことが計算コストの増大につながっていました。

そこで、私たちが採用したのが「密度行列」というアプローチです。これは、「地点Aと地点Bにいる電子のふるまいにどのくらい協調性があるか」といった電子の関係性を、行列という数学的な形式で記述する手法です。この手法の強みは、「一定の距離（カットオフ半径）以上離れた電子の協調性はゼロとみなして省略する」という“割り切り”を、計算の中に組み込むことができる点にあります。つまり、相互作用が強く働く範囲だけに計算リソースを集中させ、それ以外の計算を省くことができるようになるわけです。この戦略によって、CONQUESTは従来型のDFT計算よりも、計算量を劇的に削減することに成功しました。

並列化設計でスパコン性能を最大限に引き出す

しかし、数百万個オーダーの超大規模計算を実現するためには、計算を担うハードウェアの“使い方”にも工夫が必要でした。スパコンで大規模計算を効率よく実行するためには、1つの巨大な問題を多数のCPUコアに分割して割り当て、同時に処理させる「並列計算」が不可欠です。このとき、各CPUコアが計算結果をやりとりする通信の効率も、トータルの計算時間に大きく影響します。

その点、CONQUESTは開発当初から、スパコンの「京」や「富岳」を構成する何十万ものCPUコアを使って並列計算を行うことを想定してきました。設計のキモとなったのが、

オーダーN法が生み出す「疎行列」の扱いです。疎行列とは、先ほど述べた「カットオフ半径の設定」により現れる、行列を構成する成分の多くがゼロである行列のことです。CONQUESTには、疎行列のうちゼロの成分を自動で計算から除外し、計算対象となる成分だけに、均等にCPUコアを割り当てるアルゴリズムを実装しました。また、割り当てる際にも、頻繁な通信が必要になる計算は、スパコンのネットワーク階層のなかでも特に連携がスムーズなコアのグループを割り当てるなど、通信のロス最小化を高度なアルゴリズムを組み込んでいます。

こうした並列化技術と、オーダーN法という計算手法との合わせ技により、CONQUESTは世界トップクラスの超大規模計算を実現したのです。

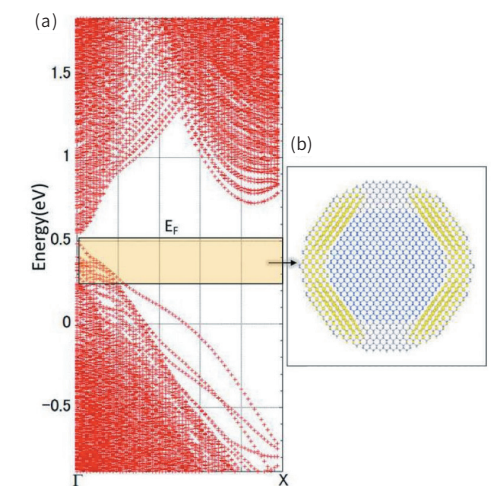
CONQUEST × AIで材料科学の未来を拓く

CONQUESTは、その後も進化を続けています。実は、オーダーN法は、絶縁体や半導体には絶大な威力を発揮する一方、金属のように電子が自由に動き回る物質の計算は苦手としていました。そこで、CONQUESTの公開に合わせて、「マルチサイト法」という手法を実装しました。これは、電子の相互作用が強く働く近距離の計算にはオーダーN法を、遠距離の相互作用には従来型のDFT計算を用いる、ハイブリッド型の手法です。これを実装したことにより、CONQUESTはさまざまな材料に適用できる、汎用性の高いツールとなりました。実際に、これまで第一原理電子状態計算の適用が困難だった、強誘電体の複雑ドメイン構造のシミュレーションに成功しています。

近年、特に力を入れているのが、CONQUESTと人工知能（AI）との連携です。CONQUESTは複雑な系を扱う分、計算結果から重要な法則性を見つけ出すのは容易ではありません。そこで、計算で得られたデータをAIに学習させ、法則性を自動で発見させるという試みを始めています。加えて、高精度な計算結果をAIに学習させることにより、AIそのものを「超高速な計算エンジン」として育て上げる試みも進めています。これは「機械学習ポテンシャル」と呼ばれる手法で、世界的なトレンドです。

2020年にCONQUESTをオープンソースとして公開して以来、世界中のユーザーから貴重なフィードバックを受けたり、共同研究に発展したりと、新たな刺激を受けています。こうしたコミュニティとの連携と、AIとの融合という新たな展開によって、今後もCONQUESTはますます進化を遂げ、私たちの想像を超える新しい材料科学の未来が拓けるものと信じています。（文・山田久美）

図2 Si/Geコアシェルナノワイヤのバンド構造と電子密度



(a)はナノワイヤがのびる方向に対する電子状態を示すバンド構造。(b)は、(a)でハイライトした価電子帯の頂上（最も高いエネルギー準位）における電子状態をもとに「電子密度」を可視化したもの。その結果、電子の分布（黄色）には明確な偏りがあることが分かった。この場所にいた電子が抜けることによって正孔が生まれ、電気伝導が起こる。

DFTが抱える「近似の限界」を突破。量子モンテカルロ法で精密な材料科学シミュレーションを確立する!

ターボ・アールパイビー

TurboRVB

ジェーキューエムシー

(jQMC)

数ある第一原理電子状態計算手法のなかでも、きわめて高精度な計算が可能な「量子モンテカルロ法(QMC)」。その計算コードを実装し、従来より精密な材料科学シミュレーションを実行可能にしたのが「TurboRVB」だ。精力的に改良を進める独立研究者の中野晃佑に、開発の背景や、新たなソフトウェア「jQMC」の開発といった次なる挑戦を聞いた。

「量子モンテカルロ法 (QMC)」とは

電子の運動を厳密に記述できる「シュレディンガー方程式」ですが、対象とする粒子（原子核や電子）が3つ以上になると、粒子同士に複雑な相互作用（多体相互作用）が生じるため、厳密な解を求めることは不可能になります。これは「多体問題」と呼ばれる、電子状態計算が抱える課題です。

この難題に対し、「密度汎関数理論 (DFT)」は多体相互作用を近似的に取り込んだ方程式を用いることにより、計算時間を劇的に短縮することに成功した画期的な手法です (P.10 に解説)。

しかし、この「近似」という戦略は、時として弱点にもなります。DFTでは電子同士の複雑な相互作用を平均化してしまうため、電子の個性的なふるまいが物性を決定づける「強相関材料」などの場合、その特徴を捉えきれず、正しく計算できないことがあるのです。

それに対し、方程式を近似するのではなく「確率的」なアプローチでこの難問に挑むのが「量子モンテカルロ法 (QMC)」です。具体的には、電子が取り得るさまざまな配置をコンピュータ上でランダムにサンプリングし、それぞれの配置におけるエネルギーから、統計的に解を導き出すのです。このアプローチでは、DFTでは平均化されてしまっていた多体相互作用を直接的に計算に取り込めるため、DFTより格段に高精度な計算が可能です。

QMCに立ちほだかる壁 原子に働く「力」の計算を実現!

しかし、QMCを材料科学の計算に用いるには大きな障壁がありました。QMCは、ある原子配置における系のエネルギーを求めることを得意とする一方で、その値を微分することで得られる、原子に働く「力」を正確に求めることが困難でした。「力」を計算できなければ、フォノン計算や結晶構造の最適化といった、DFTでは当たり前に行われている材料科学シミュレーションすらQMCでは実行できません。

この困難さは、QMCが確率的な手法であることに起因します。原子に働く「力」とは、「原子をわずかに動かしたときのエネルギーの微小な変化値」のことで、QMCで求めたエネルギーの値には常に統計的なノイズが含まれ、それによって肝心の“微小な変化”が捉えにくくなってしまいます。

加えて、QMCで力の計算を行うと、一部の電子がとある特異な点を踏んで発散してしまい、意味のある計算結果が得られないという根本的な問題も抱えていました。

そこで、私はTurboRVBのアルゴリズムを注意深く見直しました。計算を繰り返すなかで、特異点による発散を避けて、統計的ノイズを抑制する手法を見出しました。その実装により、TurboRVBは世界でも数少ない、分子、結晶問わず、QMCによって原子に働く力を高精度に計算できるソフトウェアとなりました。実際に、TurboRVBを使った力の計算結果をもとに、結晶構造の最適化やフォノン計算を実施した成果が挙がっています (図)。

ソフトウェアの継承、そして普及へ

TurboRVBはもともと、QMCの研究で著名なイタリアのSandro Sorella教授 (SISSA*) が2000年ごろに開発を始めたソフトウェアです。私はSorella教授のもとでQMCを学ぶため、2018年にイタリアに渡り、TurboRVBの開発と応用を担うことになりました。ところが、その数年後に教授が急逝され、私とその志とともに開発・運用を引き継いで現在に至ります。

2023年にNIMSに着任してからは、この貴重な資産をより普及させるための仕事に取り組んでいます。その1つが、TurboRVBのコードの全面書き換えです。

TurboRVBは多くの開発者が、数十年にわたり実装に取り組んできた結果、俗に「スパゲッティコード」と呼ばれる、コードが複雑に絡み合った状態となり、変更や保守にかかる工数が増大していました。そこで、私はそのアルゴリズムをすべて勉強し直し、モダンなプログラミング言語であるPythonを使って、「jQMC」という新たなソフトウェアに仕立て直しています。

自動計算を可能にする頑強なアルゴリズム開発も

ほかにも、「機械学習ポテンシャル」の構築を見据えたアルゴリズム開発にも注力しています。これは、機械学習モデルに第一原理計算による計算結果を学習させ、原子や分子の運動を扱う「分子動力学計算」を高速化させる技術です。大量の教師データを生成するためには、何千、何万という計算を途中で止めることなく自動で実行し続ける、頑健なアルゴリズムが不可欠です。最近、従来のQMCに存在する、自動計算が困難な箇所を回避する手法を考案しました。その方法では、厳密性は部分的に犠牲になりますが、その物理的な影響範囲を正確に把握できていれば、きわめて有効な戦略だと考えています。

このように、ソフトウェアは「開発して終わり」ではありません。時代の変化に合わせて育て続けることが重要です。それを地道に担ってきた先人たちの肩の上に私の研究があり、国の研究機関という長期的な研究に取り組みやすい環境で、その継続的な努力に貢献できるのは光栄なことだと感じています。この強みを存分に生かし、QMCを材料科学シミュレーションの世界に確立していきます。

(文・山田久美)

*SISSA: Scuola Internazionale Superiore di Studi Avanzati (International School for Advanced Studies)

Data

利用環境

Linux (スパコン環境推奨)、macOS

計算対象

分子、結晶 (特に強相関材料、二次元材料など)、表面

計算できる物理量

高精度な基底状態エネルギー、電子密度、原子に働く力、圧力テンソルおよび、それらを用いた構造最適化、フォノン、分子動力学計算など

公式サイト

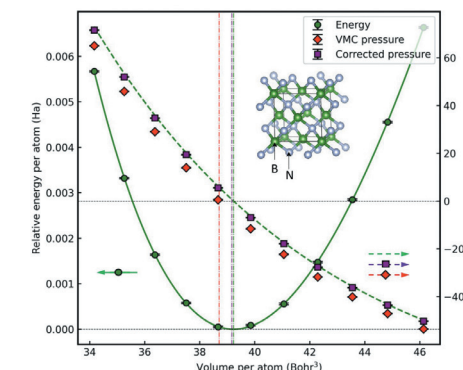
https://sisaschool.github.io/turborvb_website/

Kosuke Nakano

中野 晃佑

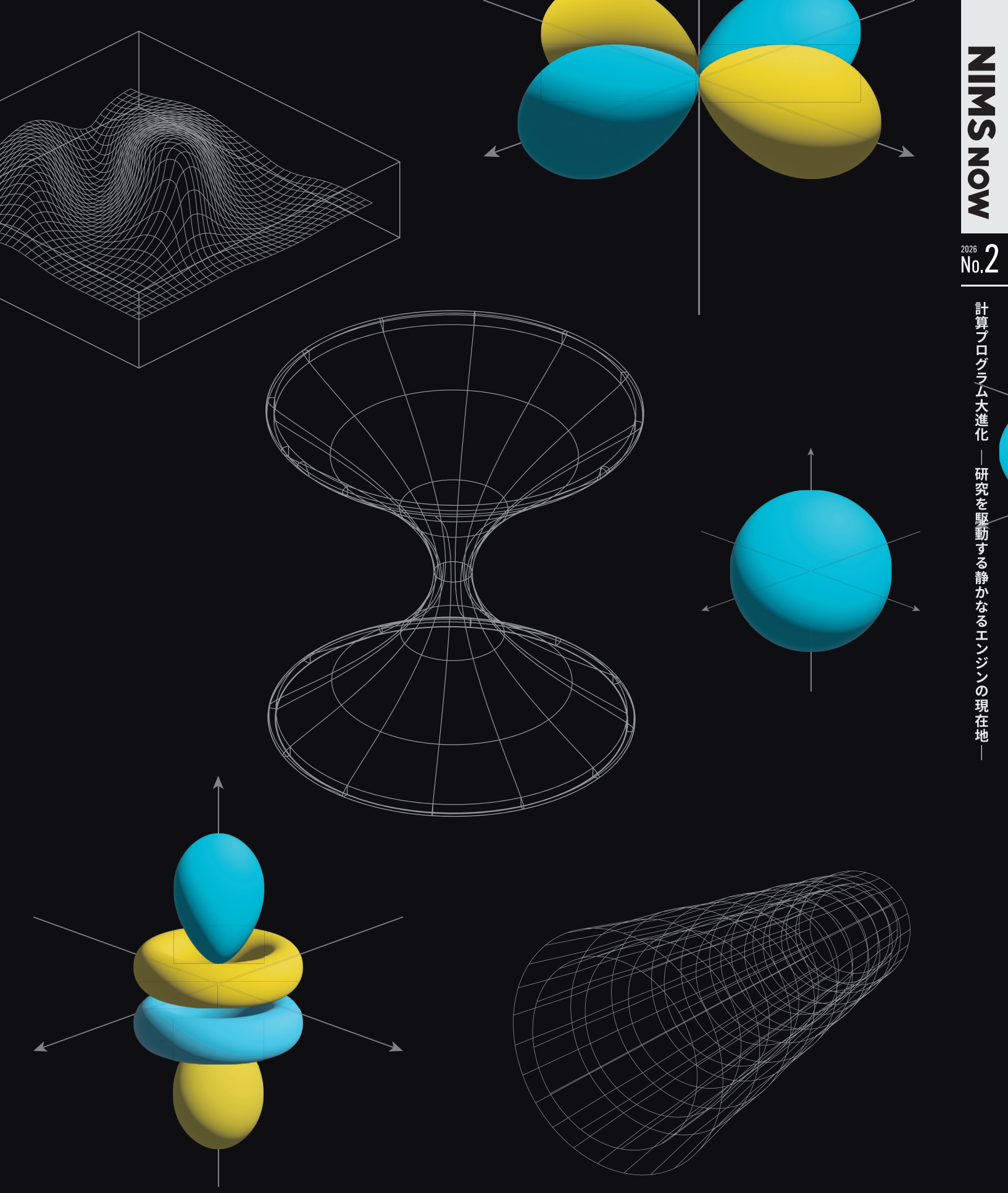
マテリアル基盤研究センター
独立研究者

図 TurboRVBの改良による状態方程式の再現性向上



立方晶の窒化ホウ素 (BN) を対象に、1原子あたりの体積の変化に伴い、結晶全体にかかる圧力がどのように変化するかをTurboRVBで計算した例。緑の点線が、真の圧力の値。改良前のTurboRVBの計算結果 (赤い菱形) は、真の値からズレが生じてしまっていたが、中野が改良したアルゴリズムによって得られた計算結果 (紫の四角) は、正しい値とよく一致している。

(出典: K. Nakano et al., Phys. Rev. B, 109, 205151(2024))



NIMS NOW vol.26 No.2 通巻213号 2026年3月発行

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

購読申し込みフォーム
下記FAX、E-mailでも承ります。



古紙配合率 60% 再生紙を使用しています



植物油インキを使用しています

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1 TEL 029-859-2026 FAX 029-859-2017 E-mail inquiry@nims.go.jp Web www.nims.go.jp

禁無断転載 © 2026 All rights reserved by the National Institute for Materials Science
写真:石川典人(P.14) デザイン:Barbazio株式会社

ISSN 2436-3502