

第一原理計算と高圧実験の信頼性の比較

Comparison of reliability between first principle simulations and high-pressure experiments

小野 重明 [1]

Shigeaki Ono[1]

[1] 海洋研究開発機構

[1] JAMSTEC

現在、地球内部に相当する高温高圧条件のような極限環境において、高圧実験のデータを用いて研究を行うという従来の方法だけでなく、第一原理に基づいた計算機実験が、主要な研究手法として確固とした地位を占めつつある。これまでの高圧実験に付きまどってきた避けがたい問題として、実験圧力および実験温度の限界という束縛が存在してきた。ところが、新しい計算手法は、原理的には、圧力や温度と言う限界が存在しない。したがって、これまでは技術的な問題のため、高圧実験では研究ができなかった多くの問題に対して、第一原理に基づいた計算機実験を用いることにより、新たな展開が期待できる。しかし、高圧実験で実現できない極限条件での計算結果には、どれほどの信頼性があるかと言うことを判断することは、きわめて困難である。常温常圧下で安定な物質を対象とした研究では、多くの物性が実験によって測定されていて、そのデータと計算機実験のデータを比較することにより、計算結果の信頼性を評価することが可能である。一方、地球内部物質に多くは、常温常圧条件では不安定なため、精密な実験データを取得することが難しい。そこで、本研究では、常温常圧条件で不安定な高圧相の物性データを、高圧実験と計算機実験の両方で測定し、これを比較することで、高圧条件での第一原理に基づいた計算機実験の信頼性を評価することを目的とする。

上記の研究目的を考慮して、本研究では塩化ナトリウムの高圧相 (B2-type NaCl) を用いた。この高圧相は常温常圧下では回収ができない。しかしながら、結晶構造が単純であり、構造相転移もきわめて簡単に起こるため、信頼性に高い実験データの取得が比較的容易である。そのため、研究対象としては適している。塩化ナトリウムの高圧相の格子定数や体積弾性率を用いて、実験データと計算結果の比較を試みた。高圧実験においては、ダイヤモンドアンビルセルを用い、100 GPa以上の高圧条件でのデータ取得を行った [1]。ダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧実験においては、試料室内の差応力が、データの信頼性を大きく損なう。そこで、本研究では、レーザーを用いてアニールを行い、差応力の影響を最小限にする試みを行った。計算機実験では、高圧実験に対応する温度圧力条件での物性を見積もるため、第一原理に基づいた分子動力学法を用いた [2]。

本研究によって得られた実験結果と計算結果を比較すると、室温条件で得られる実験データは、第一原理計算によって得られるデータより、相対的に信頼性が高いと予想された。理由としては、第一原理で見積もられる格子定数には、ある程度の誤差が含まれているためであろう。このことは、よく知られたことであり、今後も第一原理計算の手法の改良を続ける必要がある。一方、高温条件では、常温データとは異なる結果が得られた。我々の実験データや過去の研究で報告されている実験データを、我々の計算結果と比較すると、温度効果に関しては、実験研究の方が信頼性の高いデータを得られるとは言いがたい。特に、温度圧力ともに高くなるにしたがい、実験データの信頼性は著しく下がるが、計算データの信頼性の低下はそれほどでもない。つまり、極限環境では、計算実験の優位性が際立ってくる。このような結果を考慮すると、今後は、高圧実験と第一原理計算をうまく組み合わせた研究手法が、きわめて有効であることが明らかになった。

[1] Ono et al., Solid State Commun., 137, 517-521 (2006).

[2] Ono et al., J. Appl. Phys., 103, 023510 (2008).