

量子アニーリングを用いた固体中イオン拡散の取扱い Quantum annealing to evaluate correlation factor in ionic diffusion

内村 慶舟¹、市場 友宏²、本郷 研太^{3,4,5}、中野 晃佑³、○前園 涼³

(1. 北陸先端大マテ、2. オークリッジ国立研、3. 北陸先端大情報、4. 物材機構、5. JST さきがけ)

Keishu Utimula¹, Tom Ichibha², Kenta Hongo^{3,4,5}, Kousuke Nakano³, and ○Ryo Maezono³

(1.Sch. Mater. Sci., JAIST, 2.Oakridge Ntnl Lab., 2.Sch. Info. Sci., JAIST, 3.NIMS, 4.PRESTO, JST)

E-mail: rmaezono@mac.com

固体中のイオン拡散は、電池応用や構造材料強度、触媒能など広範な有用物性を支配する物性である [1]。第一原理計算の進展により、固体中のイオン移動に対する障壁エネルギー値の算定は極めてありふれたものとなっている [2]。可能なホッピング経路に沿った障壁エネルギーを計算する事により、「易動重みの付随したイオン伝導経路網」自体を明らかにする事が可能である。イオン拡散現象は、巨視的には拡散係数として把握される。「イオン伝導経路網の同定」を「巨視的拡散係数の予見」に結びつけるには、「重畳過程の数え上げ」という骨の折れる問題が存在する [2]。

固体中のイオン拡散を取り扱うには「移動したトレーサが引き戻される過程」を考慮しなければならないが(以降、イオン拡散過程のうち、空孔過程による拡散に話を限定する)、さらには、その重畳、すなわち、「『トレーサの引戻し』に対する引戻し」といった複雑な重畳を数え上げる必要がある [2]。この数え上げは「拡散の相関因子」として表現され、「微視的マイグレーション過程の解明」が「巨視的観測量たる拡散係数の予見」に結びつくための要衝となっている。

相関因子を評価するには、トレーサの移動で発生した正孔が、ホッピングネットワーク上を、どう回り込み、どの方向からトレーサを引き戻すか(方向によっては「引き進める」場合もある)を数え上げ、その方向余弦を平均化する必要がある [2]、その数え上げは一般には極めて困難である。相関因子は、したがって、重畳効

果が「単純化された漸化式で表現できる」ような模型格子系でしか算定されてこなかった(かつ、単純化された仮定が付随する)[1]。

我々は、この数え上げ問題に対して量子アニーリングを適用出来るような定式化を構築した。この定式化では、数え上げのための特殊な仮定や単純化は必要なく、「第一原理算定によるイオン伝導経路網の同定」から「拡散係数予見」までを結びつける事を可能とするものである。例えば、温度や圧力による経路障壁エネルギー変化、もしくは元素置換による結合や構造のチューニングによる障壁エネルギー変化などは第一原理解析出来るので、本研究で開発された定式化を用いて、拡散係数を制御する物性チューニングの解析が叶うようになる。

与えられた「易動重みが付随した経路網」に対して、正孔が取りうるホッピング経路を愚直に数え上げれば相関因子を算定できる。ただ計算量は膨大で、そのような数え上げは現実的ではなかった。量子アニーリングによる最適経路生成は、この問題を克服し、我々は実際に、模型格子系に既知の相関因子が正しく算定される事を示すことに成功しつつある [3]。

引用文献

1. H. Mehrer, "Diffusion in Solids: Fundamentals, Methods, Materials, Diffusion-Controlled Processes", Springer Series in Solid State Sciences (Springer, 2007).
2. T. Ichibha *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. **21**, 5158 (2019).
3. K. Utimula *et al.*, arXiv:1912.13251.