

平成 22 年 6 月 7 日現在

研究種目：	基盤研究（C）
研究期間：	2007 年度 ～ 2008 年度
課題番号：	19560073
研究課題名（和文）	ナノ界面構造最適化のための実空間有限要素法による第一原理計算の高度化
研究課題名（英文）	Development of real-space ab-initio calculation based on finite-element method aiming for nano-interface structural optimization.
研究代表者	
	吉川 暢宏（YOSHIKAWA NOBUHIRO）
	東京大学・生産技術研究所・教授
	研究者番号：70230696

研究成果の概要（和文）：

実空間法による大規模第一原理計算を目的として、有限要素基底関数および要素メッシュの高度化を通じた高速第一原理計算手法の開発を行った。カービンググリッド法に基づくアダプティブメッシュ法において誤差収束を調査し、誤差減少傾向の保存を3次元解析において明らかにした。スペクトル要素法に基いた高次要素による実空間第一原理計算を実施し、高次要素により計算の高速化が可能であることを明らかにした。セレンディピティ4次要素の計算高速化における有用性を確認した。

研究成果の概要（英文）：

For the development of a fast *ab initio* calculation software, the finite-element techniques, especially shape functions and meshing methods, in real-space *ab initio* calculation have been investigated. Through the investigation, we revealed the following issues: (1) Curving-mesh method maintains the convergence property of the finite-element method even in the 3-dimensional case and proves useful to reduce the number of grid points. (2) Higher-order shape function generated by spectral element method yields sufficiently accurate results with fewer number of grid points compared to lower-order shape function. (3) Quartic serendipity finite-element with curving grid can significantly improve the computational efficiency compared to the quadratic serendipity element with regular grid.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	500,000	150,000	650,000
2008 年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2009 年度	0	0	0
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・材料力学

キーワード：第一原理計算 実空間法 異材界面 大規模原子シミュレーション 並列計算
スペクトル有限要素法

1. 研究開始当初の背景

医療技術、発電・蓄電技術、エレクトロニクス技術など、様々な分野で、機能材料の接合界面をナノスケールで制御できれば、飛躍的新技术が生み出されると期待されながらも、実効的方法論が提示できないのが現状である。その主因は、機能発現に関わる界面の原子間相互作用を的確に捉えた適切なモデル化が行われていないため、工学的設計の方法論を持ち込めないことにある。特に、界面での欠陥が強度や機能に関わる信頼性をどの程度低下させ、製品としての要求を満足するためにどのような設計方法論を取ればよいか不明であることが大きな障害となっている。実験的アプローチのみでこの問題を解決することは不可能で、界面での電子状態を明らかにする第一原理計算を援用した検討が不可欠であると思われる。

比較的小規模の単位原子構造が周期的に連なる単一材料の場合は、周期境界条件を設定することで、その単位原子構造に関する計算負荷の低い解析で、全体の電子状態を明らかにできる。それに対して、異種材料の接合界面においては、原子構造のミスフィットにより、原子間の相対位置が場所により異なる。そのため、界面全体の電子状態を明らかにする第一原理計算は実行不可能である。このことから、金属/セラミクス界面のような、比較的扱いやすい無機材料界面においては、界面の特性を代表するであろうと考えられる、いくつかの小規模な界面原子構造について第一原理計算を行い、その結果をリファレンスデータとして、原子間ポテンシャルのフィッティングを行い、デバイスとしての規模に近い分子動力学シミュレーションまで実行されている。

この方法論に従う限りは、界面での欠陥の影響が評価できるのは分子動力学シミュレーションによってであり、欠陥が電子状態に与える影響を直接的に評価できない。この問題解決のためには、第一原理計算で扱おうる原子数の拡大、すなわち、計算速度の飛躍的上昇が必要である。理化学研究所が中心となって進めている、汎用京速計算機システムの開発に見られるように、高速コンピュータの主力は並列計算機である。この状況も合わせれば、並列計算と整合性の高い高速計算アルゴリズム開発が問題解決の有効な手段になると思われる。

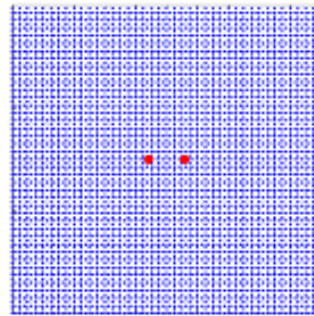
2. 研究の目的

本研究では、異種材料界面等の大規模原子系における電子構造を高速に計算可能な第一原理計算手法の実現のために、並列計算と整合性の高い、有限要素法を機軸とした実空間第一原理計算アルゴリズムを開発する。

実空間有限要素法は、既往の平面波法と異

なり、実空間に即した領域分割が可能であり、結果として並列ノード間の均等なロードバランスが容易に実現可能であることから、大規模並列計算に適する手法と目されている。その一方で、第一原理計算への適用例は平面波法に比して遥かに僅少であるため、その高速化手法に関する検討は未だ不十分である。本研究では以下の研究課題について検討を行った。(1) アダプティブ有限要素法による自由度削減による計算高速化の検討。(2) スペクトル要素法 (SEM) による高次有限要素による高速化の検討。(3) 4次セレンディビティ有限要素による計算高速化の検討。

Regular grid



Curving grid

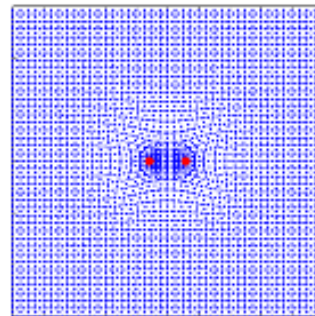


図1 酸素分子の計算における、直交格子状メッシュと Curving grid メッシュ

3. 研究の方法

(1) アダプティブ有限要素法による自由度削減による計算高速化の検討。

有限要素第一原理計算における自由度削減を目的として、アダプティブ有限要素法による自由度削減の効果について検討を行った。有限要素法では、波動関数をメッシュ上の節点値として離散化する。波動関数は原子核近傍において激しく振動するため、核近傍の波動関数の挙動を高精度に表すためには、核近傍に密なメッシュを配置する必要がある。アダプティブ法を用いてメッシュ分割を空間上で可変にすることにより、大幅な自由度の削減が可能となる。

本研究では、次章で後述する利点から、アダプティブ法として Curving grid 法 (CG 法)

を採用した. CG 法では, 式(1)のように, 写像関数 g を用いて直交座標系 \mathbf{x} から曲線座標系 ξ へ座標変換する.

$$\zeta_i(\mathbf{x}) = x_i + \sum_j \sum_p^{N_{\text{atom}}} (x_i - u_{i,j} - P_j) g_j(|x_i - u_{i,j} - P_j|) \quad (1)$$

$i=1,2,3$

\mathbf{P} は周期境界条件におけるイメージセルの原点を表すベクトル, N_{atom} はセルに含まれる総原子数, \mathbf{u}_j は原子座標である. 写像関数 g として Gygi によって提案された式(2)を用いた.

$$g_j(r) = A_j \operatorname{sech} \frac{r}{a_j} \quad (2)$$

ここで A_j と a_j はパラメータであり, エネルギー計算において妥当な値を与えるものを選択する. 本研究では式(1)の非線形方程式を Newton-Raphson 法によって解き, 図1のように, 直交格子状メッシュから CG メッシュを作成した.

(2) スペクトル要素法 (SEM) による高次有限要素による高速化の検討

有限要素第一原理計算における自由度削減を目的として, スペクトル要素法による計算高速化について検討を行った. 有限要素法およびスペクトル要素法では, 要素と呼ばれる空間の部分領域に局在する形状関数を用いて, 任意の関数を離散化する. スペクトル要素法を用いることにより, 高次の形状関数を持つ有限要素を容易に生成することが可能となる. その一方で, 高次要素は密な有限要素マトリックスを生成するため, 計算効率が落ちる. SEM では, GLL 多項式による形状関数, および GLL 積分点を用いることにより近似的に疎な有限要素マトリックスを得ることができるため, 高い計算効率を保ちつつ高次要素を使用できる利点がある.

N_g 次の GLL 多項式 $\phi_j^{(N_g)}(\xi)$ は, 1次元の局部座標上 $\xi \in [-1,1]$ において次式で定義される.

$$\phi_j^{(N_g)}(\xi) = \frac{-1}{N_g(N_g+1)L_{(N_g)}(\xi_j)} \times \frac{(1-\xi^2)L'_{(N_g)}(\xi)}{(\xi-\xi_j)} \quad (3)$$

式中の L は次式である.

$$L_{(N_g)}(\xi) = \frac{1}{2^{N_g} N_g!} \frac{d^{N_g}}{d\xi^{N_g}} (\xi^2 - 1)^{N_g} \quad (4)$$

ここで, ξ_j は j 番目の節点座標であり, 次式の方程式の解として与えられる.

$$(1-\xi^2)L'_{(N_g)}(\xi) = 0 \quad (5)$$

図2に, 上記の手続きによって得られる4次

の GLL 多項式を示した. 要素内のある1つの節点上でのみ1の値を取り, その他の節点上では0となる有限要素法で用いる形状関数の性質を満たしていることがわかる.

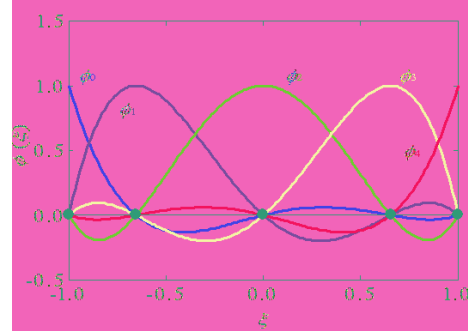


図2 1次元 SEM の4次要素における形状関数

(3) 4次セレンディピティ有限要素による計算高速化の検討

上述の SEM は高次要素の生成が容易であり, 疎な有限要素マトリックスによる計算高速化が見込める一方で, 多数の内部節点を持つことから自由度数の増大を招く. そこで, 最低限の節点で完備な形状関数を持つセレンディピティ有限要素4次要素を有限要素第一原理計算に実装し, その計算高速化効果を検証した. セレンディピティ4次要素は一般に用いられる要素ではないため, Rathod らによって提案された形状関数を修正して用いた. 図にセレンディピティ4次要素の配置を示す. SEM とは異なり, 内部節点を1個しか持たないため, 少ない自由度で高次の要素が実現できる.

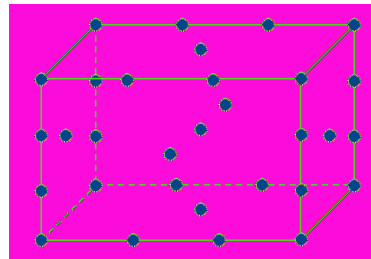


図3 セレンディピティ4次要素における節点配置

4. 研究成果

(1) アダプティブ有限要素法による自由度削減による計算高速化の検討.

周期境界条件下の酸素分子を対象とした第一原理計算による全エネルギー計算を行った. 酸素原子の原子核近傍には激しく振動する波動関数が存在する. 高精度に全エネルギーを評価するためには核近傍に密なメッシュを用いる必要がある. 密度汎関数法に基づくノルム保存型擬ポテンシャル法によって全エネル

ギーを計算した。有限要素にはセレンディピティ族六面体二次要素を用いた。誤差を式(6)によって定義する。

$$e = (E_{\text{FEM}} - E_{\text{REF}}) / N_{\text{atom}} \quad (6)$$

E_{FEM} は有限要素計算によって得られた全エネルギーである。参照エネルギー E_{REF} は平面波に基づく第一原理ソフトウェア ABINIT を用いて計算した参照エネルギーであり、真のエネルギー値とみなせるように、十分精度の高い値を用いた。要素幅 h に対する誤差収束を直交格子状のメッシュを用いた計算と CG メッシュを用いた計算で比較したものを図4に示す。図中の点線はカットオフエネルギー1904eVを用いたABINITによる誤差レベルである。

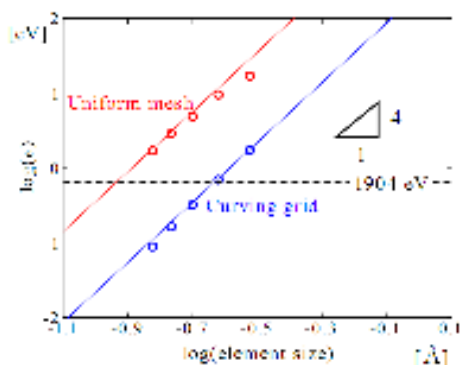


図4 セレンディピティ2次要素を用いた計算による酸素分子の全エネルギーの収束

2次の有限要素からなる直交格子状メッシュ上では、要素幅 h の減少に対して誤差 e は式(7)に従って単調減少する。

$$\log(e) = -2N \log(1/h) + \beta \quad (7)$$

ただし、 β は定数、 N は有限要素の次数である。図4から、十分要素幅が小さいとき、解は変分原理に基づいてエネルギーを最小化する方向へ収束することが分かる。また、CG法を用いた本計算においても式(7)の収束性が保たれている様子が示されている。式(7)は有限要素次数と誤差収束の関係を記述するものであり、CG法を用いても収束傾向が保存された事実は本研究で得られた重要な結果である。この性質を用いてカットオフエネルギー1904eV相当の精度を直交格子状メッシュ上で得るために必要な要素幅を図から予測すると約0.11 Åとなる。一方、CGメッシュにおいて必要な要素幅は約0.22 Åであり、これは直交格子状メッシュ上で二倍粗いメッシュに相当する。すなわち、CG法を用いることによって、直交格子状メッシュに比して $(1/2)^3$ の自由度で同等の精度が得られることになる。計算時間はほぼ自由度に比例するため、CG法により、計算時間が1/8近く大幅に削減可能であると言える。

(2) スペクトル要素法 (SEM) による高次有限要素による高速化の検討

SEMによって生成した高次要素の計算高速化の効果を検証するため、2次から5次までのSEM要素、およびセレンディピティ要素の2次要素を用いて計算を行い、得られた結果を比較する。式(7)から、有限要素の次数 N が収束傾向の傾きとなっていることから、高次の有限要素を用いることで速やかに高精度な解が得られるものと期待される。一方で、SEMでは有限要素マトリックスの疎行列化において積分点を減らす近似を用いている。ここではその近似が解精度に及ぼす影響についても調べた。

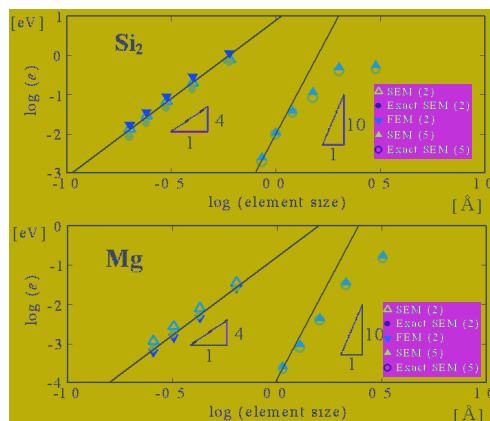


図5 シリコン分子およびマグネシウム hcp 結晶における、要素幅に対する全エネルギーの収束

図5にシリコン分子およびマグネシウム hcp 結晶における、要素幅に対する全エネルギーの収束を示した。図中、SEM(n)は n 次のSEMによる結果を表す。また、Exact SEM(n)は近似無しSEMによる結果である。FEM(2)は2次のセレンディピティ有限要素による結果を表す。SEMを用いた結果においても、解は変分原理に従って真の解へ上から漸近する。また、その収束特性が、前節での結果同様、式(7)に従っていることが示されている。また、疎行列化のために用いた近似は解精度に影響するものの、その影響は限定的である。図6に、要素次数ごとに計算時間を比較した結果を示した。マグネシウムの計算において4次のSEMと2次のセレンディピティ要素による結果を比較すると、 10^{-3} eV/atomの精度を持つ解を得るために要する時間はSEMの方が約1/2少ない。従って、高次要素を用いることにより、少ない自由度で高精度な解を計算可能となること、また、高次要素によって計算高速化が可能となることが示された。

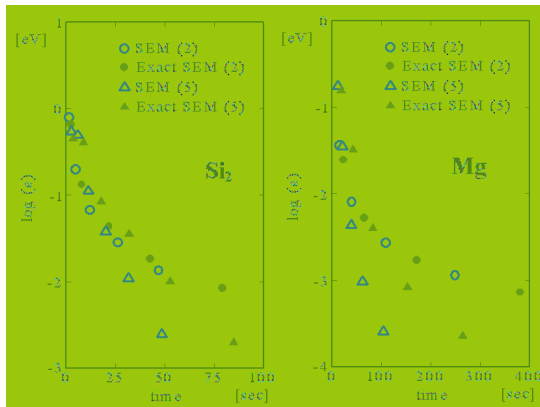


図6 シリコン分子およびマグネシウム hcp 結晶における全エネルギーの収束と計算時間の関係

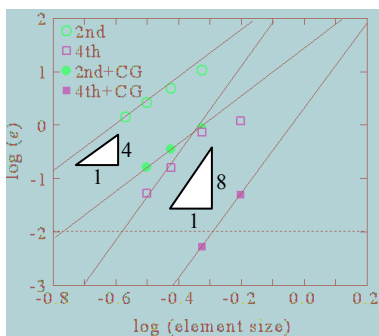


図7 セレンディピティ2次要素および4次要素を用いた計算による酸素分子における全エネルギーの収束と要素幅の関係

(3) 4次セレンディピティ有限要素による計算高速化の検討

4次セレンディピティ有限要素による計算高速化を検証するため、酸素分子の全エネルギー計算を行った。前節までの結果を考慮すると、CGメッシュ上で高次の有限要素を用いることにより大幅な高速化効果が得られると予想される。図7に酸素分子における要素幅に対する全エネルギーの収束を示した。十分要素幅が小さいとき、全エネルギーは式(7)に従って収束する。図7に自由度数に対する全エネルギーの収束を示した。(2)節での議論と同様に、図から1meVの精度を得るのに必要な自由度数を推測すると、セレンディピティ4次要素とCG法を組み合わせた計算はCG無しの二次要素を用いた計算の約1/38となった。計算時間が自由度数に比例すると仮定した場合、セレンディピティ4次要素とCG法を組み合わせた計算を行うことにより、CG無しの二次要素による計算に比しておよそ38倍の高速化が達成されたと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① Y. Shiihara, O. Kuwazuru, and N. Yoshikawa, Real-Space Ab-Initio Calculations on the Basis of Spectral Element Method, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol. 2, No. 10, 2008, pp. 1288-1297.

② Y. Shiihara, O. Kuwazuru, and N. Yoshikawa, Error-Convergence Property of ab-initio Finite-Element Calculation with Curving Grid, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol. 2, No. 1, 2007, pp. 95-104.

[学会発表] (計 4 件)

① Y. Shiihara, N. Ishizaki, O. Kuwazuru, and N. Yoshikawa, Real-Space ab-initio Calculations on the basis of Spectral Element Method, M&M International Symposium for Young Researchers, March 10, 2008, Wakayama.

② Y. Shiihara, O. Kuwazuru, and N. Yoshikawa, A parallel DFT program on the basis of domain-decomposition FEM, Third Asian-Pacific Congress on Computational Mechanics, December 3, 2007, Kyoto.

③ スペクトル要素法による実空間第一原理計算, 石崎 信之, 椎原良典, 桑水流理, 吉川暢宏, 日本機械学会 第20回計算力学講演会, 2007年11月26日, 京都.

④ 有限要素第一原理計算における Curving grid 法の誤差評価, 椎原良典, 桑水流理, 吉川暢宏, 日本機械学会 M&M2007 材料力学カンファレンス, 2007年10月24日, 東京.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉川 暢宏 (YOSHIKAWA NOBUHIRO)
東京大学・生産技術研究所・教授
研究者番号: 70230696

(2) 研究分担者

椎原 良典 (SHIIHARA YOSHINORI)
東京大学・生産技術研究所・機関研究員
研究者番号: 90466855