

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：63902

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21870

研究課題名(和文)自動コード生成技術によるプラズマ物質相互作用向け元素普遍ポテンシャルモデル開発

研究課題名(英文)Development of Universal Potential Model for Plasma Material Interaction by Using Automatic Code Generation

研究代表者

伊藤 篤史(Ito, Atsushi)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授

研究者番号：10581051

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,700,000円

研究成果の概要(和文)：プラズマと物質の界面で起こる諸現象の理解には、分子動力学や二体衝突近似に代表される原子レベルのシミュレーションが大変役に立つ。本研究では、それらのシミュレーションの実行に欠かせない原子間の相互作用を表現するポテンシャルモデルの開発に取り組んだ。(1)ポテンシャル関数の数式から自動的に計算コードを生成するメタコンパイラDAMAによってモデル開発のボトルネックを取り除き(特許第6738087号)、(2)関数探索の教師データとなる密度汎関数理論コードをベクトルプロセッサ向けに高速化し、(3)さらに、高エネルギー衝突領域の二原子間ポテンシャルを解析的に導出することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現実にはポテンシャルモデルは限られた元素の組み合わせに対してしか整備されておらず、原子レベルシミュレーションの普及の妨げの一因であった。本研究では元素に普遍的(Z-universal)なモデルの開発を提唱しており、それを具体的に行うフレームワークを提案した。特に研究開始時には想定していなかった二原子間の高エネルギー衝突向けポテンシャルを単なるフィッティングではなく、高精度かつ解析的に導出した関数として提唱できたことは重要である。なぜならば、世界中で取り組まれているポテンシャル開発において、二体の斥力項として汎用的に利用できるためである。核融合科学・プラズマ応用分野に留まらない貢献が期待される。

研究成果の概要(英文)：Atomic level simulations such as molecular dynamics and binary collision approximation are very useful for understanding various phenomena in the interface between plasma and material. In this research, we tackled on the development of a interatomic potential model that is indispensable for executing those simulations. In particular, (1) the bottleneck of model development was removed by the meta-compiler DAMA that automatically generates the simulation code from the formula of the potential function, (2) the density functional theory code which is used to generate the training data for searching potential function was turned to increase the speed on vector processors, and (3) we have succeeded in deriving analytically the interatomic potential for high-energy collision.

研究分野：プラズマ物質相互作用

キーワード：ポテンシャル 力場 分子動力学 二体衝突近似 密度汎関数理論 プラズマ物質相互作用 プラズマ壁相互作用 シミュレーション

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

分子動力学(MD)や二体衝突近似(BCA)に代表される原子レベルのシミュレーション技術は、核融合科学からプラズマ応用研究まで、プラズマと物質の相互作用が現れる現象の理解の助けとして大変期待されている。一方で、その活用が十分に進まない原因として、原子間の相互作用を記述する相互作用ポテンシャルモデルが十分に整備されていない点が挙げられる。限られた元素の組み合わせについてのみポテンシャルモデルが整備されているのが実情で、さらにその精度に関してもばらつきが大きい。よって、実験で試料を変えるように、扱う元素を簡単に変えてシミュレーションを行うということが簡単にはできないことが普及の妨げになっている。

さらに特筆すべき状況として、プラズマと物質の相互作用では、プラズマから材料に入射する粒子の運動エネルギーは 10eV から 100keV 程度であり、このような高エネルギーでの原子衝突過程が重要である。一方で物性物理や理論化学の用途で開発されたポテンシャルモデルでは、エネルギー的には負の領域に当たる原子の結合状態の再現に重点が置かれており、高エネルギー領域の衝突は本来適用範囲外であるモデルも少なくない。

2. 研究の目的

このような状況において、プラズマ-物質相互作用研究で用いることを想定したポテンシャルモデルの開発が必要である。特に、元素の種類に普遍的(Z-universal)なモデルであることと、プラズマ照射特有の高エネルギー衝突のエネルギー領域でも良い予測精度(信頼性)を有することの2点を目指した。一方で、予測精度に言及した理想的なモデル開発は簡単に完了できるものではない。本研究では、これらの要求を満たすポテンシャルモデルの開発を現実的に短期間で行えるような萌芽的フレームワークの開発を目的とする。

3. 研究の方法

ポテンシャルモデルの開発とは、原子間の相互作用を原子の相対位置座標の関数として表現する関数形の探索である。原子間の相互作用は、本来、原子核間に働くクーロンポテンシャルの斥力に加え、原子核周りの電子の量子力学的分布によって決まる。原子核の位置さえ決めれば、少なくとも電子の基底状態の分布は一意に決まることが密度汎関数理論(DFT)から期待される。しかし、実際には数値計算によって数値的に得られるものであり、数式による表現としては得られない。さらに電子密度の汎関数を積分して、原子核の相対位置座標だけを変数に持つ関数として抽出することが必要となるが、ここも数値積分を行うことになる。よって、現実的には数学的操作からポテンシャル関数を得ることは不可能に近い。

実際的手段としては、機械学習を用いて近似的に関数形を探索することになる。図1を参考に、主に次のような手順となる。(1)化学的性質を良く再現できそうな関数形を考案する。(2)次に、関数形から数値シミュレーション用のプログラムコードを作成する。(3)DFTの結果を教師データとして関数形の中に現れるパラメータを最適化する。(4)評価を行い、要求精度を満足する関数形が得られれば完成となるが、満足しない場合は関数形の考案(1)へ戻る。一つの元素の組み合わせに対するポテンシャルモデルを得るまで、この試行錯誤を何度も繰り返すこととなる。そして時間的なボトルネックの一つは、関数形を考案した後でそれをプログラムコードに修正する部分である。それを加速するべくポテンシャル関数の数式をTeX形式で入力することで、MD計算用のプログラムコードを自動生成するメタコンパイラ DAMA を開発し、実用レベルのツールへと整備することを第一の目標とした。

次に、教師データとなる原子配置とエネルギーおよび力のデータセットを高速に生成できるDFTコードの開発も必要であった。

また、プラズマ-物質相互作用特有の課題である高エネルギー衝突向けのポテンシャルの開発も重要な課題に位置付けた。核融合分野や半導体分野においてBCAと呼ばれる計算手法において用いられてきたZiegler-Biersack-Littmark(ZBL)ポテンシャルを参考として、高エネルギー衝突領域を対象として、かつ、元素ユニバーサルなモデルを理論的に導出することとした。BCAは原子のダイナミクスを二体衝突のみに限定した計算手法であるが、ここで開発したポテンシャルは、MD用のポテンシャルにおける斥力を表現する二体項としても利用することができる。

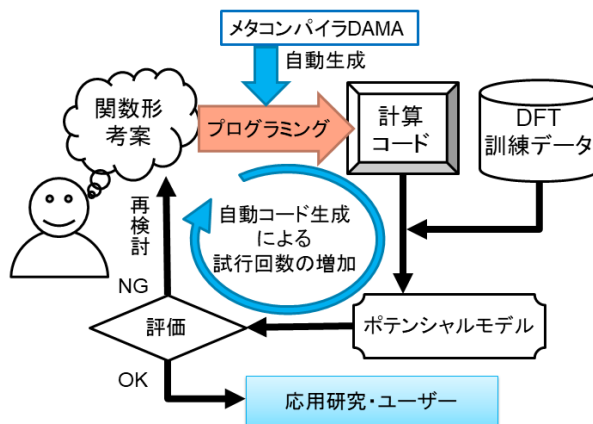


図1. 自動コード生成により時間の掛かるプログラミング作業が無くなり試行回数が向上。

4. 研究成果

考案したポテンシャルの数式からコードを自動生成するメタコンパイラ DAMA については、研究開始当初にはプロトタイプを作っていた段階だが、本研究期間中に実用に向けた整備を行った。特に、本研究期間中に特許を取得した[伊藤篤史, 自然科学研究機構, "数式処理方法", 特許第 6738087 号, 2020 年 7 月 21 日]。

考案した関数形に対するパラメータ最適化のための教師データや、最終的な精度の評価のためのテストデータとして、DFT によって計算した原子配置とエネルギーおよび力のデータセットを用いる。この DFT 計算のコストを下げることは現実的な課題である。本研究では DFT 計算に OpenMX コードを利用する。OpenMX は国産コードの中では非常に高いシェアを持つオープンソースコードであり、筆者も開発に協力してきた。ところで、本コードは主にスカラ型のプロセッサを対象としたコードとなっていた。一方で、プラズマ分野におけるフラッグシップスーパーコンピュータとして、核融合科学研究所のプラズマシミュレータが 2020 年 6 月より稼働を開始したが、本機が NEC 社製のベクトルプロセッサ SX-Aurora TSUBASA を主演算装置としていた。そこで、本研究において OpenMX コードのベクトル型スーパーコンピュータ向けのチューニングを行った。結果として、従来コードに対して 3 倍の計算速度を達成した。現行のスカラ型プロセッサを代表する Intel 社製の Skylake と比較して、理論演算性能に対する実演算性能において約 1.3 倍高速に計算できるようになった。プラズマ分野における DFT 計算の普及に役立つと期待できる。

プラズマ-物質相互作用特有の課題である高エネルギー衝突向けのポテンシャルの開発として、ZBL ポテンシャルを参考に、ReGenerated ZBL(ReGZ)ポテンシャルを開発した。

DFT の考えに基づけば、エネルギー $E[\rho]$ は電子密度 ρ の汎関数である。ここで、原子番号 Z_1 および Z_2 の二原子がそれぞれ独立に存在するときの球対称電子密度を ρ_{Z_1} および ρ_{Z_2} 、二原子が有限距離 R の距離にあるときの電子密度を ρ_{dimer} とすると、相互作用ポテンシャルエネルギー $U(R)$ は次のように定義できる。

$$U(R) = E[\rho_{\text{dimer}}] - E[\rho_{Z_1}] - E[\rho_{Z_2}] + \frac{Z_1 Z_2}{R}.$$

その上で、Thomas-Fermi ポテンシャルの枠組みではポテンシャル関数が

$$U(R) = \frac{Z_1 Z_2}{R} \phi(R),$$

と記述できると考える。すなわち、電子分布に依存する部分を、電子によるスクリーニング関数 $\phi(R)$ として置き換えることを要請している。言い換えれば、二原子間の高エネルギー衝突向けのポテンシャルの開発は、適切なスクリーニング関数の考案である。

これまで最も良く使われている ZBL ポテンシャルは、スクリーニング関数としてたった 4 項の指数関数の線形結合である。必要なパラメータは指数関数の肩に乗る係数と、線形結合の係数の 8 つである。これらのパラメータの決定では、ランダムに選ばれた 256 種類の元素の組み合わせに対して、Thomas-Fermi-Dirac DFT の算出値と合うようにフィッティングを行っている。当時の計算機リソースの観点から教師データとなる数値計算精度も低く、全ての元素の組み合わせを準備できない問題もあるものの、機械学習的なポテンシャルモデル開発の走りともいえる研究であった。

さて、我々はまず、現在のコンピュータリソースから高精度な教師データを全ての元素ペアに対して準備した。このとき、高エネルギー衝突のように非常に原子核同士が接近する場合には、内殻部分を擬ポテンシャル近似する DFT の処方箋が使えない。そこで、二極座標系と対数グリッドを組み合わせた高精度な二原子系 DFT コードを開発した。

次に、関数形の考案とパラメータの最適化では、Z-universal なモデルとしてできるだけ少ないパラメータでの記述を模索した。元素の数を $N_z \leq 118$ としたとき、二原子の組み合わせは $N_z^2 \sim 10^4$ だけ存在する。もし、各組に対して個別にパラメータを決めた場合、パラメータの数は N_z^2 のオーダーになってしまう。汎用モデルとしては些か多く、計算コード場も使い勝手が悪い。特に MD の斥力項として用いるには、より少ないパラメータ数が望まれる。ZBL ポテンシャルが普及したのは、8 つという少ないパラメータ数にある。そこで、本研究ではパラメータ数が高々 N_z のオーダーとなるモデルを目指した。

そこで、二原子間のポテンシャルエネルギーを教師データとしてフィッティングすることはせず、先に独立した単原子状態での球対称電子密度 $\rho_Z(r)$ を次の線形結合関数で近似することにした。

$$\rho_Z(r) = \sum_{i=1}^{L_Z} \frac{A_{Z,i}}{4\pi(n_{Z,i} + 2)!} \left(\frac{2}{a_{Z,i}}\right)^3 \left(\frac{2r}{a_{Z,i}}\right)^{n_{Z,i}} \exp\left(-\frac{2r}{a_{Z,i}}\right).$$

パラメータ $A_{Z,i}$ 、 $n_{Z,i}$ 、 $a_{Z,i}$ は単原子状態を球対称 DFT で解いて得られた球対称電子密度に対してフィッティングして求める。項数 L_Z は経験的に数項で済む。このときのパラメータ数は、元素の種類 $O(N_z)$ である。次に、得られた電子密度を Thomas-Fermi-Dirac DFT に代入してエネルギーを積分して得る。ここで、積分に数値計算を用いず、解析的に行えることを見出した点が本研究の最大の強みである。これにより、二原子間のポテンシャル関数におけるスクリーニン

関数 $\Phi(R)$ が次のように得られた。

$$\Phi(R) = \sum_{k=1}^2 \sum_{i=1}^{L_{Z_k}} \sum_{s=0}^{n_{Z_k}+1} \alpha_{kis} \left(\frac{2R}{a_{Z_{k,i}}} \right)^s \exp\left(-\frac{2R}{a_{Z_{k,i}}}\right)$$

ここでパラメータ α_{kis} は、用いた2種類の原子の球対称電子密度の近似で用いたパラメータ $A_{Z,i}$, $n_{Z,i}$, $a_{Z,i}$ の組み合わせから一意に決まることが示される。ただし、非常に長い数式となるので具体的な数式はここでは割愛する。ともかくも、任意の二元素で構成される二原子間のポテンシャル関数が、たかだかオーダー $O(N_z)$ 個のパラメータで記述することができた。

さて、Thomas-Fermi-Dirac DFT から算出した二原子間の相互作用エネルギーの数値計算データは、ZBL ポテンシャルにとっては教師データとして用いたが、本研究の ReGZ ポテンシャルにおいては検証用のテストデータになる。図2に数値計算データ、ZBL ポテンシャル、ReGZ ポテンシャルを示す。どの元素の組み合わせに対しても、数値計算データと ReGZ ポテンシャルが非常によく一致していることが分かる。一方で ZBL ポテンシャルとは、原子間距離 R が 1 Bohr から 4 Bohr の範囲でずれていることがわかる。この領域はプラズマ照射下で起こる原子衝突において強く影響する部分である。このことから、ZBL ポテンシャルから ReGZ ポテンシャルへ置き換えることが有意義であると示唆される。

さて、本研究において、メタコンパイラ DAMA を中心としたポテンシャル開発フレームワークを開発し、その「骨格」となる二原子間ポテンシャルモデルを解析的な関数形として提案することができた。骨格の意味するところは、ここで求めた高エネルギー衝突向けの二原子間ポテンシャルは、MD 用ポテンシャルの斥力項として採用することができるためである。実際に、機械学習を利用した MD 用ポテンシャル開発は各所で行われているものの、斥力項の扱いは研究分野によっては重要視されていない。一方で、機械学習においては一般的に、パラメータを決定するイタレーションにおいて、影響度の大きい項から順番に決定されていく。ポテンシャルモデルにおいて最も大きな値を取る影響度の大きい項は二体の斥力項である。よって、斥力項の関数形の決定が、周辺との多体相互作用を表す引力項の形状を作用する。その斥力項を高精度かつ解析的な関数として提案できたことの意義は大きい。今回の萌芽的研究から端を発して、ポテンシャルモデル開発がさらに発展し、プラズマ核融合からプラズマ応用分野にまたがって原子レベルシミュレーションの普及に貢献できることが期待される。もっと言えば ReGZ ポテンシャルがより広い分野におけるポテンシャル開発の骨格として貢献できることも期待できる。

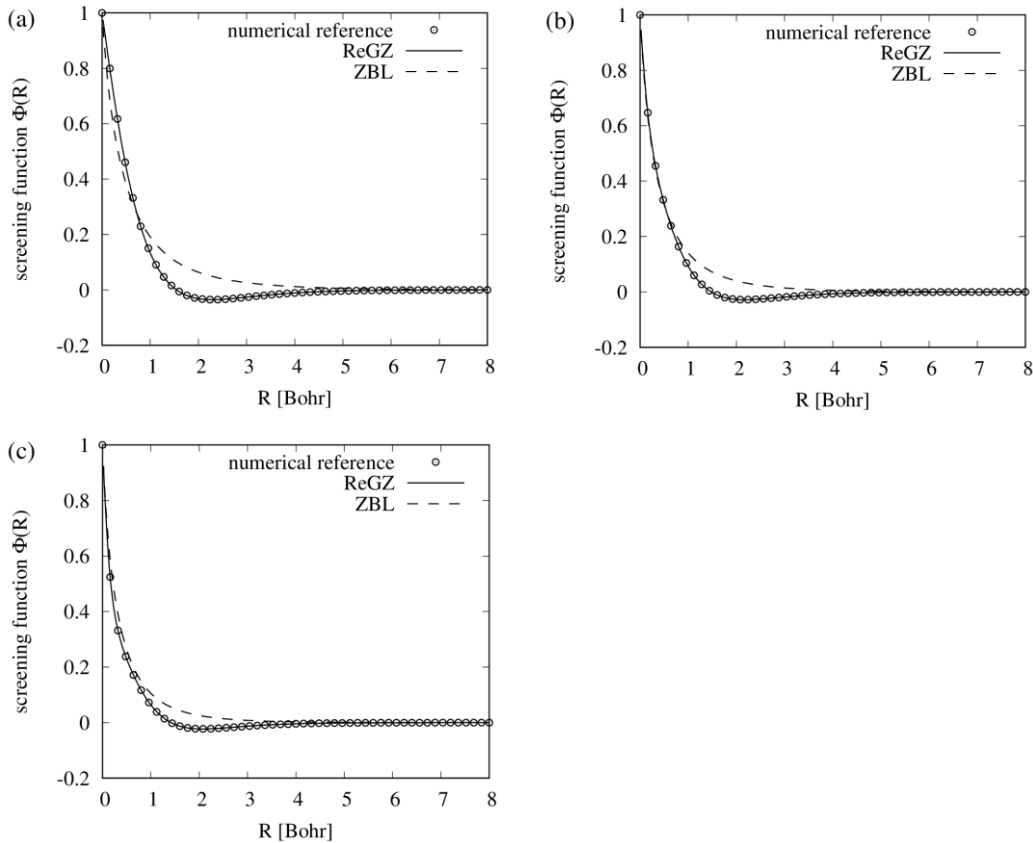


図2. (a) H-H 二量体, (b) H-C 二量体, (c) C-C 二量体に関するスクリーニング関数 $\Phi(R)$. 円で示された点列は数値積分によるリファレンスデータ, 実線と点線はそれぞれ ReGZ ポテンシャルと ZBL ポテンシャルである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Atsushi M. Ito, Arimichi Takayama, Osamu Watanabe, Vijendra Singh, Shubham Tyagi, and Shashank S. Singh	4. 巻 15
2. 論文標題 Tuning of Density Functional Theory Simulation on Vector Processor System - Plasma Simulator Raijin -	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 1203085
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.15.1203085	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 伊藤篤史	4. 巻 96
2. 論文標題 Markdownによる原稿執筆のすゝめ	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 プラズマ・核融合学会誌 (Journal of Plasma and Fusion Research)	6. 最初と最後の頁 379-387
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 5件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 Atsushi M. Ito and Arimichi Takayama
2. 発表標題 Finite temperature effect of kinetic Monte-Carlo on tungsten surface diffusion
3. 学会等名 14th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito, Arimichi Takayama, Hiroaki Nakamura
2. 発表標題 Modernization of Binary Collision Approximation Simulation for Plasma-Material Interaction
3. 学会等名 10th Asian Conference on High Pressure Research (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito, Arimichi Takayama, Hiroaki Nakamura
2. 発表標題 Gapped Scale Simulation Approach for Plasma-Material Interaction
3. 学会等名 30th International Toki Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 プラズマ照射下の空間マイクロかつ時間マクロな構造変化の再現計算への挑戦
3. 学会等名 化学工学会 第52回秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito, Arimichi Takayama, Hiroaki Nakamura
2. 発表標題 Effects of Sputtering, Re-deposition and Diffusion Processes for Helium Plasma Induced Metal-nanostructure with Multi-hybrid Simulation Analysis
3. 学会等名 74th Annual Gaseous Electronics Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 プラズマ-物質科学におけるシミュレーションと情報科学の協同とは
3. 学会等名 プラズマ材料科学第153委員会150回記念研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi M. ITO, Arimichi TAKAYAMA, Hiroaki NAKAMURA
2. 発表標題 Incident Energy Dependence of Tungsten Fuzzy Nanostructure Growth with BCA-MD-KMC Multi-Hybrid Simulation
3. 学会等名 4th Asia-Pacific Conference on Plasma Physics 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊藤 篤史, 高山 有道, 中村 浩章
2. 発表標題 シミュレーションで見られるファズ成長のスパッタリング・再堆積過程の重要性
3. 学会等名 第37回プラズマ・核融合学会年会(JSPF Annual Meeting)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 オンザフライ動的モンテカルロ法の開発と金属ナノ構造の原子表面拡散への応用
3. 学会等名 第76回日本物理学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito
2. 発表標題 Two-body Potential for Atomic Collision in Plasma-Material Interaction
3. 学会等名 ISPlasma2020/IC-PLANTS2020, Nagoya University, Nagoya, Japan, March 8-11, (2020). (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito
2. 発表標題 Refinement of Interatomic Potential for Medium Energy Atomic Collision
3. 学会等名 28th International Toki Conference, Toki, Japan, Nov. 8-11 (2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Atsushi M. Ito
2. 発表標題 Molecular Dynamics Potential Development toward Z-Universal Model for Plasma-Material Interaction
3. 学会等名 The Joint Conference of XXXIV ICPIG and ICRP-10, Sapporo, Japan, July 14-19, (2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 高エネルギー散乱のための二原子間ユニバーサルポテンシャルモデル
3. 学会等名 第33回分子シミュレーション討論会, 名古屋市公会堂, 2019年12月9日-12月11日
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 分子動力学と二体衝突近似に向けた二体ポテンシャル項の研究
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会, 中部大学, 2019年11月29日-12月2日
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 二原子衝突向けのポテンシャルモデルの再考
3. 学会等名 プラズマシミュレーションポジウム2019, 核融合科学研究所, 2019年9月19-20日
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤篤史
2. 発表標題 二原子間ポテンシャルのユニバーサルモデル再考
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会 岐阜大学, 2019年9月10-13日
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 伊藤篤史、笠田竜太、金子俊郎、福田努、小池耕彦、坂本貴和子	4. 発行年 2022年
2. 出版社 マイナビ出版	5. 総ページ数 176
3. 書名 機動戦士ガンダム 宇宙世紀vs.現代科学	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究代表者のWebページ http://www-fps.nifs.ac.jp/ito/ NowType a Markdown Editor (研究ノート・原稿執筆支援ツール) https://atsushi-m-ito.github.io/nowtype/ 研究代表者のWebページ http://www-fps.nifs.ac.jp/ito NowType a Markdown Editor (研究ノート・原稿執筆支援ツール) https://atsushi-m-ito.github.io/nowtype/</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------