

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2013～2014

課題番号：25887017

研究課題名(和文) テンソル分解法を用いた高精度第一原理計算手法の開発

研究課題名(英文) Development of first-principles calculation method using tensor decomposition

研究代表者

笠松 秀輔 (Kasamatsu, Shusuke)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60639160

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,500,000円

研究成果の概要(和文)：第一原理計算とは、量子力学の原理をもとに、コンピュータ上で物質の振る舞いを再現するための計算手法の総称である。第一原理計算による「コンピュータ実験」を利用することで、物質・材料開発を加速することができる。実際には、量子力学の原理をそのまま用いようとすると計算量が世界最速のスーパーコンピュータ上でも扱えないほどに大きくなってしまふので、様々な近似手法が用いられるが、多くの場合で十分な精度で計算できていないのが現状である。そこで本研究では、データ解析の分野で着目されている「テンソル分解」を採用することで、高精度かつ適用範囲の広い第一原理計算手法を目指した開発を行った。

研究成果の概要(英文)：First-principles calculation refers to simulation methods for reproducing the behavior of matter in computers from the laws of quantum physics. It is expected that materials development can be sped up drastically by taking advantage of “computer experiments” using first-principles calculation. In reality, many approximations are employed since it is computationally intractable even on today’s fastest supercomputers when using the laws of quantum physics without approximation. Because of this, it has not been possible to attain acceptable levels of precision in many cases. In this work, we aimed for development of a first-principles methodology with high precision and wide applicability through the use of “tensor decomposition”, which has been gaining attention in the field of data component analysis.

研究分野：計算材料学

キーワード：第一原理計算 配置間相互作用 テンソル分解

1. 研究開始当初の背景

近年の計算機の発展により、密度汎関数法 (DFT) を用いた第一原理計算の実材料、実デバイス開発への応用が飛躍的に進展している。京コンピュータを用いることにより、Si ナノワイヤ (100,000 原子) 等の電子状態計算が現実のものになっている。しかしながら、解決すべき重要な課題も残されている。広く用いられてきた局所密度近似 (LDA) や一般化勾配近似 (GGA) では、電子どうしの相関や交換の記述を、波動関数を用いずに電子密度の局所的な汎関数として、近似的に行う。このため、計算コストが抑えられ比較的大規模な計算が可能であるが、定量性という観点では不十分であるケースが多数指摘されている。特に電子相関の記述が苦手であり、いわゆる強相関電子系の電子構造を正しく記述できない。また、金属表面の分子吸着サイトの予測や酸化物中の欠陥準位の予測などの、触媒反応や半導体デバイスなどの応用上重要な問題に対して、場合によっては定性的にも誤った結果を与えることがある (文献①)。こうした状況に鑑みて、DFT ではなく、電子相関を正しく記述できる基礎理論に立ち返って新たな第一原理計算手法を構築する試みがなされている。昨今、固体電子論の分野では多体摂動論に基づく GW 法や量子モンテカルロ法がさかんに研究されているが、本研究ではテンソル分解法に着目した。最近、スピン系の物理において正確に取り扱うことのできる系の大きさを飛躍的に向上させ、低次元量子相の熱力学などの理解を加速度的に進める原動力となっている方法である。

2. 研究の目的

本研究では配置間相互作用法から出発し、固体電子論と親和性の高いテンソル分解のアルゴリズムを独自に開発し、いくつかの物質に適用して計算精度の検証を行った。

完全配置間相互作用 (CI) 法では、 $N$  体の波動関数は  $M$  個の規格直交基底系  $\phi_a(x)$  の積の線形結合として表す：

$$\Psi(x_1 \cdots x_2) = \sum_{a_1 \cdots a_N=1}^M A_{a_1 \cdots a_N} \phi_{a_1}(x_1) \cdots \phi_{a_N}(x_N).$$

このように記述した波動関数に対してエネルギーを最小化するように  $A_{a_1 \cdots a_N}$  を選ぶことで、基底状態の波動関数とエネルギーが得られる (変分原理)。これは採用した基底系において最も精度の高い波動関数の表現となるが、項数が系の大きさに対して指数関数的に大きくなるため、現実的な物質・材料系の計算に利用するのは不可能である。そこで、研究協力者の植村・杉野は、この  $A_{a_1 \cdots a_N}$  を対称テンソル分解 (symmetric tensor decomposition; STD) した表現：

$$A_{a_1 \cdots a_N} = \sum_{i_1 \cdots i_N=1}^M \sum_{r=1}^K c_{i_1}^r \cdots c_{i_N}^r \epsilon_{i_1 \cdots i_N} U_{i_1 a_1} \cdots U_{i_N a_N}$$

で表し、 $\{c\}$ 、 $\{U\}$  に対する変分計算により基

底状態の波動関数を求めることを提案した (STD-CI 法; 文献②)。ここで、 $\{U\}$  は直交行列である。また、 $K$  はテンソル分解の階数であり、 $K = M C_N$  のときに厳密に正しい展開が得られるが、これより小さい場合でも十分正確に波動関数を表現できることが期待される。テンソル分解は実際に、画像データなどの多次元データの圧縮に用いることができることが示されている (文献③)。計算量やメモリ量は  $K, M$  の多項式に比例する (指数関数的ではない) ため、 $K$  が十分小さく済む場合は、完全 CI に対して大きな優位性を有する。本研究では、この手法の適用範囲や精度を明らかにすると共に、上記とは異なるテンソル分解表現による計算の可能性を探った。

3. 研究の方法

本研究ではまず、植村・杉野が提案した STD-CI 法のプログラムを拡張性を確保した形で整備し、OpenMP や MPI を用いた並列計算の実装によって高速化を行った。また、研究に必要な入力フォーマットを整備した。これを用いて、計算精度の検証や、異なるテンソル分解表現の検証などを行った。

4. 研究成果

(1) STD-CI 法の検証: BeH<sub>2</sub> 分子の分解過程

植村・杉野は STD-CI 法を提案した論文で、H<sub>2</sub> や LiH、He<sub>2</sub> などの単純な二原子分子において、 $K=3$  以下で完全 CI と同等の精度 (誤差 0.01 mHartree 未満) が得られることを示しているが、より複雑かつ相関効果の大きい系における検討は不十分であった。そこで本研究では、BeH<sub>2</sub> の分解・結合過程 (BeH<sub>2</sub> = Be + H<sub>2</sub>) について計算を行った。

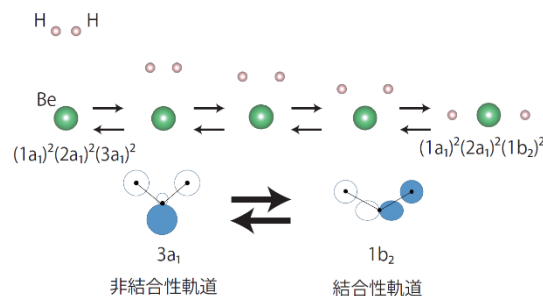


図 1: BeH<sub>2</sub> の解離・結合過程の電子配置

この過程では、図 1 の通り、非結合性軌道が最高被占軌道 (HOMO) となる電子配置と、結合性軌道が HOMO となる電子配置の寄与が遷移状態近傍で競合する。このため、多配置の電子相関を十分な精度で記述できる方法論でないと正確な電子状態の記述は困難であるとされる。

BeH<sub>2</sub> 分子の安定構造 (A) から、Be 原子を抜き取り、H<sub>2</sub> 分子と Be 原子に完全に分離する (I) までの経路上のエネルギーを図 2 に示す。ここでは、スピンと軌道の対称性を考慮した

完全 CI 法 (厳密解)、対称性を考慮しない完全 CI 法、STD-CI 法 (テンソル分解の階数  $K=1, 2, 4$  の場合)、ハートリー・フォック (HF) 法による結果を比較している。

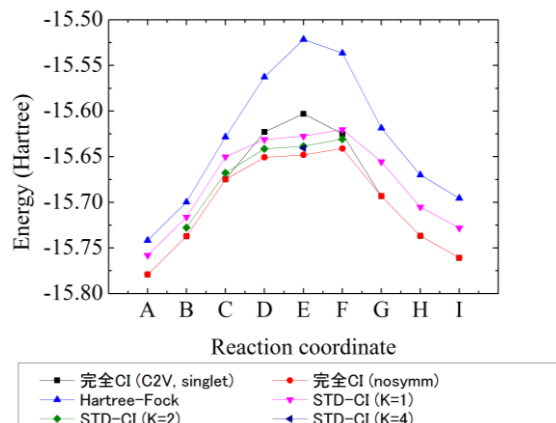


図 2 : 計算手法ごとの  $\text{BeH}_2$  の解離・結合過程のエネルギーの比較

まず、完全 CI 法では対称性の考慮の有無で遷移状態近傍でのエネルギーが 50 mHartree 程度異なっており、適切な対称性の拘束条件を掛けないと満たすべき対称性を有しない解が得られてしまうことが分かる。STD-CI 法では対称性を考慮していないので、数理的な比較対象は対称性を考慮していない完全 CI 法となる。無論、正確な電子状態の記述のためには対称性を考慮する必要があり、対称性を考慮したテンソル分解 CI 法の開発は今後の課題である。

さて、HF 法は 1 つの配置しか記述できないため、図 1 の 2 つの配置が競合する遷移状態付近 (図 2 の E 点近傍) では 0.1 Hartree 以上もエネルギーを過大評価することが分かる。一方、STD-CI 法では  $K=2$  の場合、対称性を考慮しない完全 CI 法とのエネルギー差は 10 mHartree 程度であり、HF 法よりもかなり良い値が得られていることが分かる。しかしながら、これ以上  $K$  を増やしていくと変分計算の収束性が悪化してしまい、より正確な解を得ることは困難であった。

## (2) 拡張 STD 法の開発

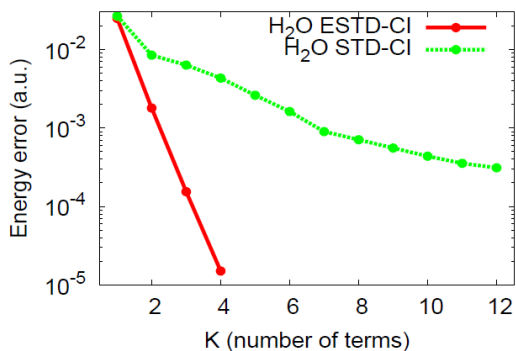


図 3 : 水分子の計算における STD-CI 法と ESTD 法の比較 (文献④より引用)

変分計算自体の収束性や、階数  $K$  に対する収束性を改善するためには、テンソル分解の表現自体を変更し、より変分計算に適した形にすることが有用であると考えられる。そこで我々は上記  $A_{a_1 \dots a_N}$  を

$$A_{a_1 \dots a_N} = \sum_{r=1}^K \sum_{i_1 \dots i_N=1}^M \epsilon_{i_1 \dots i_N} V_{i_1 a_1}^r \dots V_{i_N a_N}^r$$

のようにパラメータ化することを提案した [拡張 STD (ESTD) 法; 文献④]。ここで  $\{V^r\}$  は、テンソル分解の階数  $r$  ごとに異なる一般の複素行列であり、元の STD-CI 法よりも変分の自由度が増している。ESTD 法と STD-CI 法を水分子の計算で比較したものを図 3 に示す。ESTD 法の方が速やかに  $10^{-4}$  Hartree 未満に収束していることが分かる。しかしながら、ESTD 法では電子数  $N$  とテンソル分解の階数  $K$  が大きくなると情報落ち誤差により数値精度を保てないという問題が発生した。これは、上記  $\{V^r\}$  にユニタリ行列であるという拘束条件を付加することで解決可能であることが分かった。図 4 においてこの方法 (Antisymmetric Unitary Geminal Powers; AUGP) と ESTD を比較している。AUGP 法は ESTD 法よりは変分の自由度が下がっているため、小さい  $K$  での精度は劣るが、 $K$  を増やしてい

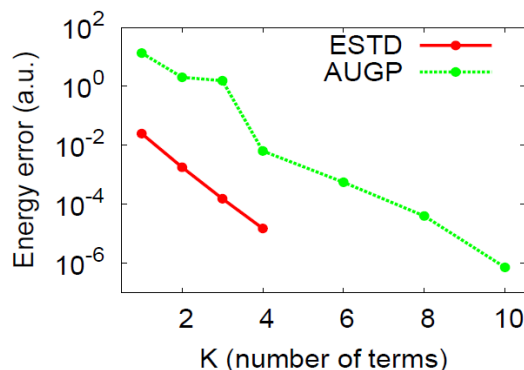


図 4 : 水分子の計算における ESTD 法と AUGP 法の比較 (文献④より引用)

くことでほぼ指数関数的に倍精度実数の限界まで収束させることができた。

## (3) 本研究のインパクトおよび今後の展望

AUGP 法および ESTD 法の計算量は  $K^M$  に比例する (文献④)。本研究ではこれらの方法が、物質系の大きさに対して指数関数的に計算量が増大する CI 法と同等の精度を有することを、10 電子程度までの系で示すことができた。従って、本研究のテンソル分解手法は、弱相関系から強相関系まで様々な物質系に適用できる高精度第一原理計算手法の標準となる可能性を秘めていると言える。しかしながら、多様な物質系に対する実用性を計るためには今後、物質系の複雑さに対して、必要なテンソル分解階数  $K$  の値がどのように増加するかを明らかにする必要がある。すなわち、 $K$  自体が指数関数的に増大してしまう場

合は、CI法と同様の弱点を有することになってしまう。また、ハイパフォーマンスコンピューティングの進展に伴い、並列化スーパーコンピュータ上で効率的に計算を行うためのアルゴリズムの検討などが不可欠となるであろう。

<引用文献>

- ① A. J. Cohen, P. Mori-Sánchez, and W. Yang, *Science* **321**, 792 (2008).
- ② W. Uemura and O. Sugino, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 253001 (2012)
- ③ “CANDECOMP/PARAFAC: images as tensors of order 3”. In mapleprimes. Retrieved June 8, 2015, from <http://www.mapleprimes.com/posts/97861-CANDECOMP/PARAFAC-Images-As-Tensors-of-Order-3>.
- ④ W. Uemura, S. Kasamatsu, and O. Sugino, *Phys. Rev. A*, to be published.

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 1件)

“Configuration Interaction with Antisymmetrized Geminal Powers”,  
W. Uemura, S. Kasamatsu, and O. Sugino,  
*Phys. Rev. A*, to be published, 2015 (査読あり);  
arXiv:1504.06250 [physics.chem-ph].  
[http://journals.aps.org/praccepted/7e077N3aQdd1bc16139f93f41789da4617cb71c76](http://journals.aps.org/praccepted/accepted/7e077N3aQdd1bc16139f93f41789da4617cb71c76)  
<http://arxiv.org/abs/1504.06250>

[学会発表] (計 3件)

- ① 「対称テンソル分解による配置間相互作用法とその発展」、  
植村渉、笠松秀輔、杉野修、  
第5回CMSI研究会、2014年12月9日、  
東北大学片平キャンパス (宮城県仙台市)
- ② 「対称テンソル分解CI法によるBeH<sub>2</sub>分子の解析」、  
笠松秀輔、植村渉、杉野修、  
日本物理学会2014年秋期大会、2014年9月8日、  
中部大学春日井キャンパス (愛知県春日井市)
- ③ “Symmetric tensor decomposition-configuration interaction study of BeH<sub>2</sub>”,  
S. Kasamatsu, W. Uemura, and O. Sugino,  
American Physical Society March Meeting  
2014, Mar. 5, 2014, Denver Convention  
Center, Denver, Colorado

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笠松 秀輔 (KASAMATSU, Shusuke)  
東京大学・物性研究所・助教  
研究者番号: 60639160

(2) 研究協力者

杉野 修 (SUGINO, Osamu)  
東京大学・物性研究所・准教授

植村 渉 (UEMURA, Wataru)  
東京大学・物性研究所・特任研究員