

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 22 日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540370

研究課題名(和文) 第一原理と最適化手法に基づく超大規模電子状態計算

研究課題名(英文) Ultra-large-scale electronic state calculations based on ab initio theory and mathematical optimization methods

研究代表者

星 健夫 (HOSHI, Takeo)

鳥取大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80272384

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：第一原理電子状態理論および数理的な最適化手法を基礎として、超大規模電子状態計算の理論構築と応用に取り組んだ。最適化手法としては、多重アーノルディ法などのクリロフ部分空間型線形計算アルゴリズムを開発し、「京」コンピュータ上での最大1億原子系までの超並列計算が達成された。また、第一原理計算にもとづく最適化モデル(タイトバインディング型)理論の構築にもとづく。アモルファス状共役高分子系での局在した電子状態やナノ複合カーボン固体系でのナノドメイン解析などの研究を行った。

研究成果の概要(英文)：Ultra-large-scale electronic state calculations were developed, which is based on the ab initio theory and mathematical optimization methods. Optimization methods, in particular, Krylov-subspace linear-algebraic algorithms were investigated and implemented in the code. In result, massively parallel computations with one-hundred-million atoms were realized on the K computer. Moreover, optimized model (tight-binding-form) theory was obtained from ab initio calculations. Application studies were carried out for localized pi states in amorphous-like conjugated polymers and nano-domain analysis of nano-composite carbon solid.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：大規模電子状態計算 ナノ構造材料 超並列計算 京コンピュータ

1. 研究開始当初の背景

表面・界面・ナノ構造研究の基盤的理論手法として、大規模(1000 原子以上)電子状態計算法の研究は、世界的な傾向である。大規模計算を実現する1つの方法は、次世代スパコンなどの大規模計算機を効率的に用いることである。しかしながら、計算対象が無数に存在する物性物理においては、小規模計算機における超大規模計算(100 万原子以上)実現も必須である。ここでいう小規模計算機は、主に、マルチコア CPU が数個搭載されたワークステーション(おおよそ 100 万円程度)を想定している。

これら状況をうけ、我々が中心となって開発して来た、オーダーN型電子状態計算コード「ELSES」を発展させる形で、本研究を立案した。

2. 研究の目的

本研究では、100 万原子以上の電子状態計算を、小規模計算機で、一般研究者にも自在に使えるようにすることを目的として、第一原理計算と最適化数値手法を組み合わせた、大規模電子状態計算理論とプログラムコード開発を当初目的とした。

研究進展と共に、高い並列性をもった数値アルゴリズムが開発されたため、小規模計算機ならず、「京」などのスーパーコンピュータでの実用性を示すことも、目的に加わった。

3. 研究の方法

手法の中核である大規模電子状態計算コード「ELSES」[1]は、固有値問題の代わりにシフト型線形方程式を数値基盤とし、多重アーノルディ法[4]などの新しいクリロフ部分空間型線形計算アルゴリズム[2,4,6,7,8]を用いることで、オーダーN性(計算時間が原子数 N に比例すること)や高い並列性能を有する。また、手法が数理的であるため適用対象が広く、金属・絶縁体の双方に使える。また、タイトバインディング型のモデル理論を用いた電子状態計算となっており、第一原理計算からモデル理論を自動最適化する研究も行なった。

4. 研究成果

(1) 新しい数値アルゴリズムによるオーダーN計算

多重アーノルディ法[2]により、新しい数値アルゴリズムによるオーダーN計算が達成された。

図1は、小型計算機(研究室ワークステーション)によるオーダーN型ベンチマークである。1000 万原子までの計算が達成され、「100 万原子」という当初目的を大幅に上回る成果が得られている。

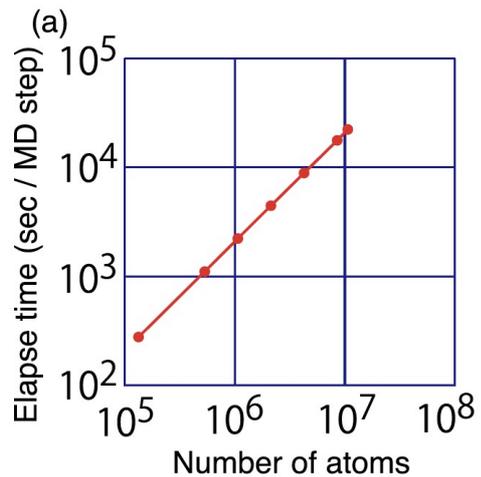


図1 オーダーN($O(N)$) スケーリング [4]。物質はアモルファス状共役高分子系(poly-(9,9 dioctyl fluorine))。

(2) 「京」全体までを用いた超並列計算

開発された多重アーノルディ法[2]は高い並列性をもった数値アルゴリズムであったため、「京」コンピュータ全体を用いた超並列計算を行い、高い並列性能が得られた。

図2に結果をしめす。1 億原子までの計算が達成された。1 億原子はシリコン単結晶 126nm 立方領域に相当するので、「100 ナノスケール」系計算が達成されたことになる。物質は、ナノ多結晶ダイヤモンド(注 1)の研究に用いた、 sp^2 - sp^3 ナノ複合カーボン固体である。利用コア数 $P=32,768$ を基準とした並列効率 α が、 $P=98,304$ で $\alpha=0.98$ 、 $P=294,912$ で $\alpha=0.90$ 、 $P=663,552$ (「京」全コア) で $\alpha=0.73$ 、であった。

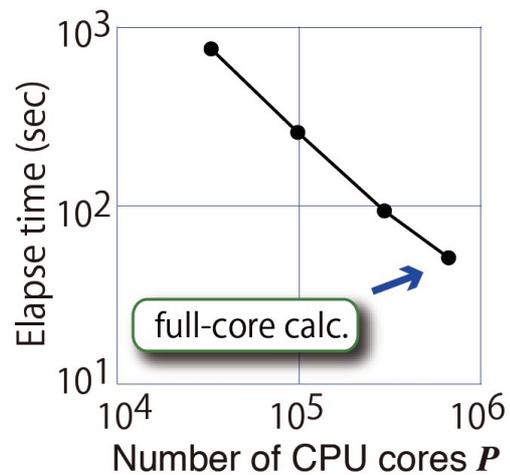


図2: 「京」での 103,219,200(約 1 億, 世界最大)電子状態計算における並列効率(strong scaling) [1]。

(3) 応用研究：sp²-sp³ ナノ複合カーボン固体におけるナノドメイン可視化解析

手法の特徴を生かした大規模系研究として、日本発の超強度材料である、ナノ多結晶ダイヤモンド(注 1)の形成過程研究として、sp²-sp³ ナノ複合カーボン固体におけるナノドメイン可視化解析を行った。有限温度計算の結果得た原子構造において、量子力学的局所結合解析理論である、COHP 解析 (crystalline orbital Hamiltonian population) (注 2)、および、その理論拡張である、 π 型 COHP 解析[3]を適用した。これらはグリーン関数にもとづく計算であり、これら解析自体も超並列計算として実行されている。

図 3 に結果をしめす。sp²(グラファイト的)領域と sp³(ダイヤモンド的)領域を、量子(電子状態)解析にもとづき定量的・自動的に判別した。(a)では sp²/sp³ 両方のドメインを可視化し、(b)では sp² ドメインのみに可視化している。(c) はドメイン境界のクローズアップであり、sp²/sp³ 構造が確認できるため、理論の有用性が確認されたことになる。

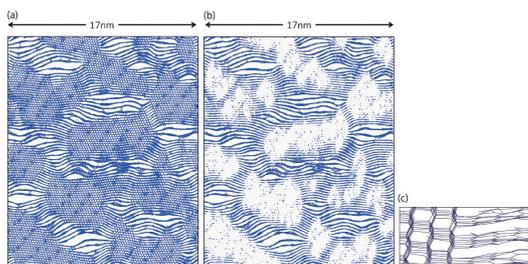


図 3 : COHP, π COHP (量子解析) 理論を用いた、sp²-sp³ ナノ複合カーボン固体系(NCCS)の可視化解析[1]。(a) sp²/sp³ ドメイン両方の可視化。(b) sp² ドメインのみの可視化。(c) sp²/sp³ ドメイン境界の拡大図。

(4) 第一原理からのモデル化 (tight-binding 型) システム構築。

第一原理計算から、最適なモデル化システム(tight-binding 型ハミルトニアン)を導出する研究を行った。主な対象として、高分子有機 EL 系の基礎物質である、poly-(9,9 dioctyl fluorene) (PF0) [4]、および、電池関連物質であるイオン液体分子系 N-methyl-N-propylpiperidinium bis(trifluoromethanesulfonyl) imide (PP13-TFSI) [5]をとりあげた(注 3)。図 4 に結果をしめす。参照とする第一原理計算は、標準的なソフトウェア「Gaussian09」による B3LYP/6-31G(d, p)法を用いた。結果として、

第一原理計算とモデル化計算は高い一致をみた。

特に PF0 についてはアモルファス状構造で局在した π 電子波動関数(図 4(a))が得られ、これらが光学物性の中心を担うことが推測された。

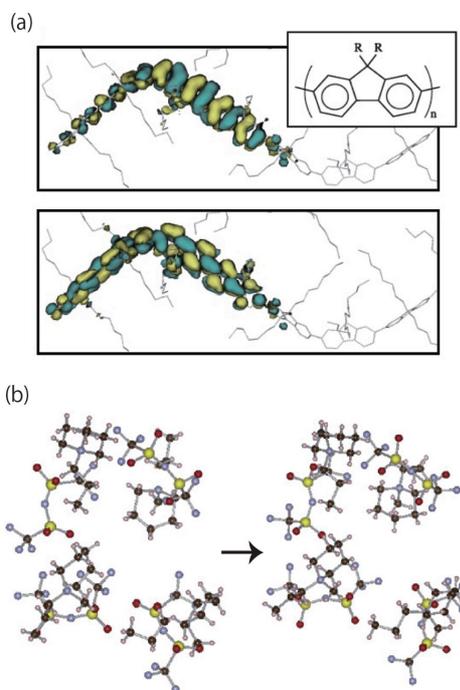


図 4 (a) アモルファス状高分子有機 EL 系物質 poly-(9,9 dioctyl fluorene) (PF0) [4] (b) イオン液体分子系 N-methyl-N-propylpiperidinium bis(trifluoromethanesulfonyl) imide (PP13-TFSI) [5]

(注 1) T. Irifune, A. Kurio, A. Sakamoto, T. Inoue, and H. Sumiya, Nature 421 (2003) 599.

(注 2) R. Dronskowski and P. E. Blochl, J. Phys. Chem. 97 (1993) 8617

(注 3) 本研究と平行して、固体の第一原理計算(平面波基底型計算)を参照してのモデル構築化研究も、我々のコード(ELSEs)を基盤としておこなわれている: Y. Ohtani, T. Fujiwara, S. Nishino, T. Suzuki, S. Yamamoto, and Y. Zempo, MRS Proceedings 1523, mrsf12-1523 qq06-08 (2013)

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 8 件)

- [1] T. Hoshi, K. Yamazaki, Y. Akiyama, 'Novel linear algebraic theory and one-hundred-million-atom electronic structure calculation on the K computer', JPS Conf. Proc. 1, 016004, 4pp. (2014), 査読あり.
- [2] D. Lee, T. Miyata, T. Sogabe, T. Hoshi, S.-L. Zhang, 'An interior eigenvalue problem from electronic structure calculations', Japan J. Indust. Appl. Math. 30, pp 625-633 (2013), 査読あり.
- [3] T. Hoshi, Y. Akiyama, T. Tanaka and T. Ohno, 'Ten-million-atom electronic structure calculations on the K computer with a massively parallel order-N theory', J. Phys. Soc. Jpn. 82, 023710, 4pp (2013), 査読あり.
- [4] T. Hoshi, S. Yamamoto, T. Fujiwara, T. Sogabe, S.-L. Zhang, 'An order-N electronic structure theory with generalized eigenvalue equations and its application to a ten-million-atom system', J. Phys.: Condens. Matter {**¥bf** 24}, 165502, 5pp (2012), 査読あり.
- [5] S. Nishino, T. Fujiwara, H. Yamasaki, S. Yamamoto, T. Hoshi, 'Electronic structure calculations and quantum molecular dynamics simulations of the ionic liquid PP13-TFSI', Solid State Ionics 225, 22-25 (2012), 査読あり.
- [6] T. Sogabe, T. Hoshi, S.-L. Zhang, T. Fujiwara, 'Solution of generalized shifted linear systems with complex symmetric matrices', J. Comp. Phys. 231, 5669-5684 (2012), 査読あり.
- [7] 山下達也, 宮田考史, 曾我部知広, 星健夫, 藤原毅夫, 張紹良, '一般化固有値問題に対するArnoldi(M;W;G)法', 日本応用数理学会論文誌 21, 241-254 (2011), 査読あり.

- [8] H. Teng, T. Fujiwara, T. Hoshi, T. Sogabe, S.-L. Zhang, S. Yamamoto, Efficient and accurate linear algebraic methods for large-scale electronic structure calculations with nonorthogonal atomic orbitals, Phys. Rev. B, 83, 165103, 12pp (2011), 査読あり.

〔学会発表〕 (計 30 件)

- [1] 星健夫, '京での超大規模量子物質シミュレーションとクリロフ部分空間', 27. Dec., 2013, 日本応用数理学会三部会連携「応用数理セミナー」, 東京大学 (招待講演)
- [2] 星健夫, '数学・計算物質科学・HPC分野の融合としての超大規模電子状態計算', 10-13., Dec., 2013, 物性研スパコン共同利用・CMSI 合同研究会, 東京大学 (招待講演)
- [3] Takeo Hoshi, Tomohiro Sogabe, Takafumi Miyata, and Shao-Liang Zhang, 'Novel linear algebraic theory and one-hundred-million-atom quantum material simulations on the K computer', 14-17., Oct., 2013, The First International Workshop on Computational Science and Engineering, National Taiwan University Taipei, Taiwan (招待講演)
- [4] 山崎溪太, 秋山洋平, 星健夫, 'Pythonを用いた電子状態計算むけ波動関数可視化ツールの開発', 25-28., Sep., 2013, 日本物理学会, 徳島大学, 徳島 (ポスター発表).
- [5] 星健夫, 秋山洋平, '京コンピュータにおける超大規模電子状態計算', 25-28., Sep., 2013, 日本物理学会, 徳島大学, 徳島 (口頭発表)
- [6] 山崎溪太, 秋山洋平, 星健夫, 'Pythonを用いた電子状態計算むけ波動関数可視化ツールの開発', 27., Jul., 2013, 応用物理学会 中国四国支部学術講演会, 香川大学, 香川 (ポスター発表)
- [7] 秋山洋平, 星健夫, '超大規模電子状態計算におけるナノ複合カーボンの可視化解析', 27., Jul., 2013, 応用物理学会 中国四国支部学術講演会, 香川大学, 香川 (口頭発表)
- [8] Takeo Hoshi, Keita Yamazaki, Yohei Akiyama, 'Novel linear algebraic theory and one-hundred-million-atom electronic structure calculation on the K computer', 14-19., Jul, 2013, The 12th Asia Pacific Physics Conference (APPC12), Makuhari Messe, Chiba (口頭発表)
- [9] 星健夫, 秋山洋平, '超大規模超並列電子状態計算を中核とした物理・数理・HPCの融合研究', 11-12., Jul, 2013, 学際大規

模情報基盤共同利用・共同研究拠点第5回シンポジウム, THE GRAND HALL, 東京 (ポスター発表)

[10] Takeo Hoshi, 'Krylov subspace theories and ultra-large-scale electronic state calculations on the K computer', 18-20., June, 2013, The 9th East Asia SIAM Conference The 2nd Conference on Industrial and Applied Mathematics (EASIAM-CIAM 2013), Institut Teknologi Bandung, Bandung, West Java, Indonesia. (招待講演)

[11] 星健夫, 曾我部知広, 宮田考史, 張紹良, '数学・計算材料科学・HPC分野の融合としての大行列数値アルゴリズム', 13-15., Mar., 2013, 計算材料科学と数学の協働によるスマート材料デザイン手法の探索, 東北大学 (招待講演)

[12] 星健夫, '超大規模超並列電子状態計算における Application-Algorithm-Architecture Co-design', 10-11. Feb. 2013, 第3回産業科学研究所共同研究研究会, メープル有馬, 神戸市有馬温泉 (招待講演)

[13] 星健夫, '超大規模電子状態計算における Application-Algorithm-Architecture Co-design', 20. Nov. 2012, 日本応用数理学会「行列・固有値問題の解法とその応用」研究部会 第14回研究会 (招待講演)

[14] T. Hoshi, S. Yamamoto, T. Fujiwara, T. Sogabe, S.-L. Zhang, Y. Akiyama, T. Ohno, 'Ten-million-atom electronic structure calculations with novel linear-algebraic algorithm and the K computer', 11-13 Oct. 2012, International Symposium on Computics: Quantum Simulation and Design (ISC-QSD), Osaka University Hall (招待講演)

[15] 秋山洋平, 川居佳史, 星健夫, 'Python-OpenGLによる大規模電子状態計算むけ可視化ツール VisBARの開発', 18-21. Sep. 2012, 日本物理学会, 横浜国立大学 (ポスター発表)

[16] 星健夫, 秋山洋平, 大野隆央, '並列化大規模電子状態計算によるナノ構造シミュレーション', 18-21. Sep. 2012, 日本物理学会, 横浜国立大学 (口頭発表)

[17] 星健夫, 山元進, 曾我部知広, 藤原毅夫, 張紹良, 大野隆央, '一般化クリロフ部分空間法と大規模電子状態計算への応用', 1-3. Aug. 2012, 並列/分散/協調処理に関するサマー・ワークショップ (SWoPP), 鳥取 (口頭発表)

[18] 星健夫, 川居佳史, 秋山洋平, '超大規模電子状態計算における π 状態ナノドメインの可視化解析', 24-27. Mar. 2012, 日本物理学会, 関西学院大学 (口頭発表)

[19] 西野信也, 藤原毅夫, 山元進, 山崎久嗣, 山本智, 星健夫, 'Li₄GeS₄, Li₃PS₄におけるLiイオンのダイナミクス: 第一原

理電子構造計算および長時間 (ns) タイトバインディング分子動力学計算を用いた解析', 24-27. Mar. 2012, 日本物理学会, 関西学院大学 (口頭発表)

[20] 星健夫, '超大規模電子状態計算の基礎と応用', 19-20. Mar. 2012, 平成23年度自然科学研究機構 研究者による分野間連携プロジェクト「非平衡を制御する科学」第二回研究会, 鳥取大学 (招待講演)

[21] T. Hoshi, T. Sogabe, S. Yamamoto, S. Nishino, T. Fujiwara, S.-L. Zhang and Y. Yamamoto, 'Novel linear-algebraic theories in large-scale electronic structure calculation and its application to nano-materials', 7. Mar. 2012, Dresden-Kobe Joint Workshop on Electronic Simulations for Nanosystems, Kobe University (招待講演)

[22] 西野信也, 藤原毅夫, 山元進, 山崎久嗣, 山本智, 星健夫, 'Li₄GeS₄, Li₃PS₄中Liイオンのダイナミクス: 第一原理電子構造計算および長時間 (ns) タイトバインディング分子動力学計算を用いた解析', Dec. 7-9, 2011, 第37回固体イオニクス討論会, 鳥取 (口頭発表)

[23] Shinya Nishino, Takeo Fujiwara, Susumu Yamamoto, Hisatsugu Yamasaki, Satoru Yamamoto, and Takeo Hoshi, 'Li ion dynamics in Li₄GeS₄ and Li₄GeP₄: First Principle Electronic Structure Calculation and Long Time Tight Binding Molecular Dynamics Simulation', Oct. 31-Nov. 2, 2011, The 14th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Tokyo (ポスター発表)

[24] 西野信也, 藤原毅夫, 山崎久嗣, 山本智, 山元進, 星健夫, 'Li₄GeS₄の量子分子動力学シミュレーション', Oct. 17-20, 2011, 第52回電池討論会, 東京 (口頭発表)

[25] Shinya Nishino, Takeo Fujiwara, Hisatsugu Yamasaki, Satoru Yamamoto, Susumu Yamamoto, and Takeo Hoshi, 'Quantum Molecular Dynamics Simulation of the Ionic Liquid PP13-TFSA Doped with LiTFSA', Sep. 11-16, 2011, 62nd Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry - Electrochemical Frontiers in Global Environment and Energy, Niigata (ポスター発表)

[26] 西野信也, 藤原毅夫, 山崎久嗣, 山本智, 山元進, 星健夫, 'イオン液体/リチウム塩電解質の量子分子動力学シミュレーション', Sep. 21-24, 2011, 日本物理学会, 富山大学 (口頭発表)

[27] 川居佳史, 田中辰典, 秋山洋平, 星健夫, 'Pythonによる電子状態計算むけ原子構造可視化ツールの開発', Sep. 21-24, 2011, 日本物理学会, 富山大学 (ポスター発表)

[28] T. Hoshi, S. Nishino, Y. Zempo, S. Yamamoto, T. Fujiwara, T. Sogabe, S.-L. Zhang, M. Ishida, 'Large-scale electronic structure calculation with ELSEs and its application to conjugated polymer', Sep. 2-8, 2011, Seventh Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ISTCP-VII), Waseda, Tokyo (口頭発表)

[29] 川居佳史, 田中辰典, 秋山洋平, 星健夫, 'Python を用いた電子状態計算むけ原子構造可視化ツールの開発', 20. Jul, 2011, 応用物理学会・日本物理学会・日本物理教育学会 中国四国支部 2011 年度 合同支部学術講演会 (口頭発表)

[30] Shinya Nishino, Takeo Fujiwara, Hisatsugu Yamasaki, Susumu Yamamoto, and Takeo Hoshi, 'Electronic structure calculations and quantum molecular dynamics simulations of the ionic liquid PP13-TFSA', Jul. 3-8, 2011, the 18th International Conference on Solid State Ionics, Warszawa, Poland (ポスター発表)

[図書] (計 0 件)

該当なし。

[産業財産権]

○出願状況

該当なし

○取得状況

該当なし

[その他]

ホームページ:

<http://www.damp.tottori-u.ac.jp/~hoshi/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

星 健夫 (HOSHI, Takeo)

鳥取大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 80272384

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし