

実材料解析に向けた 大規模電子状態計算プログラム

物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトニクス研究拠点 量子物性シミュレーショングループ 主任研究員 中田 彩子

2021年6月15日



電子状態計算とは

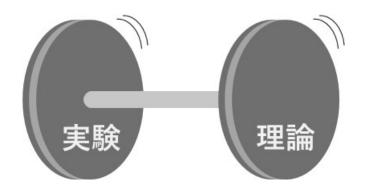
理論計算

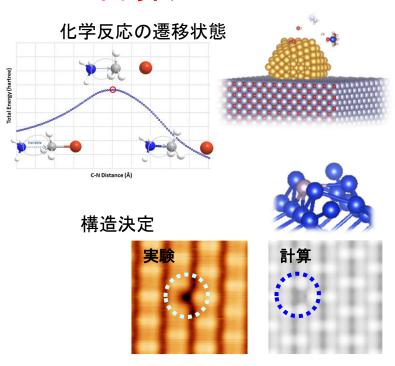
古典分子動力学シミュレーション

電子状態計算(量子化学計算·第一原理DFT計算)

機械学習

:



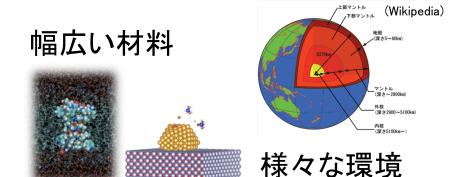


材料の性質の詳細な解析・予測 → 新規材料設計

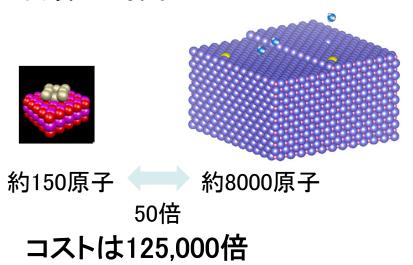


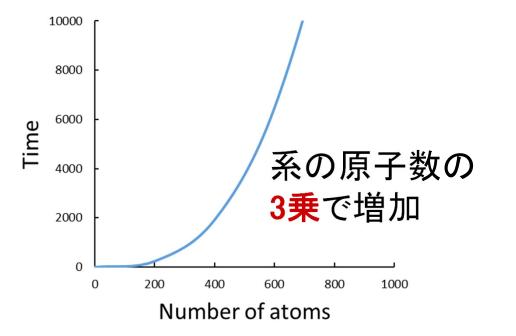
従来のDFT計算の長所と問題点

- ◎ 高精度
- ◎ 材料の種類や環境を問わない



- 😮 計算が大変
 - ・大きなメモリが必要
 - ・計算に時間がかかる



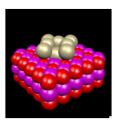


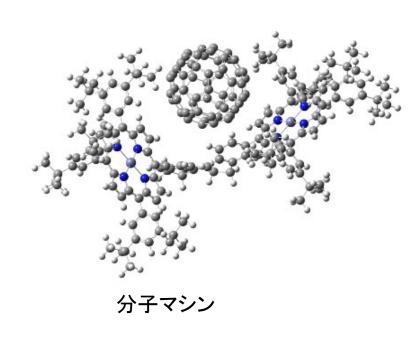


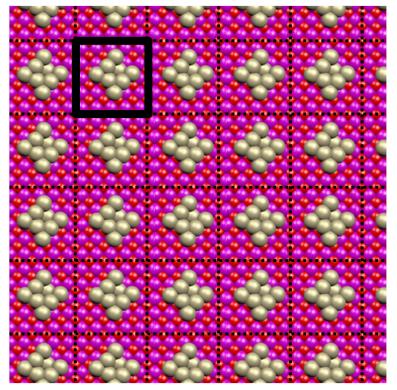
シミュレーションモデルのサイズ問題

一般的なDFT計算プログラムでは ≤ 1000原子









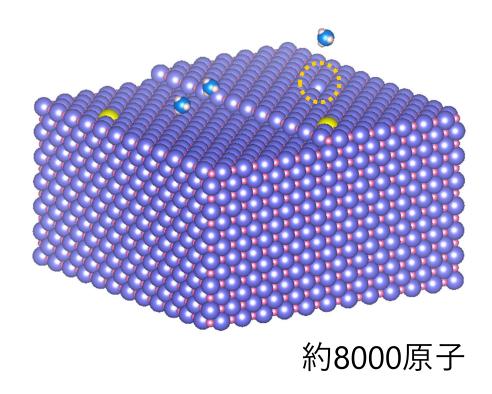
溶媒なし

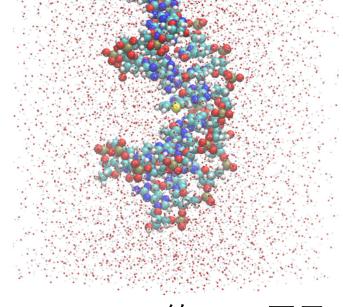
清浄表面 or 高被覆率



実在系のシミュレーション

実在系に即したモデル 数千原子以上





約3000原子



大規模第一原理計算プログラム

CO QUEST





- ●局所軌道関数
- ●オーダーN計算手法の導入
- 高い並列化効率

「京」スーパーコンピュータ [705,024core]



100万原子系のDFT計算が 1MDステップあたり約5分で可能



局所軌道関数(サポート関数)

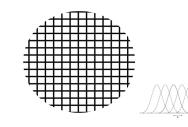
密度行列(電子密度)を表するために使われる

用意した実空間基底関数から作られる

$$\phi_{\alpha}(r) = \sum_{\mu} c_{\alpha\mu} \chi_{\mu}(r)$$

サポート関数

実空間基底関数

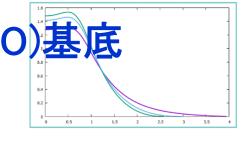


ある距離で完全にゼロになる 局在性(疎行列)



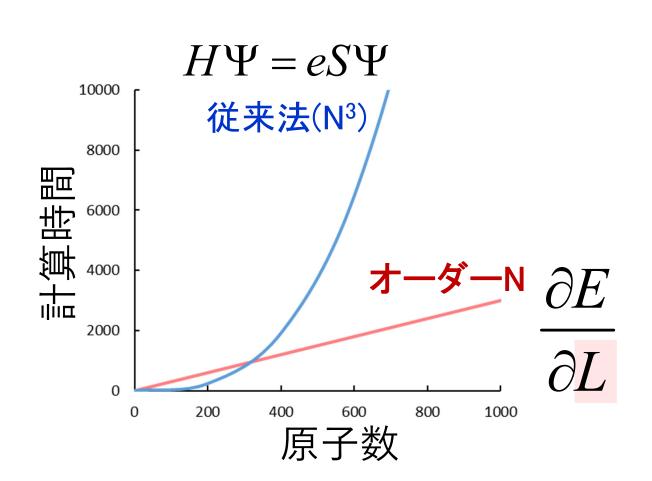
高速化!

- 有限要素(Bスプライン)基底 (平面波基底の再現)
- 擬原子軌道(PAO)基底





オーダーN計算



エネルギーの密度行列に対する 微分を使って最小化

対角化しない!



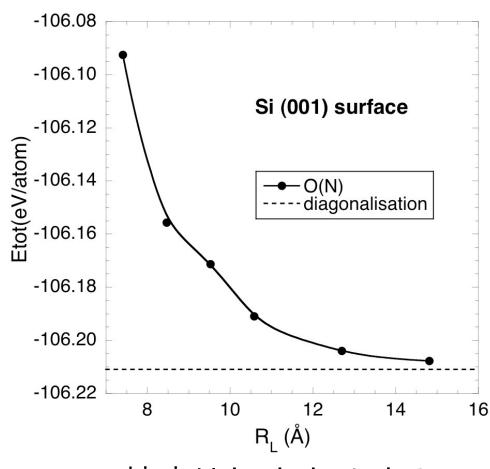
オーダーN計算

 $\frac{\partial E}{\partial L}$



空間的なカットオフを導入 することで疎行列化

→ オーダーN

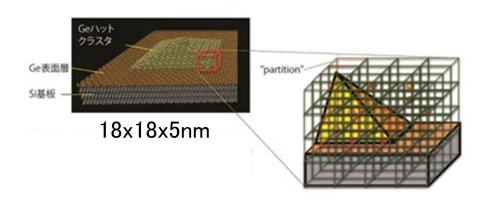


精度はカットオフによる



高い並列化効率

「京」での並列化効率 (Bulk Si, ノードあたり原子数一定の計算)



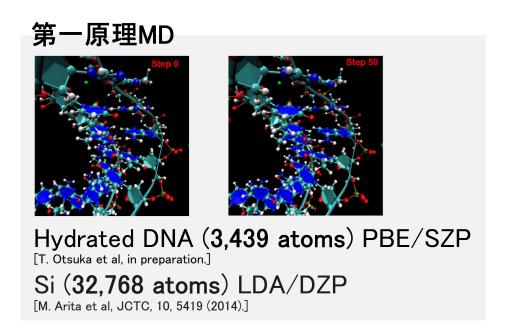
計算量ができるだけ均等に なるようにデータを分配 Wall Time (sec/ MD step) 1600 -32 atoms/core 1920 CPU 16 atoms/core 8 atoms/core 4 atoms/core 1200 3840 CPU 1920 CPU 7680 CPU 800 7680 CPU 12,288 CPU 3840 CPU 100万原子! 400 12,288 CPU 24,576 CPU $2x10^5 4x10^5 6x10^5 8x10^5 1x10^6 1.2x10^6$ Number of atoms

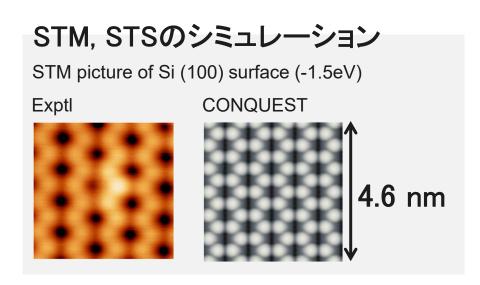
中規模クラスターからスパコンまで 高効率計算が可能



CONQUESTの機能

構造最適化 STM of Ge hut cluster on Si surface [Y.-W. Mo et al. PRL 65, 1020 (1990).] 20万原子系の構造最適化 Optimized geometry by CONQUEST [Miyazaki et al., JPSJ, 77, 123706 (2008).]

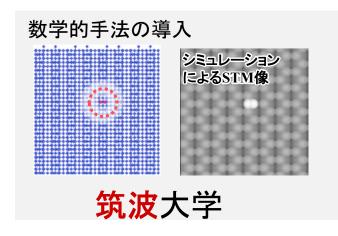




TDDFT (励起状態計算)(今後の課題), ブルームーンアンサンブル法 (化学反応), Constraint DFT, HF exchange,



世界への展開







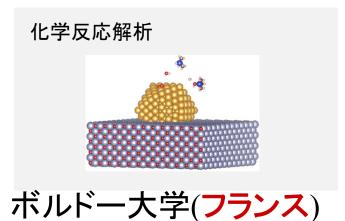
大規模計算手法の開発





国際共同開発

大阪大学







イギリス: David Bowler

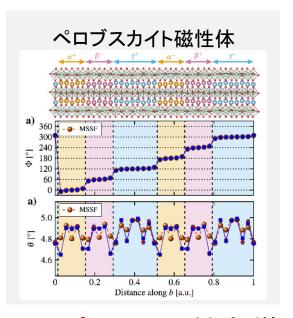
(ロンドン大学)

フランス: Lionel Truflandier (ボルドー大学)



金属表面上のグラフェン

マドリッド自治大学 (スペイン)

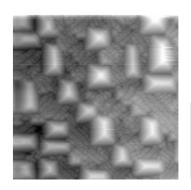


ノルウェーエ科大学

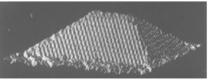


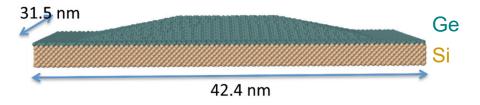
大規模系の安定構造計算

Ge hut cluster on Si(001)

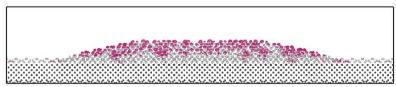


I.Goldfarb et al., PRL **78**, 3959 (1997)) Y.-W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber and M. G. Lagally, PRL **65**, 1020 (1990)



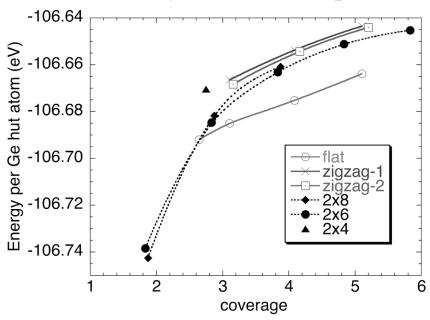


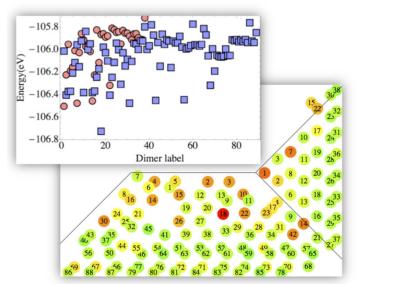
20万原子系の第一原理計算による 構造最適化・電子状態計算 (「京」1024 CPU (~1%))



Miyazaki et al., JPSJ, 77, 123706 (2008) Nakata et al., J. Chem. Theory Comput. 13, 4146 (2017).

2次元および3次元構造の安定性と被覆率の関係



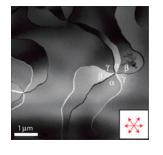


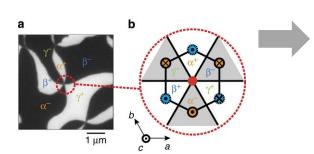


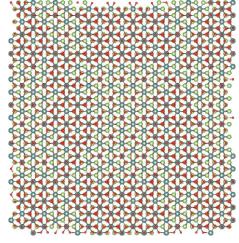
複雑な表面・界面への応用

YGaO₃

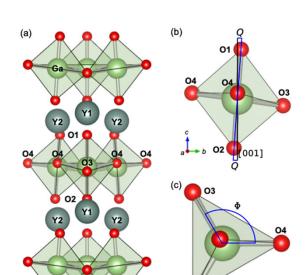
複雑界面の構造最適化(3600原子)

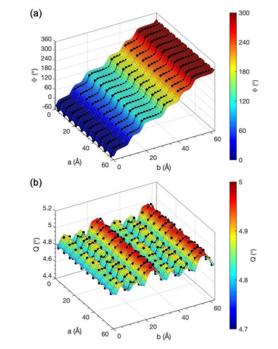


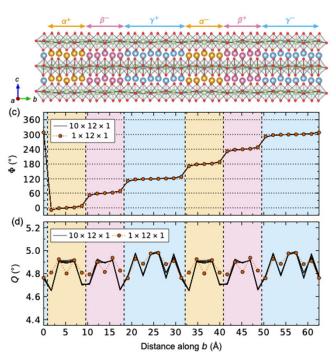




DFT calculation: LDA/MSSF(from TZDP-PAO) Diagonalization method Optimization method: Fire



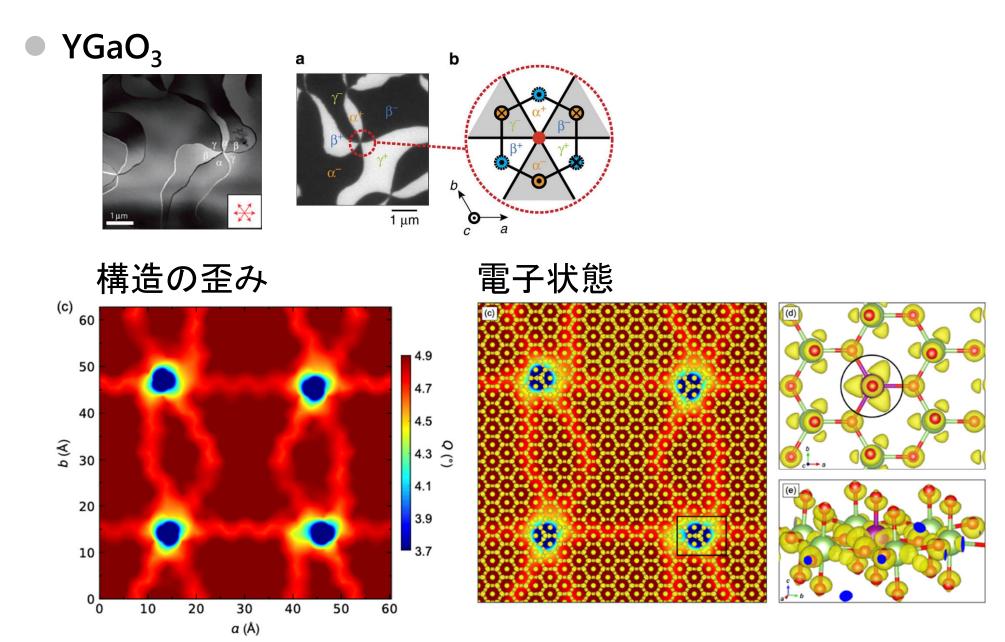




Småbråten et al., Phys. Rev. B. 102, 144103 (2020).



複雑な表面・界面への応用

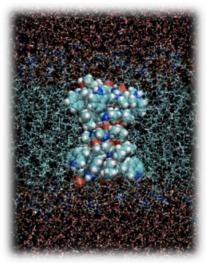


Småbråten et al., Phys. Rev. B. 102, 144103 (2020).



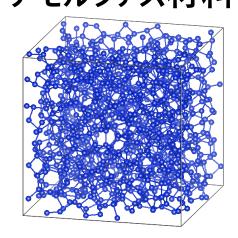
非周期材料への応用

● 生体材料



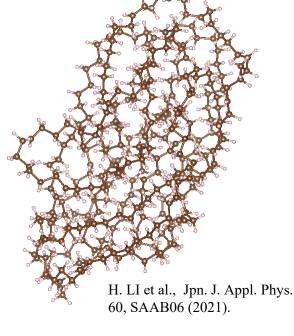
溶媒を露わに取り込んだ 第一原理計算

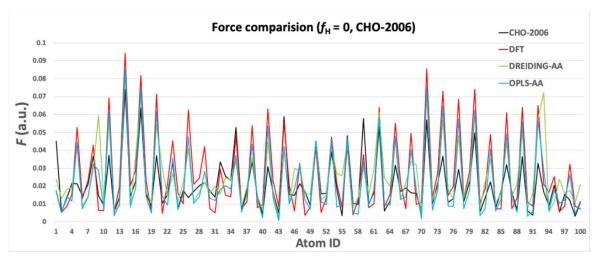
アモルファス材料
古典MDの精度検証



第一原理MDによる構造の検討

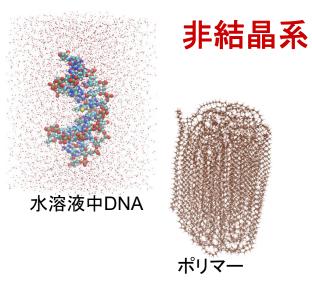
ポリエチレン欠損



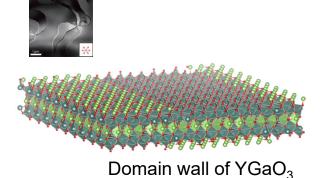




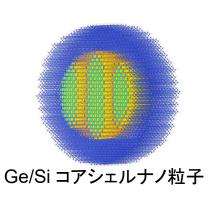
様々な材料へ応用可能



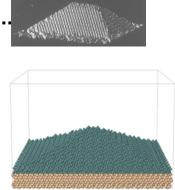
絶緣体



結晶







半導体

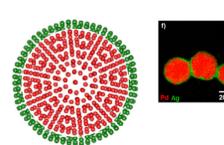
Ge hut cluster on Si(001) surface



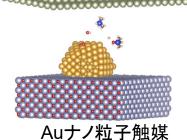
オーダーN法 マルチサイト法

二次元材料





Pd@Ag コアシェルナノ粒子触媒





想定される用途

・ 半導体中の複合欠陥、ドーパントの解析

・ 材料の複雑表面、界面の ナノスケール構造の解析

アモルファスや生体材料など 非周期材料の解析





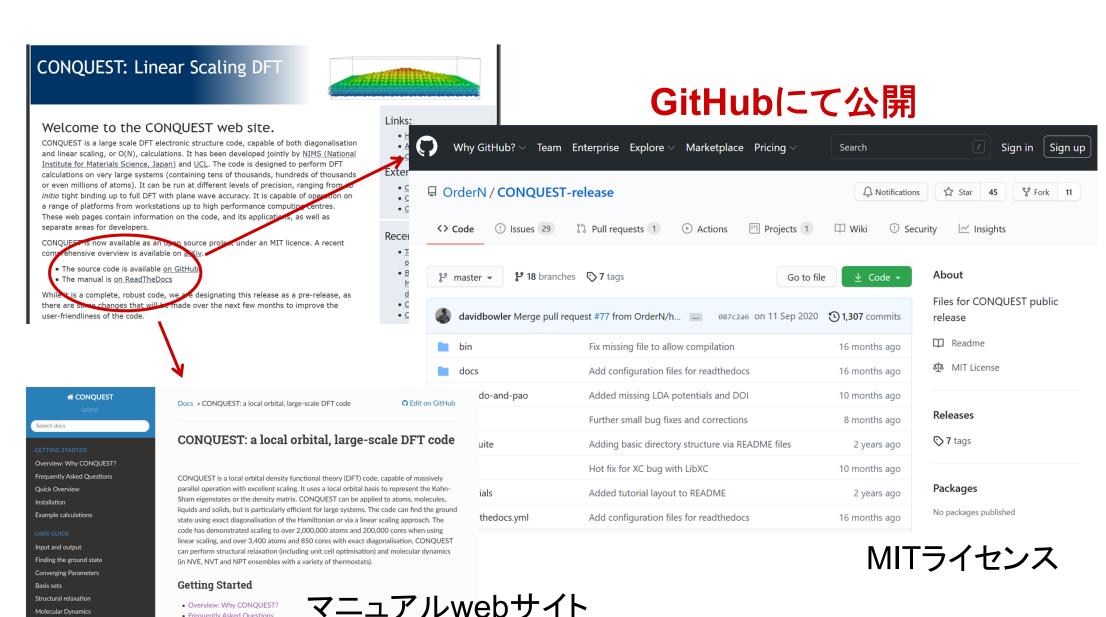
企業への期待

・企業でご開発の様々な材料における 詳細な構造、電子状態の解析に 利用していただきたい

技術指導、共同研究による連携
 市販されているプログラムより使い方がや複雑
 整備されていない機能もある



プログラムの公開に関して



• Frequently Asked Questions



お問い合わせ先

国立研究開発法人物質·材料研究機構 外部連携部門 企業連携室

企業様向け総合窓口HP (スマホ対応)

https://technology-transfer.nims.go.jp/



