

# 第一原理計算による ハイブリッド分子動力学シミュレーション

日本原子力研究所 計算科学技術推進センター ○蕪木 英雄

Hybrid molecular dynamics simulations based on the first principle calculation

Hideo Kaburaki, Japan Atomic Energy Research Institute

Abstract:

We have developed three types of hybrid molecular dynamics simulation methods based on the first principle calculation to carry out large-scale fracture simulations. These three methods were made possible to understand a wide range of fracture mechanisms from brittle to ductile fractures. Also, the numerical simulation environment has been constructed to share the data and software among researchers located at distant sites and its total system and efficiencies have been verified on the virtual private network (VPN).

## 1. はじめに

第一原理に基づく3種類のハイブリッド分子動力学手法を開発し、それぞれの理論的位置づけ、可能な計算領域を比較し、電子、原子レベルでの統合的モデリングを実施した。これらハイブリッド分子動力学法によりナノメートルからマイクロメートル領域（粒子数で $10^2$ から $10^7$ 個）へ向けた大規模破壊シミュレーションを行った。さらに、高速ネットワークを利用した数値実験環境を構築し、これら数値シミュレーションにより実証した。

物質の破壊現象は、原子間の化学結合の切れからマイクロなき裂、マクロなき裂へと進展し、非常に広範囲な長さのスケールに渡る過程により支配される。伝統的な破壊理論では、き裂を連続体モデルによる熱力学的理論により取り扱い、その平衡条件（Griffith条件）は外力による仕事と連続体中のひずみエネルギー及び新しいき裂表面を作るための表面エネルギーのバランスにより与えられる。この理論では、破壊過程に対するエネルギー収支の限界値についての情報は得られるが、破壊が何故、どの様にして進行するかについての知見は得る事が出来ない。これに対して電子論的(electronic)及び原子論的(atomistic)なレベルの解析、数値シミュレーションでは、き裂先端における原子間の化学結合を次々と切って破壊が進行する過程の知見を与えてくれる。原子間の化学結合を切る過程は、厳密には電子の振る舞いから計算する第一原理計算を行う必要がある。しかし、現在の計算機では、第一原理計算のみでマイクロなき裂進展へ至る過程のシミュレーションは（限定的な場合を除いて）当面困難であるため、第一原理計算の手法を取り入れた原子論的レベルでのハイブリッド分子動力学手法の開発が不可欠である。そのため本プロジェクトでは第一原理に基づく3種類のハイブリッド分子動力学手法を開発し、ナノメートルからマイクロメートル領域（粒子数で $10^2$ から $10^7$ 個）へ向けた絶縁体、金属の大規模破壊シミュレーションを実施した。大規模な分子動力学法による破壊の数値シミュレーションの実施に当たっては、原子に関する大量のデータを解析するため、高速ネットワークを利用した数値実験環境の構築を行った。数値実験環境では、分散数値環境上でデータを共有するための基盤や計算を共有するための基盤を整備し、グループ間でVPNを構築し数値実験を実施した。特に色々な分子動力学手法による大規模な破壊の数値実験では、原子情報から有用な情報を抽出して、可視化する一連のプロセスを構築した。

## 2. 研究開発項目とその成果概要

### 2.1 第一原理手法に基づくハイブリッド分子動力学手法の開発及び大規模破壊シミュレーション

第一原理に基づく3通りのハイブリッド分子動力学法、(1)オーダーN分子動力学法、(2)多体ポテンシャル分子動力学法、(3)領域ハイブリッド分子動力学法を開発した。この中でオーダーN分子動力学法及び多体ポテンシャル分子動力学法を用いて大規模な破壊シミュレーションを実施した。

オーダーN分子動力学法の開発においては、(1)ワニア状態法 (2)クリロフ部分空間法 (3)量子力学におけるハイブリッド法、の3種の手法を開発した。これらはすべて、量子力学的に厳密な方程式に基づいており、一体密度行列の計算に帰着される。さらに、OpenMP, MPIによる並列化も試みた。テスト計算として、1100万原子系まで分子動力学計算を実施した (図1)。手法 (1)(3)を用いた応用研究として、10nm

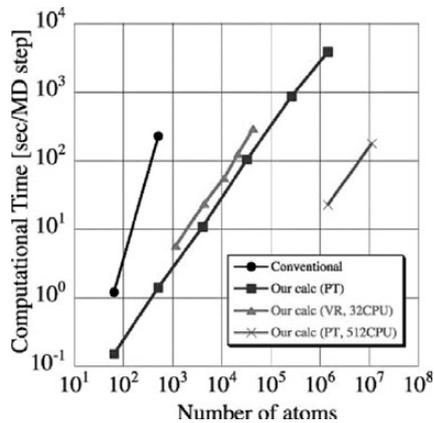


図1：従来法と種々のオーダーN法の計算時間の比較一タの概念図

(または10万原子)以上までのシリコン結晶系の脆性破壊プロセスを行った。量子力学的計算の特徴として、実験的に観測されている、(001)面の非対称ダイマー (図2a)、(111)亀裂面における(2x1) $\pi$ 結合鎖構造およびステップ構造 (図2b)、などが (実験的知見を参照することなく) 得られた。各プロセスは、波動関数の性質 (空間的広がり・軌道自由度) を用いて解析された。これらをもとに、非平衡現象としての破壊プロセス、特に面方位による破壊進行モードの安定性の違いが理解された。一方、手法(2)においては基礎理論構築および、半導体系・金属系での数千原子系のテスト計算を行った。開発された手法群は、汎用性・精度・計算コストにおいて多様なものであり、これらを自在に使うことが応用を広げていく上で重要である。

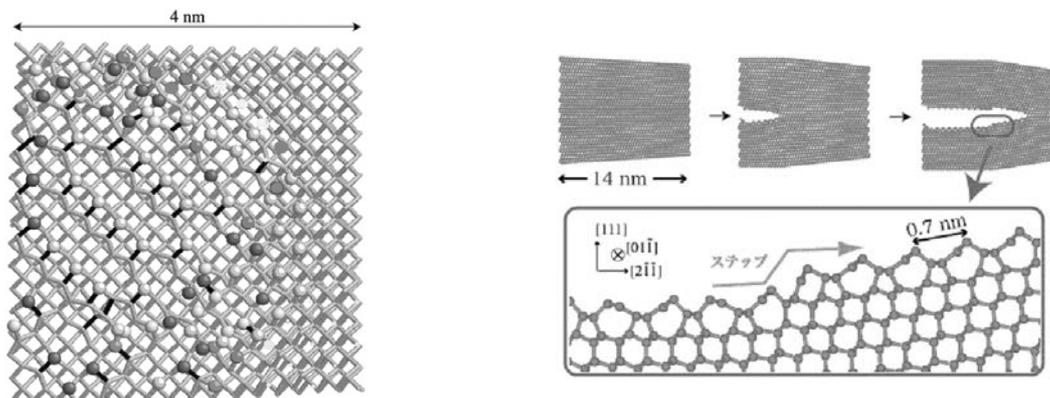


図2：破壊プロセスにおける

(a) Si(001)面の非対称ダイマー形成

(b) Si(111)-(2x1) $\pi$ 結合鎖およびステップ形成

多体ポテンシャル分子動力学法の開発においては、金属の延性破壊過程を調べるため原子埋め込み法 (EAM) ポテンシャルを用いた100万-1,000万 (10<sup>6</sup> - 10<sup>7</sup>個) 原子FCC単結晶 (Cu, Al) の大規模破壊シミュレーション

ュレーションを実施した。分子動力学による並列大規模数値シミュレーションには、原研が既に開発した「並列分子動力学ステンシル (PMDS: Parallel Molecular Dynamics Stencil)」を用いた。シミュレーション結果からのデータマイニング手法開発により複雑な欠陥構造の可視化が可能になり、金属の破壊進展に伴うき裂先端における転位の放出、転位間の相互作用による組織構造を明確にとらえることが可能になった。図3、図4の結果はCuのEAMポテンシャルを用いて約200万個の原子により、モードIの破壊を実施した例である。図3より分かるように、配位数表示によりき裂先端からの転位の放出を明確にとらえることが出来た。しかし、FCC結晶において完全転位は2つの部分転位に分かれ、その部分転位の間には積層欠陥が出来る、いわゆる転位の拡張が起こる。FCC結晶中の積層欠陥は細密充填層が1層抜けたHCP構造になっているため、配位数表示においては積層欠陥を区別することが出来ない。そのため中心対称パラメータ表示(図4)を併用することにより、き裂先端の転位構造を明確に表示することが可能になった。この手法を用いてCu及びAlの破壊過程において、初期き裂から延性破壊に移行するときの転位の組織構造が明らかになった。FCC結晶では有限温度で延性破壊しか観測されていない事実に対して、絶対零度から数値シミュレーションを実施することにより転位が放出され延性破壊に至る過程をとらえることが出来た。また、破壊の進行に伴う放出転位間の切りあいとその交差線における不動転位(ステアロッド転位)の形成(巻頭カラー図)、また更なる変形の進行に伴うステアロッド転位の分離の詳細な過程を捉えることに成功した。

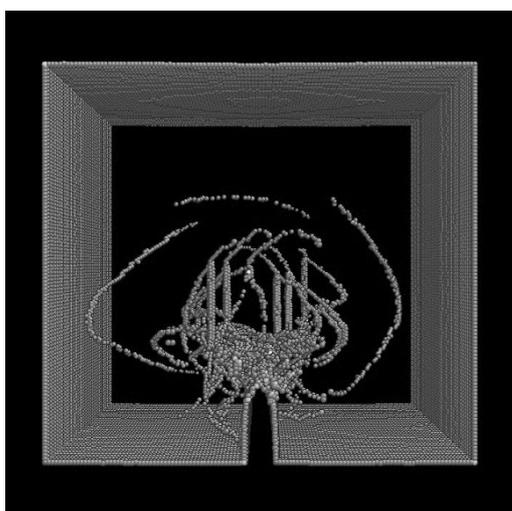


図3：Cu結晶の破壊過程におけるき裂先端の転位構造（配位数表示）

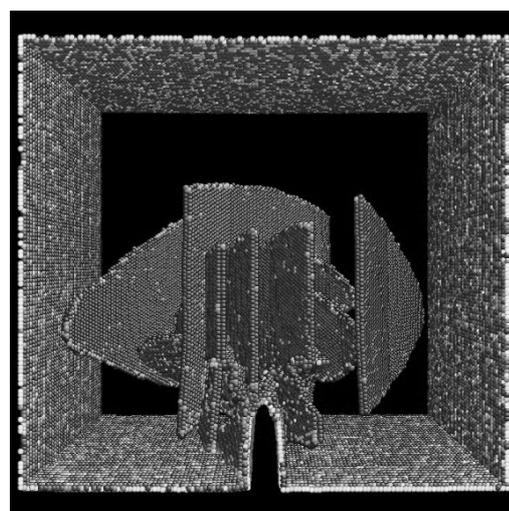


図4：Cu結晶の破壊過程におけるき裂先端の面欠陥（積層欠陥）構造（中心対称パラメータ表示）

これをさらに発展させて、粒子数 $10^7$ 個による結晶粒界の大規模破壊数値シミュレーションを実施し、粒界から放出するより詳細な転位構造を明らかにした。また粒界破壊に対して、不純物の粒界割れに対する影響を調べるため第一原理計算 (FLAPW法) によるNiの対称傾角結晶粒界における結合エネルギーの計算を行った。不純物についてはHからRnまで42種類の一連の元素について、Niの粒界を強化するか脆化するかについて調べた。この結果はいくつかの典型的な実験事実 (例えばSはNiの強い脆化物質である) を説明することが出来、粒界破壊をもたらす微量元素の定量的評価が可能になった。

領域ハイブリッド分子動力学法の開発では、ONIOM/IMOMO型 (N-layered Integrated Molecular Orbital+Molecular Mechanics/Integrated MO+MO)で高精度と低精度計算部分の領域ハイブリッドシステ

ムの構築を行った。周期系への適用では、リンクアトム無しに切り出す、すなわち小さい単位胞でそのまま置き換える方が境界条件の影響を受けないことを数値的に確認した。また、半導体、金属等の物理的に異なる性質の系で効果的に働くことでの動作確認を行った。また、ハイブリッド手法の分散環境における適用性評価を行った。本方式では粒度の粗いアルゴリズムを基礎としており、分散処理に適している。H15年度にイントラネットLAN環境での分散処理のテストを行い、H16年度にはこの結果をベースに、本プロジェクトで構築した研究拠点間のインターネットベースのネットワークを介して分散処理環境を構築し、数値シミュレーションを検証した。通常のGRID計算はGlobusのようなミドルウェアを介しての実現が普通であるが、本方式ではネットワーク通信そのもののセキュリティはVPNによって確保し、粒度の粗いアルゴリズムを開発することでサイト間通信量を削減した。これによって一定のデータ転送速度が保証できない一般のインターネットを利用しても分散計算が実用的であることを実証した。本方式によればSuperSINETのような超高性能の特定の回線で接続された研究拠点間の連携だけでなく、インターネットをベースとしたより一般的な産官学連携可能なハイブリッドMDシミュレーション環境を実現した。この実証計算として、大規模MDシミュレーションと連動し、部分系の精密計算を実施した。

## 2.2 高速ネットワークを利用した数値実験環境の構築とその実証

本プロジェクトで実施する分散計算を支援するため、データリソース検索機能及びデータマイニング機能等の「データを共有するための基盤」及びシミュレーションデータの可視化機能及び観測量算出機能等の「計算を共有するための基盤」に関するソフトウェア開発を行い、インターネットをベースにした数値実験環境を構築して、実証した。

データリソース検索システムの構築は、高速ネットワークを使用した分散計算において、各サイトの計算機で発生したシミュレーション結果のデータベースを、検索機能を備えたソフトウェアにより、各ユーザが一元的にデータベースを管理し、他ユーザと共有して解析に役立てるものである。また、粒子法によるシミュレーション結果の解析で重要な役割を果たす可視化プログラムでは、原子数100万個を越えると表示が不可能になり、また処理速度が著しく低下することが知られている。われわれは本プロジェクトの協力研究者であるオハイオ州立大Prof.Li Juにより開発されたAtomEyeを利用して大規模粒子数の可視化を実現したが、100万個越す粒子を対象とする可視化での応答時間を加速するため並列化を行い、100万個レベルの処理で7.5から15.7倍の高速化を実現した。また原研が開発した並列分子動力学プログラム(PMDStencil)と可視化プログラムAtomEyeとの連成を実現し、シミュレーションから可視化解析への処理をシームレスに実行可能とした。

## 3. ネットワークの活用について

共同研究者間でVPN(Virtual Private Network)の構築を行い、開発したソフトウェアを使い、高速ネットワーク上で大規模分子動力学シミュレーションとその結果の可視化の分散計算、及び領域ハイブリッド法による応用分散シミュレーションを行い、仮想数値実験環境を実証した。

## 4. まとめ

本プロジェクトでは、ハイブリッド分子動力学手法の開発とそれを利用した破壊の大規模数値シミュレーション、及び、高速ネットワークを介した分散数値環境上でのデータの共有、大規模数値シミュレーション結果の可視化による理解を行った。オーダーN分子動力学法の開発においては、複数の手法と共に、それらを併用するハイブリッド法が量子力学的一般原理から確立された。その顕著な例として破壊現象の

斬新な研究が行われた。本研究のオーダーN法は、基礎理論から完全にオリジナルであり、今後の大規模シミュレーションの観点から画期的である。また、今まで半導体等に限定されていた計算対象を金属系へ拡張する道を開いたことは、応用を広げる上で極めて重要である。領域ハイブリッド分子動力学法の開発では、高速ネットワークで接続された分散環境上で接続されている計算機の特徴を生かした数値シミュレーションを実施し、構築した数値実験環境を実際の応用プログラムで実証することが出来た。多体ポテンシャル分子動力学法の開発では、可視化法の開発により金属の延性破壊におけるき裂先端の転位構造を明確にとらえることが可能になったことは大きな成果であるといえる。高速ネットワークを利用した数値実験環境の開発では、数値シミュレーションを実施する上での実効的ネットワーク利用を追求すること出来た。

## 5. 研究開発実施体制

代表研究者 日本原子力研究所 計算科学技術推進センター 蕪木 英雄

研究分担

研究開発項目：多体ポテンシャル分子動力学法による大規模破壊シミュレーション

日本原子力研究所 計算科学技術推進センター 蕪木 英雄、山口 正剛、清水 大志、  
門吉 朋子、板倉 充洋、志賀 基之

研究開発項目：タイトバインディングモデルに基づく分子動力学法による大規模シミュレーション

東京大学大学院 工学研究科 物理工学専攻 藤原 毅夫、星 健夫、高山 立

研究開発項目：第一原理計算に基づくハイブリッド分子動力学法の開発

(株) 東芝 研究開発センター 新機能材料・デバイスラボラトリー 伊藤 聡

研究開発項目：多体ポテンシャル分子動力学法

及び高速ネットワークを利用した仮想数値実験環境の構築

(株) 日本総合研究所 サイエンス事業本部 エネルギー環境技術グループ

金子 俊幸、本山 聡、大川 理一郎、君塚 肇、中務 貴之、後藤 栄昭、岩清水 ちひろ