

論文内容の要旨

論文題目 金属系大規模電子構造計算を目的とした
バンド・バイ・バンド第一原理有限要素法に関する研究

氏 名 椎原 良典

1. 研究の目的

昨今のナノテクノロジーの興隆を背景として、材料の機能を決定する因子の一つとして原子構造が注目されている。特に表面・界面・原子欠陥等のナノ構造はバルク材にはない特異なナノ物性を発現することから、機能性材料への応用が期待されている。これらナノ構造における物性を予測するためには、その構造の電子状態に関する知見がきわめて重要である。密度汎関数法をはじめとする第一原理計算は電子論に基づいた原子挙動予測を可能とするシミュレーション技法であり、経験的パラメータによることなく、高精度な物性予測を与える。

第一原理計算においてはその膨大な計算量が問題となる。特に、界面・原子欠陥等は金属を含む大規模系から構成されるため、一般に計算の難しい系とされている。実空間法はその並列計算適性から大規模系の電子構造計算に適すと考えられているが、既往の手法はいずれも大規模金属系の安定計算を実現するアルゴリズムを持っていない。その一方で、従来法である平面波法においてはバンド・バイ・バンド計算が大規模金属系の安定高速解法として確立されている。しかしながら、平面波法は高速フーリエ変換を多用することから並列計算適性が乏しく、大規模系の電子構造計算に適さないと考えられている。本論文の目的は金属系の大規模並列計算を可能とするバンド・バイ・バンド第一原理計算アルゴリズムを実空間有限要素法の枠組みの中で再構築することであ

る。

2. 密度汎関数法の有限要素定式化

有限要素法を実空間法として採用し、ノルム保存型擬ポテンシャル法に基づく定式化を行った。また、周期境界条件上における局所擬ポテンシャルおよび非局所擬ポテンシャルの有限要素メッシュ上における評価法について検討した。構築した実空間有限要素法によってシリコンダイマーの電子構造計算を行い、その精度を検証した。汎用第一原理計算ソフトによる結果との比較を通して、構築した実空間有限要素法が meV オーダーの十分な精度を持つことを示した。

3. 並列化バンド・バイ・バンド計算法

バンド・バイ・バンド計算法における線形固有値解法の領域分割並列化について検討し、その高速化を実現する効果的前処理法を示した。線形固有値問題は BKL 法、もしくは RMM-DIIS 法の反復解法によって解かれるが、これら反復法の安定高速化には前処理法が必要不可欠である。本研究では、Gan らの前処理法についてその高速化法について検討した。その結果から、誤差モードの減衰傾向から前処理方程式が反復法によって高速に解かれることを示した。あわせて、前処理方程式の反復解法における収束条件 δ が計算速度および並列効率を左右する重要なパラメータであることを示した。シリコン 64 個からなるダイヤモンド結晶および酸素分子の計算において適当な収束条件 δ を設定することにより、16CPU の計算で 80% 程度の高並列効率を実現されることを示した。

4. 実空間収束安定アルゴリズム

バンド・バイ・バンド計算法における非線形解法を実空間上で構築した。非線形解法においては Charge sloshing と Level sloshing と呼ばれる収束不安定性の問題が存在する。平面波法においては Charge sloshing は Pulay-Kerker 法、Level sloshing は Gaussian smearing 法によって解決されている。Gaussian smearing 法は実空間バンド・バイ・バンド計算法を用いることで容易に実現できる一方、Pulay-Kerker 法は実空間法において提案されていない。そこで、Pulay-Kerker 法の核となる Kerker 前処理行列を実空間上で構築した。実空間 Kerker 前処理行列は Manninen のポテンシャル混合法を実空間離散化することにより与えられる。構築した実空間非線形解法をアルミニウム 108 個からなる fcc

結晶に対して適用し、その収束安定性を確認した。また、108 個から 324 個までのアルミニウム fcc 結晶に対して計算を行い、Charge sloshing の影響が大きい拡大した系においてもロバストな実空間計算が可能であることを確認した。

5. 結論

以上において提案した、領域分割有限要素法による高速前処理法および実空間 Kerker 前処理による収束安定解法によって、大規模金属系に対しても高速かつロバストな実空間バンド・バイ・バンド計算が実現可能となった。本計算を数百プロセッサからなる大規模並列計算機上で実行することによって、大規模金属系原子系の第一原理計算にかかるコストは大幅に低減されるものと期待される。