

## 高速化分子動力学シミュレーション ご提案書

結晶中の格子欠陥の生成消滅過程のシミュレーションを目的として、高速化分子動力学計算について調査いたしました。その結果を踏まえて、プログラム開発と基礎解析のご提案をさせていただきます。

ご検討のうえ、ぜひ弊社にご用命くださいますよう、お願い申し上げます。

1. 背景
2. 高速化 MD について
3. ご提案
4. 納品物・工期

## 1. 背景

結晶中の格子欠陥の研究は、材料科学の中で重要な位置を占める。それらの多くは非自明で興味深いだけでなく、材料の特性にも直接影響を及ぼす。例として、原子炉材料の照射損傷過程が挙げられる。

結晶中で原子空孔が（単位時間当たりに）ジャンプする回数は、多くの場合、次のように書ける。

$$\nu \exp(-E_V/kT)$$

ここで、 $\nu$ は原子振動の振動数であり、 $E_V$ は活性化エネルギー、 $k$ はボルツマン定数、 $T$ は温度である。例えば、Cuの原子空孔の移動の活性化エネルギーは0.7eV程度であり、500Kでは（ $\nu$ を $10^{13}$ として）1秒間に $10^6$ 程度、すなわち $1\mu\text{s}$ に1回程度、ジャンプする。

ところで、このような多体系をミクロな立場から研究するための代表的な方法が、分子動力学法（MD, Molecular Dynamics）である。MDは、多体系の運動方程式を数値的に積分していく方法であり、あからさまな近似を含まず、関係する全ての物理量を計算できる。したがって、詳しいことがわかっていないミクロやメゾスケールの構造やダイナミクスを研究する際に大きな力を発揮するが、一方で、多大な計算資源を必要とするため、シミュレートできる時間はきわめて短い。

そこで、いくつかの高速化MDが提案されているが、それらは、「何らかの近似を持ち込む」「解析対象が限定される」「計算できる物理量が限定される」ことがあり、興味を持っている系や現象に対して、適切な方法を選択し、実装することが求められる。

## 2. 高速化 MD について

「1. 背景」で述べたように、高速化 MD はいくつかあり、それぞれ、解析対象などに制限がある。今興味を持っている結晶中の格子欠陥の生成消滅過程の特徴として、

(A) ミクロな原子振動に比べて、ごくまれにしか起こらない  
があり、また、

(B) 格子振動のような結晶全体にわたる集団運動は対象としない(熱力学量を正確に求めることは目的としない)

と言える。

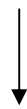
このことを念頭において、数ある高速化 MD を検討すると、(A)を利用する Voter らの方法 (Parallel-replica dynamics, Hyperdynamics, Temperature-accelerated dynamics) と、(B)を利用する Feature activated molecular dynamics が適切な候補となる。(これらの方法は、統計量しか計算できないということではなく、ミクロやメゾスケールの構造やダイナミクスを知ることができる。)

以下、これらの方法の概要と研究実績を紹介し、期待される計算能力について述べる。

### 2. 1. Voter らの方法

Arthur F. Voter (Los Alamos National Laboratory) らが開発・応用した Parallel replica dynamics [1], Hyperdynamics [2], Temperature-accelerated dynamics [3]の特徴は、レビュー論文[4]に記述されているが、簡単にまとめると次のようになる。

- Parallel-replica dynamics
- Hyperdynamics
- Temperature-accelerated dynamics



より近似的で、  
より速くなる。

これらの方法は細かい点で違いがあるものの、上で述べた(A)よりも厳しい TST (Transitional State Theory) 条件を必要とする。これは、「メゾスケールの状態遷移 (ポテンシャル障壁を越えること) が、過去の状態遷移の記憶によらない Markov 過程であること」を意味する。言い換えれば、あるメゾスケールの状態遷移が起こった後、十分な数のミクロスケールの運動が起こってから、次のメゾスケールの状態遷移が起こればよい。この時、1回目の状態遷移と2回目の状態遷移は無相関であると言える。

これらの方法を用いてどの程度の性能が出るかが問題であるが、ここでは、計算条件が

明示されているものとして、Uberuaga らの研究[5][6]について紹介する。これは、Parallel-replica dynamics を用いて積層欠陥四面体の生成過程をシミュレートしたものであり、計算条件は、

- 粒子数：500
- 粒子間相互作用：embedded atom method (EAM)
- 7.82 $\mu$ s 相当の MD シミュレーション
- 39 個のプロセッサで計算時間は 15 日

である。計算を始めてから 1.69  $\mu$ s 後に、空孔から積層欠陥四面体が生成したとあり、「1. 背景」で述べた見積もり ( $\mu$ s のオーダー) と整合する結果となっている。

また、Steiner ら[7]は Hyperdynamics の計算効率を上げる方法を提案しており、この方法を使うと、通常の MD に対して $10^3$  から $10^5$  程度速くなるという結果が得られている。

## 2. 2. Feature Activated Molecular Dynamics

Prasad and Sinno [8] によって提案された Feature Activated Molecular Dynamics (FAMD)は、結晶格子中の欠陥のシミュレートを目的とした高速化 MD であり、その概要は次の通りである。

- まず、結晶中の欠陥をすべて探し出す
- それらを Stillinger の連結条件[9]に従ってグループ化する
- それぞれのグループについて、その周りの原子も含めて、MD 領域を構成する
- それぞれの MD 領域について、独立に MD 計算を実行する
- 圧力バランスなどを考慮して、それぞれの MD 計算結果を統合する

格子振動などの結晶全体にわたる現象は対象外であるものの、TST 条件などのような厳しい適用条件は存在せず、マイクロやメゾスケールの現象を解析するにあたって優れた方法であると考えられる。

文献[8]では、シリコンや銅の中の空孔の凝集過程をシミュレートしている。使用したマシン・スペックについては記述がないが、通常の MD に対して $10^2$  から $10^3$  程度高速化されたとある。例えば、

- 原子数：216,000
- 空孔数：343
- 原子間相互作用：environment-dependent interatomic potential (EDIP),  
embedded atom method (EAM)

という条件で、ns 程度の計算をしている。

ただし、これは、はじめ空孔が結晶全体に散らばっており、必要な MD 領域の数が空孔

の数と同程度になるという、FAMD のパフォーマンスにとって非常に不利な条件での計算である。この計算は結晶全体に散らばった欠陥のダイナミクスを対象としているが、より局所的な現象を対象としたとき、より優れたパフォーマンスが期待される。

### 2. 3. 計算方法の比較

Voter らの方法を採用する利点は、すでに積層欠陥四面体の計算実績があることである。ただし、詳しいことがわかっていない現象に対して適用するときに、TST 条件を満たしているか慎重になる必要がある。また、上でも紹介した[5][6]の計算は、高スペックのマシンで原子数 500、MD 時間  $\mu\text{s}$  であり、やや物足りないように思われる。

一方、FAMD では、計算時間は全原子数とはほぼ無関係であり、MD 領域の数やそこに含まれる原子数に依存する。上でも紹介した[8]の計算では、MD 領域に含まれる原子数は 40,000 から 150,000 程度であり、これを 100 から 1,000 程度に抑えられるような局所的な現象を対象とすれば、 $\mu\text{s}$  程度の計算は充分可能であると考えられる。

以上より、どちらも  $\mu\text{s}$  程度の計算が期待できるが、物理的な適用範囲が広く、計算上も柔軟な FAMD が優れていると考えられる。

#### 参考文献

- [1] Voter; Phys. Rev. B, **57**, 13985 (1998)
- [2] Voter; J. Chem. Phys., **106**, 4665 (1997)
- [3] Sorensen and Voter; J. Chem. Phys., **112**, 9599 (2000)
- [4] Voter, Francesco, and Germann; Annu. Rev. Mater. Res., **32**, 321 (2002)
- [5] Uberuaga, Hoagland, Voter, and Valone; Phys. Rev. Lett., **99**, 135501 (2007)
- [6] Uberuaga; <http://www.functional-coatings.org/LongTimeScaleTalks/Uberuaga.pdf>
- [7] Steiner, Genilloud, and Wilkins; Phys. Rev. B, **57**, 10236 (1998)
- [8] Prasad and Sinno; J. Chem. Phys., **121**, 8699 (2004)
- [9] Stillinger; J. Chem. Phys., **38**, 1486 (1963)

### 3. ご提案

結晶中の原子空孔が関わる格子欠陥（積層欠陥四面体など）の生成消滅過程をシミュレートするための「**高速化分子動力学（高速化 MD）シミュレータの開発**」をご提案いたします。採用する計算方法としましては、「2. 計算方法」で述べた理由により最も優れていると考えられる **Feature Activated Molecular Dynamics** を採用いたします。これにより、数十から百程度の原子が関わる格子欠陥を対象として、通常のワークステーションにおいて  $\mu\text{s}$  程度の MD 計算が期待できます。

また、高速化 MD においては、いくつかの計算上の任意パラメータを含むため、対象となる系や現象に対してこれらのパラメータを調整する必要があります。したがって、プログラム開発のみならず、基礎解析を弊社にて行ない、「**(パラメータの選び方等に関する) 解析の指針の作成**」も合わせて、ご提案いたします。（解析対象としましては、原論文で行なっている欠陥の大域的なダイナミクスではなく、より局所的な現象を考えております。）これにより、本ソフトウェアをより有効にご使用いただけるものと考えます。

#### 準備

- ・ 作業内容：お客様との打ち合わせ（プラットフォームや可視化ツールなどの決定）

#### プログラム開発

- ・ 作業内容：プログラム開発（プログラム設計・コーディング・デバッグ）、操作マニュアルの作成
- ・ 成果物：プログラム、操作マニュアル

#### 基礎解析

- ・ 作業内容：お客様との打ち合わせ（解析対象の決定）、解析、資料の作成
- ・ 成果物：解析結果の報告書、解析の指針

#### 4. 納品物・工期

##### 納品物

- ・ プログラム（お客様のマシンにインストール）
- ・ 操作マニュアル（文書：電子ファイル）
- ・ 解析の指針（文書：電子ファイル）
- ・ 基礎解析の結果（文書：電子ファイル）

##### 工期

| 工程      |             | 工数<br>[人月] | 工数<br>(小計)<br>[人月] |
|---------|-------------|------------|--------------------|
| 準備      |             | 0.5        | 0.5                |
| プログラム開発 | プログラム設計     | 1          | 8                  |
|         | 計算部分・コーディング | 2          |                    |
|         | 計算部分・デバッグ   | 2          |                    |
|         | 可視化作業       | 2          |                    |
|         | マニュアル作成     | 1          |                    |
| 基礎解析    | 準備          | 0.5        | 3                  |
|         | 解析          | 1.5        |                    |
|         | 資料作成        | 1          |                    |

合計：11.5 人月

以上