

新奇ナノ炭素物質創製のための大規模並列探索シミュレーション

牧野 浩二^{*1}, 手島 正吾^{*1}, 南 一生^{*1}, 中村 壽^{*1}, 大澤 映二^{*2}

^{*1}高度情報科学技術研究機構, ^{*2}豊橋科学技術大学 名誉教授, 株式会社 ナノ炭素研究所
makino@tokyo.rist.or.jp

概要: フラーレンやカーボンナノチューブなどの生成過程で重要な役割を持つ GSW 変換が連続して生じたとき, ある初期構造から目的の構造へ変形する経路を探索する手法を大規模並列計算機環境を用いてマスタ・スレーブ型で実現し, 高い並列化効率を達成した. これを用いて新奇材料として予言されているが, まだ実現されていないマッカイ構造へ至る生成経路を得た. その結果, (4,4)カーボンナノチューブを接合した形状が有望な初期構造となることを明らかとし, 同時にその生成過程も示すことができた.

1 はじめに

フラーレンやカーボンナノチューブなど新奇な機能をもつナノ炭素物質を, 新素材, 電子デバイス, 医療など広範な分野へ応用を先導または支援するためのシミュレーション研究が盛んである. しかし, 近年, ナノ炭素物質の機能・物性を予測するだけでなく, それらの生成過程を明らかにし, 新物質の創製を導くこともシミュレーションの重要な課題となっている.

この生成過程において, 多くの場合, 中間生成物がエネルギー順位の高い不安定な構造となるため, 第一原理計算だけで生成過程を解析することは難しい.

ナノ炭素物質の生成過程では, 原子間の結合が組み変わる現象, Generalized Stone-Wales(GSW)変換, が連続的に生じ, 安定な原子構造へ変化することが実験的に知られている.

そこで, このGSW変換に着目して, 変換を通じて起こりうる全ての原子構造の生成をシミュレーションし, その中から目標とする新物質の創製に繋がる生成経路や初期物質を探索する方法[1]が注目されている.

2 GSW 変換による生成経路の探索

GSW変換では, ナノ炭素物質中の sp^2 結合が 90° 回転し, 構成が替わる(図 1).

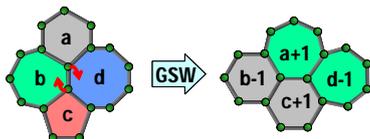


図 1. GSW 変換

こうしたGSW変換を繰り返し, 目的の原子構造への生成経路を探索する方法を図 2に示す. まず, ある初期構造に1回だけGSW変換を行い, 起こりうる全ての原子構造を得る(図 2の多数の矢印). 次に, その中から, 6員環以外を多数含むなどの実

現性が低い構造か, あるいはその構造の持つポテンシャルエネルギーを利用して既に生成された構造と同じ(同型)かを判別し, 除外する(図 2のバツ印). これを繰り返し, 最終的に例えば全て6員環からなる構造など, 目的とする原子構造に至る生成経路を得る.

この方法では, 同型が現れにくい周期的な構造や構成する原子の個数(原子数)が多い構造などの場合は, 1回のGSW変換で生じる原子構造が多くなる(図 2では横方向が広がる). さらに, 目的構造に至るまでに多くの変換が必要となる(図 2では縦方向が広がる).

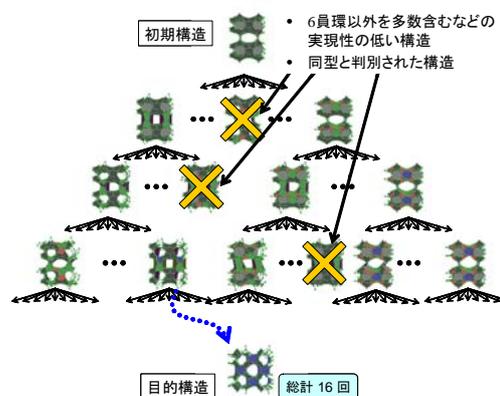


図 2.目的構造への変換過程の一部

したがって, 複雑な構造を扱う場合, 組み合わせ数が原子数の N 乗(N はGSW変換の回数)で増え, 結果的にシミュレーションにおいて同型判別のためのエネルギー計算にかかる計算量が膨大化し, 探索が困難になり易い. そのため, 高速計算処理と多くの原子数を扱える大規模な並列処理計算が可能な探索シミュレーション法を開発した.

3 大規模並列探索シミュレーション

複雑な原子構造の探索シミュレーションには大量の計算を必要とするため, 大規模高速並列計算機の利用が必須となる. このため, 探索シミュ

レーションはマスタ・スレーブ型により大規模な並列化を図った。マスタ(1CPU)の役割は同型判別とスレーブへの構造の送信とした。スレーブ(全CPU数-1)の役割は、GSW変換と同型判別の判別基準として用いる原子構造を特徴付けるポテンシャルエネルギーの計算とした。

一方、膨大な探索を高速で行うためには、並列化効率を高く保ち、大規模並列処理を図る必要がある。この必要条件は、スレーブがマスタにアクセスしたときに待ち時間を生じさせない条件：

$$n \times T_m < T_s,$$

となる。ここで、

T_m , T_s : マスタとスレーブが一つの原子構造の処理にかかる平均的な時間、

n : スレーブ数、

を表す。この条件を満たしながら、 n を大きくできれば大規模並列化となる。

マスタの処理時間 T_m の大部分は同型判別のための二分木判別の処理である。そこで、地球シミュレータを利用する場合、判別基準を最大ベクトル長に対応して256個並べ、一度に比較できる二分木法とした。これにより、 T_m を短縮でき、ベクトル化率も向上した。

次に、スレーブの処理時間 T_s は主に判別基準に用いるポテンシャルエネルギー計算(ヒュッケル法)が占める。地球シミュレータではハウスホルダー法と無平方根QR法を用いた固有値ライブラリを使用して計算した。このため、 T_s は原子数の2次のオーダーで増える。これに比して、マスタの処理時間 T_m は判別基準の数だけ増加するので、原子数の1次のオーダーで増える。これより、 $n \times T_m < T_s$ となり、 n を増加させることができる。

本探索シミュレーションは、マスタ・スレーブ法とベクトル化した二分木計算の開発により、原子数の多い構造を扱うときでも、並列化効率を高く保ち、大規模かつ高速に並列処理が可能である。

地球シミュレータを利用したシミュレーションでは480原子からなる構造を対象として、512ノード(=4096CPU), 8.96Tflops, ピーク性能27.4%を得ている。

4 マッカイ構造への応用

近年、新奇なナノ炭素物質としてマッカイ構造の存在が予言されている[2](図2, 図3の下段)。これは、超軽量、高硬度な構造、半導体であると予測されている[3]。そのため、実験家が競って合成を試みているが、その初期構造、さらに生成過程などが不明であり、まだ物質創製には至っていない。このため、これを明らかにする先導的なシミュレーションが求められている。

初期構造として球形フラーレンはマッカイ構造と対極の構造を持つため有望とされていた。こ

れを初期構造として探索シミュレーションを行ったが、生成経路は得られなかった。我々は多面体の面と点の関係(オイラーの多面体の定理)に着目し、ナノチューブを接合した構造(図2, 図3の上段)が有力となると推定した。そこで、48, 144と192原子からなる原子構造を初期条件として、探索シミュレーションを行った。その結果、それぞれ 4.5×10^2 , 2.7×10^6 と 1.6×10^7 通りの生成経路が得られ、その中からマッカイ構造へ至る経路を突き止められた。これより、(4,4)ナノチューブがマッカイ構造への初期物質として有力な候補になりうる事が明らかとなった。さらに、第一原理計算によるエネルギー計算から、この初期構造よりマッカイ構造のほうが安定な物質となることを確認し、この探索がエネルギー論的にも正しいことが分かった。

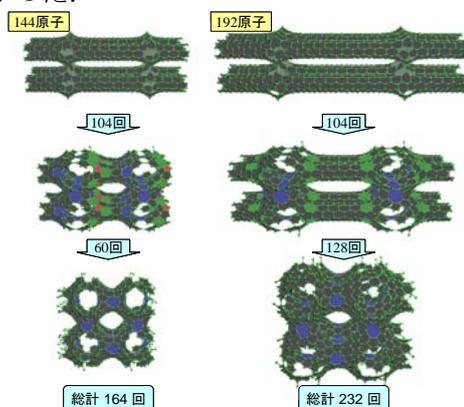


図3. ナノチューブからマッカイ構造への変形

5 おわりに

大規模並列計算機で高い並列化効率を保ちながらGSW変換を繰り返して目的構造への生成経路を調べる探索シミュレーションを開発した。新奇な炭素物質として有力視されているマッカイ構造への生成経路を明らかとし、その結果、(4,4)ナノチューブが初期構造の候補となることが分かった。これによって実験家への示唆を与えた。

本手法は原子数が多い場合は、大規模並列化で柔軟に対応できる。そこで、計算機性能の優れた次世代スーパーコンピュータを用いれば、例えば原子数の多いナノホーン、ナノチューブやナノヤーン(撚糸)などの複合構造を対象とした創製経路の探索ができると期待される。さらに、新しいナノ炭素物質の発見にも応用できる。これによって得られた知見を実験家に提示することでナノテクノロジーのさらなる進歩が見込まれる。

参考文献

- [1] E. Osawa, et al., Mol. Cryst. Liq. Cryst. Sci. Technol. Sect. C · Mol. Mat., vol. 10, pp. 1-8, 1998.
- [2] A. L. Mackay and H. Terrones, Nature, vol. 352, pp. 762, 1991.
- [3] N. Park, et al., APS Austin, USA, A6. 011, March, 2003.