

実時間-実空間法による分子ダイナミクスの第一原理シミュレーション —大規模並列計算へ向けてのアプローチ—

川下洋輔¹, 中務孝^{2,3}, 矢花一浩^{1,2}

¹ 筑波大 数理物質科学研究科, ² 筑波大 計算科学研究センター, ³ 理研 仁科センター

kawashita@nucl.ph.tsukuba.ac.jp

概要：量子論的な効果が顕著に現れるナノサイズの物質を、第一原理的に記述する手法として密度汎関数法は大きな成果を収めている。我々はこの密度汎関数法を電子のダイナミクスに拡張した時間依存密度汎関数法を用いて分子中の電子とイオンのダイナミクスを第一原理的に記述する手法を開発した。我々は時間依存 Kohn-Sham 方程式を実時間、実空間で解く。この手法は超並列計算向きであり、ベタフロップス級のスーパーコンピュータを用いることにより、千原子程度の電子-イオンダイナミクス計算が可能となり、ナノ、バイオ物質の記述が可能となる。本ポスターでは、現在行っている並列計算の一例として、強レーザーによるフラーレンのクーロン爆発に対する計算例を紹介する。

1 はじめに

たんぱく質、固体といったナノサイズの物質は量子論的な性質が顕著に現れる系であり、現代の科学技術の発展において、量子論的な性質を理解し、応用していくことは必要不可欠な課題である。このようなナノサイズ系の性質は主に電子状態に依存しており、その電子状態を第一原理的に記述する理論として密度汎関数法(DFT)は大きな成功を収めている。DFT は様々なシミュレーションソフトで用いられ、原子、分子などの孤立系から固体といった物質系に至る幅広い分野で応用されている。現在では DFT によるシミュレーションで数千から数万原子系の記述が可能となっている。

このように DFT は大きな成功を収めており、これからも様々な応用が期待されているが、その記述は電子基底状態に限られている。しかし、化学的、工学的応用が期待されている現象の多くは電子励起状態が本質的に関与した現象である。例えば、光合成や視覚の過程では、生体分子の電子励起状態を伴う過程が本質的であるし、X 線自由電子レーザー(XFEL)を用いた、たんぱく質の構造解析においても電子励起状態の性質を理解することが必要となる。この場合、電子は静的で安定な状態ではなく、様々な励起状態に遷移し、ダイナミカルな運動をしている。こ

のような電子ダイナミクスを第一原理的に記述する手法として時間依存密度汎関数法(TDDFT)は大きな注目を集めている[1]。

我々のグループではこれまで TDDFT を用いて第一原理的な手法で励起状態を伴う電子ダイナミクスの記述を行ってきた[2]。最近我々はこれに加えて、イオンのダイナミクスを電子状態を考慮しながら記述する手法を取り入れ、ナノ物質系の光応答に対する仕組みを解明する試みを行っている。また、同時に計算コードを MPI により並列化し、大規模並列計算機において高効率な計算コードの作成を試みている。

2 電子-イオンダイナミクスの第一原理シミュレーション

我々は TDDFT を用いて電子ダイナミクスを記述する際、具体的な手法として実空間法と実時間法という手法を用いた。実空間法とは計算空間を三次元格子に分割し、基礎方程式である時間依存 Kohn-Sham 方程式に現れる二階微分を高次差分で行う方法である。実空間法に関しては、次世代スーパーコンピュータプロジェクトにおけるターゲットアプリケーションの一つである RSDFT と共通のプラットフォームである。我々の用いている手法は並列化効率が比較的高いのも特徴である。実空間・実時間法で

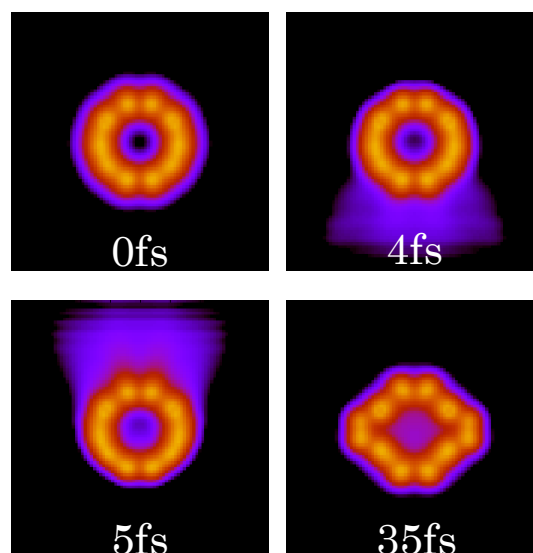
基礎方程式を解く際、最も負荷の大きい部分は二階の実空間差分である。実空間を立方体にとって、1CPU が担う立方体のその一辺の格子点数を M 、扱う電子数を N_e とすると、計算時間は $M^3 \times N_e$ に比例し、通信時間は $M^2 \times N_e$ に比例するため、1CPU の担う格子点数が多くなるほど相対的な通信の負荷が減る。筑波大 PACS-CS の 256CPU を用いたテスト計算では、1CPU 当たり $M=30$ 、 $N_e=5$ で、全体の経過時間に対して通信時間の占める割合が約 30% と比較的良い並列化効率を示している。また、この部分の通信は隣接間通信のため、CPU 数を増やしても通信の負荷が大きくなるというのも注目すべき点である。

3 強レーザー照射によるフラレン(C_{60})のクーロン爆発

現在、レーザー技術は目覚ましい発展を遂げており、高強度化、超短パルス化されたパルスレーザーを用いて様々な研究がなされている。例えば、レーザーによる分子配向のコントロール、反応のコントロールなどが挙げられる。また、高強度の X 線レーザー(X 線自由電子レーザー: XFEL)は現在注目を集めており、これを用いて、たんぱく質の構造解析を行うといったことも計画されている。

このような高強度の光と分子との相互作用において電子は非線形ダイナミクスを伴う励起状態へ遷移しており、我々の開発した手法はこのような現象を記述するのに適している。また、高強度レーザーとの相互作用を記述するには通常より広い空間領域を確保する必要があり、その点から、実空間分割による大規模並列計算は威力を発揮する。

今回我々は光と分子の相互作用に対するシミュレーションの一例として、フラレン(C_{60})に強レーザーパルスを照射した場合のクーロン爆発の結果を示す。図はフラレンの中心を通る平面の電子密度の時間変化の様子を示している。



4fs(fs : 10^{-15} sec)のときと、5fs のときに強レーザーパルスによって電子がフラレンから剥ぎ取られ、多重イオン化している様子がわかる。多重イオン化したフラレンは結合が保てなくなり、爆発を起こし始める。35fs では初期の形に比べて大きく変形していることが見て取れる。

4 まとめ

量子論的な性質が顕著に現れるナノサイズの物質における電子ダイナミクスを記述する手法として TDDFT は適した手法である。我々は TDDFT の基礎方程式である時間依存 Kohn-Sham 方程式を実空間・実時間法で解き進めた。この方法は大規模並列計算向きの方法であり、筑波大 PACS-CS 256CPU でのテスト計算で、通信時間が全体の経過時間の 30% と、比較的高効率な並列計算が可能であることを示した。今回我々は計算の一例として、フラレンに対する結果を示したが、ペタフロップス級のコンピュータを用いれば千原子程度まで拡張できることが予想され、生体分子の第一原理計算も視野に入るであろう。

参考文献

- [1] E. Runge and E. Gross 1984 Phys. Rev. Lett. **52** 997
- [2] K. Yabana and G. F. Bertsch 1996 Phys. Rev. B **54** 4484