

Title	北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告2013
Author(s)	佐藤, 幸紀; 宮下, 夏苗; 尾崎, 泰助
Citation	Technical memorandum (School of Information Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology), IS-TM-2014-001: 1-58
Issue Date	2014-07-24
Type	Others
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/12163
Rights	
Description	テクニカルメモランダム (北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科)

北陸先端科学技術大学院大学
共有計算サーバ使用成果報告 2013

佐藤幸紀, 宮下夏苗, 尾崎泰助 編

2014年7月24日

IS-TM-2014-001

北陸先端科学技術大学院大学
情報社会基盤研究センター
〒923-1292 石川県能美市旭台 1-1

要旨

2013 年度に北陸先端科学技術大学院大学において学内で共同利用されている計算サーバや並列計算機を用いて行われた研究の概要および発表論文リストを紹介する。

目次

1. JAIST における共有計算サーバ環境	4
2. 情報科学分野の計算サーバ利用研究	9
潜熱の影響を考慮した鼻腔壁面モデルを用いた鼻腔内流れに関する研究	10
重複大動脈瘤の多期的治療に関する数値流体シミュレーション	12
SIMD による疎行列ベクトル積の高速化	13
ボロン系超硬材料の体積弾性率に関する研究	14
第一原理量子モンテカルロ法による 1,4-ジヨードベンゼンの結晶多形予測	16
金属ナノワイヤ間の分散力相互作用における特異な非加算性寄与の解明	19
ダイヤモンド半導体の電極形成に関する電子状態計算	20
メモリ階層対応ダイナミックコンパイレーション技術の研究開発	21
階層メモリアクセスパターン解析ツールの研究開発	23
広帯域無線通信における通信環境変化時の堅牢性向上を目指したチャネル推定技法 の検討	24
エキスパートの大局観のモデル化に向けた評価指標の推定	25
Analyzing the Impact of Mitigation Strategies on the Spread of a Virus	26
3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバ利用研究	27
OpenFFT: An Open-Source Package for 3-D FFTs with Minimal Volume of Communication	28
不均一系 Ziegler-Natta 重合用ドナー化合物の非経験的設計への試み – ジアルキル ジアルコキシシランの構造性能相関 –	29
MaterialsStudio+COSMOtherm による有機化合物の物性予測	33
生体高分子の触媒科学 – 金属含有蛋白質のプロトン輸送の機構解明 –	34
共有計算サーバ使用成果報告書	35

Substrate Dependence of the Proton Transport and Oriented Structure in Oligo[(1,2-propanediamine)-alt-(oxalic acid)] Thin Films.....	36
Molecular Modeling Studies on Polymerization Activity for Late Transition Metal Complex Pre-catalyst.....	38
Gaussian 09 Calculations Carried Out Using Computational Facilities at JAIST	39
全学共用計算サーバ・並列計算機利用レポート.....	40
大規模第一原理計算に適用可能な軌道解析手法の開発.....	41
SiO ₂ /Si 上グラフェンナノリボンの大規模第一原理電子伝導計算.....	43
InSb の電子状態および光学誘電率の第一原理計算.....	45
遺伝子アルゴリズムと第一原理計算の併用による不均一系触媒の非経験的構造決定	46
鉱物テトラヘドライト Cu _{12-x} Ni _x Sb ₄ S ₁₃ の電子構造.....	47
User Research Report using MPC Servers for 2013	48
The impacts of electronic state hybridization on the binding energy of single phosphorus donor electrons in extremely downscaled silicon nanostructures.....	49
First-principles studies of two-dimensional materials using computational facilities of JAIST	50
First-principles calculations on Si and Ge new allotropes.....	51
First principles study of edge irregularities in Graphene Nanoribbon device	52
The report on Use of Computing facilities of JAIST	53
The Report on Use of Computing Facilities of JAIST.....	57
4. 謝辞.....	58

1. JAIST における共有計算サーバ環境

情報社会基盤研究センター
宮下夏苗 佐藤幸紀

北陸先端科学技術大学院大学 (JAIST) では、全学で共有利用可能な計算サーバは、その利用者が参加する MPC グループを中心として MPC グループの取りまとめを行う MPC 管理グループと、計算機の実務的な運用を担当する情報社会基盤研究センター (以下情報センター) との緊密な連携のもとに運用されている。ここで、情報センターは JAIST 情報環境システムと連携しつつ、学内共有の計算資源として計算サーバを設計・導入・管理・運用する役目を担っている。他方 MPC グループは共有計算サーバの利用者から構成されるグループであり、MPC 管理グループは MPC グループのユーザからの声を吸い上げ、キュークラスなどの設定を調整することや、mpc メーリングリストにおける利用者間の利用の調停を行っている。情報センターと MPC グループ・MPC 管理グループの関係は参考文献[9]や[10]を参照願いたい。

2013 年度の JAIST における情報センター、MPC グループおよび MPC 管理グループの主だった活動について以下に述べる。2013 年 10 月 28 日~29 日の 2 日間、情報センター、シミュレーション科学研究センターおよびクレイ・ジャパン・インク社との共同にて HPC ワークショップ金沢 2013 を企画、開催した。東京工業大学、国立天文台など国内の著名な HPC ユーザによる講演や米国 Cray 社のパフォーマンスエンジニアによるハイレベルなユーザトレーニングなどのプログラムを通じて先端的な技術研究について議論を深める貴重な場となった。

また 2014 年 2 月 4 日、MPC 管理グループと mpc コアユーザ、情報センターによるミーティングを開催した。2014 年 3 月に稼働開始の Fujitsu CX250 クラスタの紹介、同クラスタの運用やキューイングシステムの構成について議論を行ったほか、その他現行のシステムに関わる懸案事項を整理し、方針を決定した。

このほか、並列計算機ユーザの技術レベルの向上、理解の促進を目的とし、各システム、ソフトウェアに関する利用者講習会を企画した。開催した講習会の一覧を表 1 に示す。なお講習会企画の 10 月分、Cray XC30/最適化プログラミング講習は前述の HPC ワークショップ金沢 2013 の一環である。

次に、2013 年における共有計算サーバ環境の更新点を以下に記述する。2014 年 3 月に Appro GreenBlade Server Cluster がリプレースとなり、Fujitsu CX250 Cluster を新規に導入した。同機は Xeon E5-2680v2 20CPU コアを搭載したノード 108 台から構成され、それぞれのノードが一般的な LinuxOS として動作する。各種商用、オープンソースのアプリケーションやライブラリとも親和性が高く、初心者からコアユーザまで様々なユーザが利用を開始している。

また、情報センターでは講習会開催以外にも並列計算機ユーザの利便性、知識レベルの向上

表 1: 2013 年度開催の講習会

開催月	講習会
2013 年 6 月	並列計算機利用者オリエンテーション Cray XC30/MPI 初級者講習会 SGI AltixUV1000/並列プログラミング 初級者講習会 ScaleMP vSMP Foundation 講習会
2013 年 9 月	Mathworks MATLAB 講習会
2013 年 10 月	Cray XC30/最適化プログラミング講習会
2013 年 11 月	SGI AltixUV1000/並列プログラミング講習会
2014 年 2 月	SAS ハンズオンセミナー

を目的としたユーザのニーズに応じたソフトウェア・ライブラリの導入、公開情報の整備など、利用と教育の双方に焦点を置いたユーザ支援プログラムを展開している。

2013 年度におけるユーザサポートの一環としては、2013 年 7 月に PC クラスタに Mathworks MATLAB を導入、利用方法を確立、公開したほか、2013 年 10 月には Accelrys MaterialsStudio の Windows ユーザ向け Gateway サービスについて、これまでシングルバージョンでのみサービスしていたものを拡張し、サービスポートの変更による複数バージョンの同時サービスを開始した。さらにユーザから依頼のあった NAMD、NWChem などのオープンソースアプリケーションについてコンパイル方法を検証し、手順を確立した。

加えて、2013 年度は情報センターの佐藤を中心に計算サーバのパフォーマンス測定に積極的に取り組んだ。2013 年 6 月期には Cray XC30 がスーパーコンピュータの性能世界ランキング TOP500 の 433 位にランクイン、2013 年 11 月期には SGI Altix UV1000 がデータ処理性能世界ランキング Graph500、およびその電力あたりの性能ランキング GreenGraph500 にそれぞれ 50 位、6 位にランクインしている。

本報告「北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2013」は 2013 年度に情報センターから提供されている共有計算サーバを利用した研究の概要とその成果報告である。各ユーザのニーズを的確に把握し、さらに充実した計算機環境を構築することを目的として、MPC 管理グループと情報センターにより mpc メーリングリストにおいて本報告への協力の依頼を行った。その結果、各著者のご厚意によって情報科学分野から 12 件、材料科学分野から 21 件の報告の提出をいただいた。寄稿された報告より、共有計算サーバは JAIST の教育研究のインフラとして幅広い分野で利用されている様子がうかがえる。残念ながら、知識科学研究科が

らの寄稿はなかった。一方で、知識科学分野のユーザーの MPC 利用の実績も統計情報から見受けられており、今後学内での交流の機会などを通して MPC グループとの連携を深めたいと考えている。また、寄稿された各報告から共有計算サーバはより高い精度、より高質な研究成果を得るために必要不可欠な研究基盤としてますます重要性を増している状況が伺える。

表 2:JAIST で利用可能な計算サーバ(2014 年 4 月 1 日現在)

機種名	主な仕様
Fujitsu CX250 クラスタ	分散メモリ型 Fujitsu Primergy CX250 S2 全 108nodes, 216CPU, 2160 CPU cores ノード構成 CPU: Xeon E5-2680v2 2.80GHz (10Core) x2 Memory: 64GB (4GB DDR3-1866 ECC x16) ノードメモリバンド幅: 119GB/s Infiniband FDR 4x によるノード間接続 OS: CentOS 6.4 ディスク装置: 50TB, 一部ノードは GPFS による高速 IO /work としてマウント 主なソフトウェア: コンパイラ: Intel Compiler, PGI Compiler, GNU Compiler ソフトウェア: Matlab, Materials Studio, etc.
Cray XC30	分散メモリ, スカラー型 システム 総ノード数: 360 ノード (720CPU, 5760Core) 総理論演算性能: 119.8TFLOPS メモリ容量: 22.5TB 作業用データ領域: 200TB (Lustre) ノード構成 CPU: Intel Xeon E5-2670 2.6GHz (8Core) x2 Memory: 64GB (8GB DDR3-1600 ECC x8) (コアあたり 4GB) ノード理論演算性能: 332.8GFLOPS ノードメモリバンド幅: 102.4GB/s 主なソフトウェア コンパイラ: Cray Compiler, Intel Compiler, GNU Compiler ライブラリ: GNU C(glibc), CSML(BLAS, LAPACK, ScaLAPACK, FFTW)
SGI Altix-UV1000	共有メモリ型(ccNUMA 方式) 96 nodes, 1536 CPU cores, 12TB memory が ccNUMA 方式により結合され、単一メモリ空間を持つ ノード構成 CPU: Intel Xeon Processor E7-8837 * 2 基 メモリ: 128GB (DDR3@1033MHz * 4 channels) NUMA-link5 (15GB/秒/node)によりノードを結合 OS: SUSE Enterprise Server 11 SP1 ディスク装置 51TB

vSMP	<p>共有メモリ型(vSMP Foundation を用いて BIOS レベルで接続し、仮想的なシングル OS のシステムを構成) 8 台の物理ノードにより 仮想的な 128Core, 870GB のシステムとして構成 ノード構成(Fujitsu Primergy RX300 S7) Intel(R) Xeon(R) CPU E5-2690 2. 90GHz ×2 基 128GB メモリ Infiniband QDR 4x によるノード間接続 OS: CentOS 5. 6 ディスク装置 32TB, pNFS による高速 IO /work としてマウント</p>
Apollo GPU クラス タ	<p>分散メモリ型 Appro 1323G2-SM10 全体で 144Core, Memory 288GB 1 ノードの構成: AMD Opteron 6136 (Magny-Cours 8core) * 2 基 NVIDIA Tesla M2050 * 2 基 32GB DDR3 9 ノードのシステム全体で総理論演算性能 10. 6TFlops (CPU 1. 3TFlops + GPU 9. 3TFlops) Infiniband 4xQDR によるノード間接続 ログインノード(SAS ディスク+NFS ファイルサービス) WORK 領域 2. 2TB 主なソフトウェア CentOS 5, PGI Compiler, PBS Professional</p>

参考文献

- [1] 佐藤 理史(編), ”JAIST における超並列関連研究 : 1992 年度-1993 年度”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-94-0001, (1994).
- [2] 佐藤 理史(編), ”JAIST における超並列関連研究 : 1994 年度-1996 年度”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-97-3, (1997).
- [3] 佐藤 理史(編), ”JAIST における超並列関連研究(1997 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-98-1, (1998).
- [4] 林 亮子(編), ”JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(1998 年度-2000 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2002-003, (2002).
- [5] 林 亮子(編), ”JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2001 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2002-004, (2002).
- [6] 林 亮子(編), ”JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2002 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2003-001, (2003).
- [7] 林 亮子(編), ”JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2003 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2004-002, (2004).

- [8] 林 亮子(編), ”JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2004 年度)”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2005-001, (2005).
- [9] 太田理, 尾崎 泰助, 佐藤 幸紀(編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2007”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2008-002, (2008).
- [10] 太田理, 尾崎 泰助, 佐藤 幸紀(編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2008”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2009-001, (2009).
- [11] 太田理, 尾崎 泰助, 佐藤 幸紀(編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2009”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2010-001, (2010).
- [12] 尾崎 泰助, 佐藤 幸紀(編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2010”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2011-001, (2011).
- [13] 佐藤 幸紀, 尾崎 泰助 (編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2011”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2012-001, (2012).
- [14] 佐藤 幸紀, 尾崎 泰助 (編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2012”, 北陸先端科学技術大学院大学 情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2013-001, (2013).

2. 情報科学分野の計算サーバ利用研究

潜熱の影響を考慮した鼻腔壁面モデルを用いた 鼻腔内流れに関する研究

情報科学研究科 松澤研究室
埴田 翔

利用計算機: Cray XC30, VSMP, Altix UV.

研究概要

鼻腔は、鼻孔から咽頭にかけての空間である。鼻腔内部は、甲介がはり出すことにより上鼻道、中鼻道、下鼻道に分割されており、複雑な構造をしている。鼻腔には、空気中の埃を取り除いたり、匂いを感知したり、音を反響させたり、吸気の温度や湿度を調節する機能がある。これらの機能は、様々な環境下における呼吸において肺や気管を保護する上で重要である。

数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics (CFD)) を用いて、鼻腔内の流れを数値シミュレーションすることで、鼻腔機能を解明するための検討が行われている。数値シミュレーションにおいては、実際の現象を精度よくシミュレーションするためのモデル化が重要である。

本研究では、鼻腔内の流れ、温度、湿度および潜熱の影響を明らかにするために、鼻腔壁面における温度と水蒸気交換モデルを提案し構築した。提案した鼻腔壁面モデルは、鼻腔粘膜の厚さをモデル化すると共に、検熱だけでなく水の移送に起因する蒸発潜熱や凝縮潜熱による熱の交換も考慮している。これらを考慮することによって、提案した鼻腔壁面モデルは、生体内の物理現象を、これまで以上に精密にシミュレーションすることが可能である。提案した鼻腔壁面モデルを用いて、鼻腔内の流れ、温度分布、湿度分布のシミュレーションを行った。シミュレーション結果は、実験により測定された温度および相対湿度の結果と良好に一致を示した。したがって、提案した鼻腔壁面モデルは、鼻腔内の流れ、温度、湿度の適切にシミュレーションを行う事ができる。

種々の環境下における鼻腔の温度および湿度調節機能を検討するために、暑く湿った空気、暑く乾燥した空気、冷たく湿った空気、冷たく乾燥した空気を吸った場合の、鼻腔内の流れのシミュレーションをおこなった。いずれの場合においても、吸気された空気は、咽頭に到達するまでに体温付近まで調節された。また、低湿度の吸気の場合においても、吸気は、相対湿度で100%近くまで、加湿された。全ての吸気ケースにおいても、温度および湿度が最適な状態に調節されることを明らかにした。また、鼻孔からの吸気の温度および湿度は、鼻腔前方部で、急激に調整され、鼻弁周辺で、最も熱および水蒸気の交換が行われていることを明らかにした。

さらに、種々の空気を吸気した場合における潜熱の影響の検討をおこなった。暑く湿った空気を吸気した場合では、凝縮潜熱が働き、暑い空気が体温まで冷却されるのを妨げることを明らかにした。暑く乾燥した空気を吸気した場合では、蒸発潜熱が働き、暑い空気が体温まで冷却されるのを促進されることを明らかにした。冷たく乾燥した空気および冷

たく湿った空気を吸気したケースでは、蒸発潜熱が働き、冷たい空気が体温まで加温されるのを妨げることを明らかにした。また、潜熱は、鼻腔粘膜からの水の移動に依存して変化するため、乾燥した空気を吸気した場合などの水の移動量が多い場合に潜熱の影響が大きくなることを明らかにした。

呼吸は、呼気と吸気からなる非定常な現象であるため、鼻腔内の流れの非定常性についても検討をおこなった。鼻腔内の流れ、温度分布、湿度分布には、ほとんど非定常的な現象は、観察されなかった。したがって、鼻腔内流れは、定常シミュレーションにより、十分に検討可能であると考えられる。

性別、年齢、体格などが異なる個体における鼻腔内流れの個体差について検討をおこなった。今回検討した個体では、鼻腔の体積が50%程度異なる個体が存在したが、鼻腔内の流れ、温度分布、湿度分布に顕著な個体差は見出されなかった。健常者の鼻腔においては、体格、年齢および性別による機能の差異を見出す事は困難であった。したがって、健常者の鼻腔においては、性別、年齢、体格などに鼻腔の機能は、ほとんど左右されないと考えられる。

副鼻腔の生理学的機能を数値流体力学の観点から検討した。副鼻腔については、副鼻腔の中で最も体積が大きい上顎洞を対象に検討をおこなった。数値流体力学シミュレーションを用いて、鼻腔内の流れ、温度分布、湿度分布について検討をおこなった。上顎洞を含む結果と上顎洞を含まない結果では、鼻腔内の流れ、温度分布、湿度分布には大きな変化は、確認されなかった。数値シミュレーションの観点からの検討においては、上顎洞は、鼻腔内の流れや温度・湿度分布には影響を及ぼさないことが示唆された。

研究業績:

- 1 Sho Hanida, Futoshi Mori, Kiyoshi Kumahata, Masahiro Watanabe, Shigeru Ishikwa, Teruo Matsuzawa: "Influence of Latent Heat in the Nasal Cavity", *JSME Journal of Biomechanical Science and Engineering*, Vol.8, No.3, pp.209-224 (2013).
- 2 Sho Hanida, Futoshi Mori, Kiyoshi Kumahata, Masahiro Watanabe, Shigeru Ishikwa, Teruo Matsuzawa: "Airflow Simulation considering Latent Heat Effect", *The European Society of Biomechanics* (2013)
- 3 Yosuke Otsuki, Sho Hanida, Futoshi Mori, Takeshi Nishimura, Hiroshi Ohtake, Go Watanabe, Shigeru Ishikawa, Teruo Matsuzawa: "Computational Fluid Simulation in Living Body", *Proceeding of MJIT-JUC Joint International Symposium 2013 (MJJIS2013)*, MB-1-2 (2013)
- 4 Kaouthar Samarat, Kiyoshi Kumahata, Sho Hanida, Takeshi Nishimura, Futoshi Mori, Shigeru Ishikawa, Teruo Matsuzawa: "Application of Computational Fluid Dynamics to Simulate a Steady Airflow in all Regions of Chimpanzee Nasal Cavity", *Procedia Engineering* Vol.61, pp.264-269 (2013)
- 5 埴田 翔, 森 太志, 熊畑 清, 安里 彰, 石川 滋, 松澤 照男: "潜熱を考慮した鼻腔内の流れの非定常解析", 日本機会学会 北陸信越支部 第50期総会・講演論文集, 2013
- 6 西村 剛, 森 太志, 埴田 翔, 熊畑 清, 石川 滋, 鈴木 樹理, 宮部 貴子, 林 美里, 友永 雅己, 松沢 哲郎, 松澤 照男: "ヒトとサル類における鼻腔の生理学的機能に関する数値シミュレーション" 第29回日本霊長類学会・日本ほ乳類学会 2013年度合同大会, 2013

重複大動脈瘤の多期的治療に関する数値流体シミュレーション

情報科学研究科，博士後期課程，大拙 陽介

重複大動脈瘤とは，2つ以上の大動脈瘤が同時に発症する疾病であり，医療画像技術の発展に伴い近年発見件数が増加している．大動脈瘤が破裂した場合，致死率は90%程度である．治療法には，成功率の高さから個々の瘤を1度の手術によって治療する，多期的な治療が用いられることが多い．この治療では一般的に腹部の瘤から治療されることが慣習的であるが，学術的な報告はされていない．そこで，本研究では医療画像から再構築された形状と，単純形状を組み合わせたモデル形状を用い拍動流の計算を行い，術後の瘤内部の圧力変化について調べた．また瘤は胸部に位置する大動脈弓部と腹部大動脈に発生しやすいことが臨床的に判明しており，今回使用した医療画像もそのような部分に瘤が発症していた．モデル形状の瘤の位置は比較のため再構築形状にあわせた．

形状は剛体とし，非圧縮とニュートン流体仮定のもと，Navier-Stokes 方程式を圧力差によって解いた．本学 Appro PC Cluster と SGI Astersm を用いて計算と可視化及び統計処理を8並列で行った．数値計算には汎用流体ソルバーの Fluent 14.5 を用い，可視化と統計処理には Paraview 3.8.1 を使用した．

解析の結果，再構築形状とモデル形状に於いて，腹部瘤を先に治療した場合のみ胸部残留瘤内部の圧力が増加することが判明した．胸部瘤を先に治療した場合は，残留腹部瘤内部の圧力は減少することが確認できた．解析結果から，慣習的に行われている治療法では，胸部残留瘤の破裂を助長する危険性が考えられ，重複大動脈瘤の治療手順は胸部に存在する瘤を先に治療したほうが破裂に可能性は低いと考える．

本研究に関する論文

Yosuke Otsuki, Nhat Bui Minh, Hiroshi Ohtake, Go Watanabe, and Teruo Matsuzawa, Preliminary Computational Hemodynamics Study of Double Aortic Aneurysms under Multistage Surgical Procedures: An Idealised Model Study, The Scientific World Journal
Volume 2013 (2013), Article ID 601470, 1-9

大拙 陽介，数値留置力学による重複大動脈瘤の治療前評価に関する研究，2013，北陸先端科学技術大学院大学，博士論文（公開準備中）

SIMD による疎行列ベクトル積の高速化

情報科学研究科: 西條 晶彦, 松澤 照男

使用計算機: Cray XC30

数値流体科学シミュレーションの分野は、計算機環境の進歩に伴って進歩しており、単純・幾何的な状態のシミュレーションではなく複雑な形状による現実の条件に則した計算がおこなわれている。しかし医療分野への応用といった非常に複雑な対象への現実的なシミュレーションは多くの計算量とデータを必要とする“重い”問題であり、通常の計算機による計算では現実的な計算時間以上に時間を必要としてしまうため、高性能計算機 (HPC) の使用が必須である。問題の一つである非圧縮粘性流体の大規模並列シミュレーションでは、非構造格子を取り、格子上的圧力の Poisson 方程式を、前処理付き共役勾配 (PCG) 法で解く手法が確立している。しかしながら計算対象となる領域が増加しつつある状況では PCG 法のアルゴリズムをハードウェアの特性を活かした効率のよいものにする必要がある。

現在、高性能計算機はエクサスケール性能への到達を目指し、多くの研究が行なわれている。次世代の計算機では、GPGPU やメニーコアプロセッサのような計算アクセラレータを搭載して単体ノードは 10Tflops 以上に達し、これらを高速ネットワークで 10 万ノード以上接続したものが開発されることが想定されている。

並列 PCG 法はネットワーク接続された並列計算機では領域分割により互いの領域情報を MPI などによる通信で交換することによりスケラブルに並列計算することが出来る。単体ノード上では PCG 法に現れる疎行列ベクトル積 (Sparse Matrix Vector Product, SpMV) の計算中のループを OpenMP などによりスレッド並列を行うハイブリッド並列により、さらにスケラビリティを上げることが可能である。

しかしながら、現在のメニーコアプロセッサにおいて計算効率を向上する手法の研究はあまり進んでいない。Xeon CPU や Xeon Phi, GPGPU といったメニーコアプロセッサには SIMD ユニットが搭載されており、多数の並列度を利用した SIMD 演算が利用できる。このような SIMD 演算器の利用は多くはコンパイラの最適化や専用の Intrinsic を埋め込むことによって行なわれており、プログラムは難しく SIMD 演算器は有効活用されているとは言いがたい。高性能並列計算ではノード、プロセッサ、コアという多階層の並列性を利用したコードを開発する必要がある。

本研究では、SIMD 演算のためのドメイン特化言語 (DSL) である Intel SPMD Program Compiler を用い、並列 PCG 法の最も主要な計算となる SpMV の SIMD 対応カーネルを作成し、この性能を調査した、これによりアルゴリズムに直観的な記述で SIMD ユニットを用いるような計算が可能となる。SpMV の SIMD 計算には並列性を確保するために、行列の並べ替えを行う必要がある。行列のデータ構造として CRS (Column Row Storage) と JDS (Jagged Diagonal Storage) を用意し、それぞれに SIMD-SpMV を実装した。さらに、マルチコア上での計算のために OpenMP によるスレッド並列も行い、これを AVX 命令が使える SandyBridge 世代の Xeon E5 上で性能を比較した結果、フロリダ大学疎行列コレクションの FIDAP 疎行列に対して 1.2 倍から 1.5 倍の性能向上が見られた。

研究業績

1. 西條晶彦, 松澤照男, 生体工学と流体工学に関するシンポジウム金沢, 2014

ボロン系超硬材料の体積弾性率に関する研究

情報科学研究科 前園研究室
林 賢太郎

利用計算機: Cray XC30, SGI Altix UV1000

研磨・切削などに用いられる超硬材料として、窒化ホウ素超硬材料が知られているが、より硬い材料として、これに炭素を混晶させた窒化ホウ素炭素材料の合成が模索されている。その実験合成は容易ではなく、これまでに、硬度指標としての体積弾性率について、従来の窒化ホウ素を超える値が報告される一方、それを否定するような実験報告もあり齟齬を来している。一方、「合成法を改良していけば、原理的により硬い材料は得られうるか否か」という問いに答える形で、密度汎関数法を用いた数々の理論研究がなされ、これらは一貫して「硬い材料は得られうる」という期待を支持するものとなっている。ただし、これら理論計算は密度汎関数法を用いたものであり、手法上、量子多体相互作用の扱い

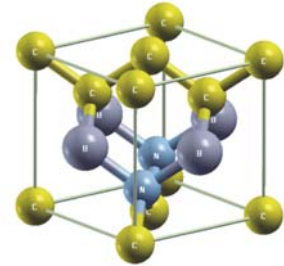


図1 c-BC₂Nの単位格子

に恣意的近似要因が残されるものである。また先行研究では、体積弾性率予見において格子振動の影響を考慮しておらず、本研究が示すとおり、体積弾性率算定に供する幾つかの体積において、格子構造自体が安定に存在できない事が明らかになっており、先行研究における理論予見は、その信頼性において十分とは言い難い。量子多体相互作用の取扱いに対しては、近年、極めて高い参照標準となりうる強力な数値的手法として、量子拡散モンテカルロ法電子状態計算が実用化されている。また格子振動計算についても、近年の計算機性能の向上で、数値的定量的評価法が実現可能となっている。そこで、本研究では、これら枠組みを組合せ、より盤石な信頼性を以て、「窒化ホウ素炭素は、原理的に窒化ホウ素より高い弾性率を与えるのか」という問いに対して、第一原理計算による見積もりを与える事を目的とするものである。

第一原理計算においては、現実系での大きく複雑な問題を、計算可能なシミュレーションモデルでリーズナブルに記述する事が肝要となるが、注意深く計算条件を選定する事で、まずは密度汎関数法の範囲内でも、先行研究を上回る信頼性の高いモデリングを確立した。このことは、実験サンプルに十分な信頼性が確保できる窒化ホウ素に対して、平衡体積予見の実験との差異が、先行研究で-1.98%であったものが、本研究の密度汎関数法算定では、0.93%に減じている事より支持される。次いで、このモデリングを基に、初期推定試行関数を生成し、量子モンテカルロ法電子状態計算を行った。当該手法では、初期推定試行関数に十分な質を確保することが、物性予见到耐えうる統計精度を確保する上で重要となる。本研究では、変分最適化による初期推定試行関数の精製に十分な注意を払うことで、統計誤差を含めても十分に滑らかなエネルギー体積曲線を得る事に成功した。この曲線を、Vinetの状態方程式でフィッティング算定する事で平衡体積値や体積弾性率を評価した。上述の較正值として、窒化ホウ素平衡体積予見を評価すると、本研究の量子モンテカルロ法電子状態計算では、-0.65%を達成し、本手法の特長である虚時間発展射影演算がよく機能している事を支持する。量子モンテカルロ法電子状態計算による体積弾性率の予見は、密度汎関数法による先行研究の予見を支持し、「窒化ホウ素炭素が、窒化ホウ素よりも高い弾性率を与える」という事を支持する。

表1 絶対零度でのフィッティングパラメタの値

	$V_0(\text{Bohr}^3)$		$B_0(\text{GPa})$		B'_0	
	c-BN	c-BC ₂ N	c-BN	c-BC ₂ N	c-BN	c-BC ₂ N
GGA	80.0384	319.6464	368.38	373.34	3.8798	3.8089
DMC (Ewald)	79.31(3)	317.8(4)	391(1)	396(2)	3.79(1)	3.60(7)
LDA / reference	78.25	307.7	392	421.9	-	-
Experimental	79.83	327.2	369	282	-	-

次に、有限温度での実験と比較することを念頭に置いて、格子振動の影響を採り入れた補正計算を行った。この計算では、格子振動の熱揺らぎ、及び、絶対零度における量子ゆらぎの効果が採り入れられるが、それら以上に影響が大きい事項となったのは、状態方程式フィッティングに供する窒化ホウ素炭素の低圧側体積点の2点が、構造的に不安定となる明らかになったことである。これら2点を除いて、フィッティング解析の信頼性を十分注意深く検討しながら、再計算を行い、かつ、熱ゆらぎ、量子ゆらぎの補正を勘案した上で、最終的に、「窒化ホウ素炭素が、窒化ホウ素よりも高い弾性率を与える」という結論が覆らない事が検証された。

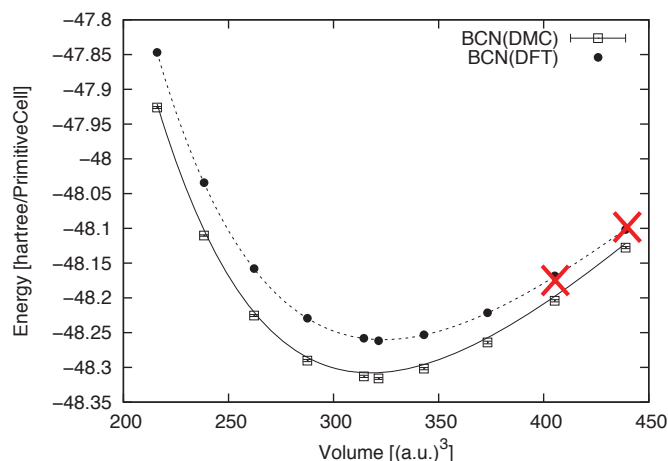


図2 c-BC₂N の Energy-Volume 曲線。低圧側 2 点がフォノン不安定点である。

表 2 零点振動補正・有限温度補正を加味したフィッティング結果

	$V_0(\text{Bohr}^3)$		$B_0(\text{GPa})$	
	c-BN	c-BC ₂ N	c-BN	c-BC ₂ N
GGA / raw	80.6888	323.0492	349.45	361.06
GGA / T=0K	81.0969	323.6860	347.02	354.17
GGA / T=300K	81.1419	323.8707	346.30	353.19
DMC / raw	79.60(3)	318.0(5)	365.1(5)	376(4)
DMC / T=0K	80.54(3)	322.0(5)	356.6(5)	365(4)
DMC / T=300K	80.58(3)	322.2(5)	356.0(5)	364(4)
Experimental	79.83	327.2	369	282

以上により、「窒化ホウ素炭素は、原理的に窒化ホウ素よりも高い弾性率を与えるのか」という元来の問いかけに対しては、「非相対論・断熱近似の範囲内では、体積弾性率としての硬さにおいて、窒化ホウ素炭素は窒化ホウ素よりも硬い」という結論を得るに至った。数多くの先行研究におけるモデリングや、本研究における窒化ホウ素に対しての高い予見性を鑑みると、当該物質・当該量の評価において、非相対論・断熱近似の仮定が不相当であるとは考え難い。本研究は、したがって、「当該問題に対する数々の密度汎関数法計算の正当性は、更に信頼性の高い別手法からも十分支持される事」、「幾つかの実験報告値の齟齬は、実験サンプル合成上の質に関する問題、もしくは、異方的弾性率を排除した完全に等方的に体積弾性率を測定する事の難しさに帰される可能性が高いものと考察される」と結論づけられる。

第一原理量子モンテカルロ法による 1,4-ジヨードベンゼンの結晶多形予測

情報科学研究科 本郷研太、前園涼

使用計算機：Altix UV1000, Cray XC30

分子結晶は、従来、アスピリンなどの薬理物質として研究が盛んに行われていたが、近年では、クリーンエネルギー実現のための有機半導体機能性物質として注目されている。その特徴として、系の安定性が分子間力(水素結合・分散力)で決まるため、比較的小さいエネルギー(数～数十 kcal/mol)で容易に構相転移を起こし、その立体配列の違い(結晶多形)から、物理化学的性質が大きく変化することが知られている [1]。シミュレーションによる正確な結晶構造予測が可能となれば、ドラッグ・デザインやマテリアル・デザインにおける多大な組合せ探索に劇的な効率化がもたらされる。しかしながら、現行の枠組みにおいては、その構造を決定づけている分散力自体の理論記述が不十分なため、この方向での実用化が阻害されている。分散力は高次の電子相関効果であり、分子間力の中でも特に、電子間相互作用の精緻な取扱いが必要であり、ドラッグデザインや物質デザインにおける挑戦課題となっている。

本研究で対象とする 1,4-ジヨードベンゼン (para-diiodobenzene; p-DIB) 分子結晶 (図 1 左パネル) は、高効率太陽電池材料の一つとして注目を集め、その特性理解のために、密度汎関数法による先行研究が行われたが、標準的な密度汎関数 (DFT) 法による理論予測では結晶多形の相対的安定性について、実験結果を説明できないことが報告されている [2]。実験によれば、p-DIB は 326K で α 相から β 相への構造相転移を示し、従って、絶対零度においては、 α 相の方が β 相よりも安定であることが知られている。他方、CCSD(T) 法などの高精度分子軌道法を直接分子結晶系に適用しようとする、現状の超並列計算機であっても、計算資源不足から計算が走らないといった問題に直面する。そのため、計算精度と計算コストの両面でバランスのとれた代替法が必要となる。計算精度の観点から、第一原理量子モンテカルロ (QMC) 法 [3] は、分散力の取扱いに信頼性の高い手法として知られており、最近では、生体分子系において分散力を高精度に再現している [4]。高い並列効率 (98%超) 故に超並列計算機との親和性が高く、近年、実用性を伸ばしつつある。利用者は最近、前述の p-DIB 結晶多形の問題に本手法を適用し、その結晶多形の理論予測を行い、p-DIB 分子結晶多形の相対的安定性を正しく再現した [5]。

先行研究で実施した QMC 計算では、しかしながら、計算機資源の制限から、 $1 \times 1 \times 1$ シミュレーション・セルでの QMC 計算を行い、それに対して、Kwee らによって提案された DFT に基づく手法 (KZK 補正スキーム [6]) によって有限サイズ効果を見積もっていた。結晶の周期性を再現するためには、本来、異なるシミュレーション・セルサイズで計算を行い、無限大への外挿が必要となるが、QMC 法は、DFT 法と異なり、非常に大きなセルサイズの計算をすることは実際上不可能であり、信頼性の高い外挿値を得ることは難しく、依然として、有限サイ

ズ効果 [7] に起因する誤差の見積もりが必要となる。そこで、本研究では、先行研究よりも大きなシミュレーション・セル ($1 \times 3 \times 3$) で QMC 計算を行って、有限サイズ効果を見積もった。

本研究では、QMC 法における試行関数生成、及び、DFT 計算を、Altix UV1000, XC30 上にインストールした平面波基底第一原理計算パッケージ Quantum Espresso を用いて実行した。QMC 法における変分最適化計算は、XC30 を用いて行った。こうして得られた試行関数を試行節とする拡散モンテカルロ (DMC) 法には、非常に莫大な計算コストを要するため、京スパコンを用いて実行した。

図 1 右パネルに、2 つセルサイズに対して得られた結晶多形のエネルギー差 ($\Delta E = E(\alpha) - E(\beta)$) を示す。各セルサイズにつき、Ewald 法と MPC (Model Periodic Coulomb) 法 [7] にて算出した ΔE 値が示されている。有限サイズ誤差の大きさを見積もる簡便な指標として、Ewald 法と MPC 法の差が小さくなることが知られているが、 $1 \times 1 \times 1$ では、両者の差が大きく、従って、このサイズでは、有限サイズ誤差を取り除いていないことがわかる。それに対して、 $1 \times 3 \times 3$ では、両者の差は小さく、 $\Delta E < 0$ であり、実験事実と一致する結果を与えることがわかった。

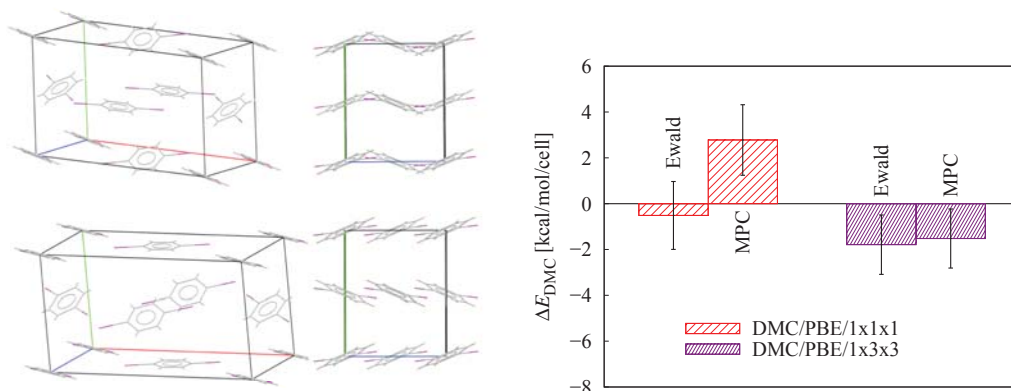


図 1: (左パネル) p-DIB 分子結晶：上段が α 相、下段が β 相の結晶構造 (単位胞) を示す。(右パネル) $1 \times 1 \times 1$ 、及び、 $1 \times 3 \times 3$ の 2 つのシミュレーション・セルに対する、DMC 計算で得られた結晶多形のエネルギー差 $\Delta E = E(\alpha) - E(\beta)$ 。各セルサイズにつき、Ewald 法と MPC 法による 2 つの異なる相互作用の取扱いの結果を示している。

参考文献

- Bernstein, J. *Polymorphism in Molecular Crystals*; Oxford University Press: New York, 2002.
- Brillante, A.; Della Valle, R. G.; Farina, L.; Venuti, E.; Cavazzoni, C.; Emerson, A. P. J.; Syassen, K. *J. Am. Chem. Soc.* **2005**, *127*, 3038-43.

3. R. J. Needs, M. D. Towler, N. D. Drummond, P. Lopez Rvos, *J. Phys.: Condens. Matter* **2010**, *22*, 023201.
4. Hongo, K.; Cuong, N. T.; Maezono, R. *J. Chem. Theory Comput.* **2013**, *9*, 1081-1086.
5. Watson, M. A.; Hongo, K.; Iitaka, T.; Aspuru-Guzik, A. *Advances in Quantum Monte Carlo*; Chapter 10, pp 101-117.
6. Kwee,H.;Zhang,S.;Krakauer,H. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, *100*, 126404.
7. Drummond, N. D.; Needs, R. J.; Sorouri, A.; Foulkes, W. M. C. *Phys. Rev. B* **2008**, *78*, 125106.

研究業績

1. Kenta Hongo, Ryo Maezono, “Quantum Monte Carlo study of finite size effects in para-diodobenzene molecular crystals”, QSCP IIIV 2013, 11/30/2013-12/07/2013, Paraty, Rio de Janeiro, Brazil (International conference; keynote speech).
2. Kenta Hongo, “Finite size effects in quantum Monte Carlo simulation of para-diodobenzene”, Quantum Monte Carlo in the Apuan Alps VIII, 07/26/2013-08/04/2013, TTI, Tuscany, Italy (International conference; invited talk).
3. 本郷研太, 前園涼, “量子モンテカルロ法による 1,4-ジヨードベンゼン分子結晶多形予測”, 第7回分子科学討論会, 2013年8月24-27日, 京都テルサ, 京都 (国内学会; 口頭発表 4E18).

金属ナノワイヤ間の分散力相互作用における特異な非加算性寄与の解明

Anomalous non-additive dispersion interactions in systems of three one-dimensional wires

前園涼

Ryo Maezono

北陸先端科学技術大学院大学・情報科学研究科

School of Information Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology,
Nomi Ishikawa 923-1292

3本のワイヤ間に作用する分散力相互作用を取扱い、そこでの非加算性寄与について解析を行った[1]。1次元ワイヤは、「甲、水素原子鎖」、「乙、1次元電子ガス」としてモデル化し、甲については、SAPT(対称性を考慮した密度汎関数法による摂動的解析)法、乙については、量子拡散モンテカルロ法を用いて解析した。分散力評価における量子多体相関について、乙を用い、恣意的近似を可能な限り排除した高い信頼性を以て定量評価する一方、甲では、ダイマー化パラメタによる系の伝導性調整や、摂動論による機構の切り分けを行い、両者を相補的に用いて、従来理論による知見との差異を明らかにした。非加算性寄与に関する従来理論としては、3双極子間相互作用を足し上げる Axilrod-Teller-Muto 理論[2,3]がワイヤ間距離 d の逆 7 乗での冪減衰を帰結するが、我々の算定では、Axilrod-Teller-Muto 型と異なり、非加算性寄与は、より長距離の冪を持つことが明らかになった。量子拡散モンテカルロ法から見積もられた減衰冪 $\delta E \sim d^{-\alpha}$ は、 $\alpha = 2.4$ ($r_s = 1$) から $\alpha = 2.9$ ($r_s = 10$) の範囲であり、これら結果は、摂動項の多重極展開[4]において最長距離項として残るチャージ・フロー一項のべきと良く一致する一方、Axilrod-Teller-Muto 理論の逆 7 乗のそれとは著しく異なる事が明らかになった。

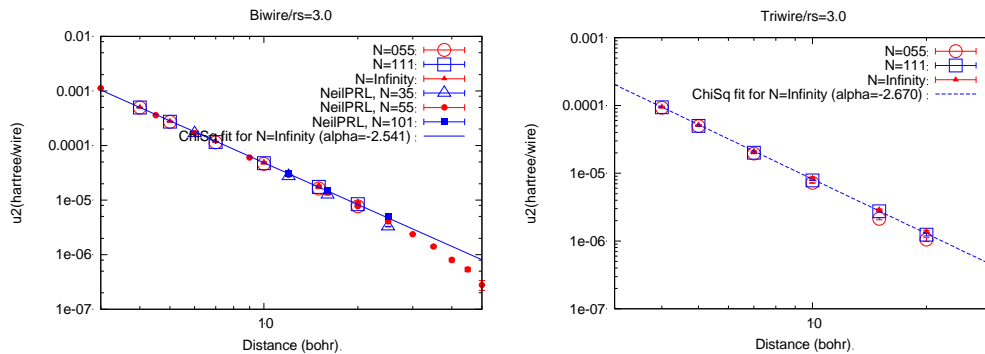


Figure. 9: Asymptotic behavior of the bi-wire interactions u_2 (left panel) and the non-additive contribution u_3 (right panel) at $r_s=3.0$

- [1] A.J. Misquitta, R. Maezono, N.D. Drummond, A.J. Stone, and R.J. Needs., to be appeared in Phys. Rev. B (2014).
- [2] P. M. Axilrod and E. Teller, J. Chem. Phys. 11, 299 (1943).
- [3] Y. Muto, Proc. Phys.-Math. Soc. Japan 17, 629 (1943).
- [4] H. C. Longuet-Higgins and L. Salem, Proc. R. Soc. A 259, 433 (1961).

使用計算機 ; Cray XC30, SGI Altix UV1000

ダイヤモンド半導体の電極形成に関する電子状態計算

Ohmic contacts on diamond semiconductor devices

北陸先端科学技術大学院大学 情報科学¹ ○ 上田 陽亮¹, 前園 涼¹

School of Information Sci., JAIST¹ ○ Tack A. Uyeda¹, Ryo Maezono¹

1 背景

高い熱伝導率と電子移動度といった優れた物性値を持つダイヤモンドは、シリコンでは不可能とされる高温・高電圧下といった過酷な環境でも使用可能なパワーデバイスとしての可能性を秘めている。ダイヤモンドの電子デバイス応用に向けて重要な課題として電極形成が挙げられるが、特にダイヤモンド半導体はパワー半導体としての応用が期待されるため、電極には良質な電気特性以外にも高い耐剥離性が要求される。

2 手法

本研究では、ダイヤモンド半導体電極を対象に「電気伝導性」及び「耐剥離性」を密度汎関数法によって評価した。耐剥離性の評価には電極金属に関する界面凝集エネルギー値

$$E_{\text{coh}}(x) = \frac{1}{2} \left\{ E_{\text{slab}}(x) - \left(E_{\text{parent, surf}} + 2 \cdot E_{\text{atom}}(x) \right) \right\}$$

を用いた。電気伝導性に関しては、界面での電気二重層の発現に呼応する、状態密度図に見られるギャップ内孤立ピークの有無をもって評価を行った。電極

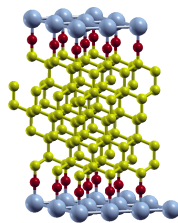


Fig 1: Model of diamond-metal system. Yellow, red and blue balls are carbon, termination elements and metals, respectively.

金属種にはチタン、タンタル、バナジウム、金、パラジウムを候補として評価した。同時に電極として最適な表面終端元素の探索も行った。

3 結果

物質トレンド比較において、計算条件を注意深く検討した結果、先行研究とは異なり、酸素終端ダイヤモンドとタンタル電極が最も深い凝集をもつオーム性接合を与える事が明らかになった。

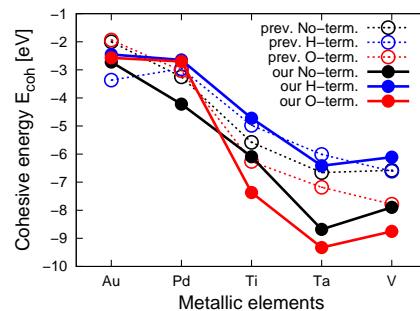


Fig 2: Surface cohesive energies of metal sheets on diamond (111) surface. Dotted lines are taken from a previous study. Our results (solid lines) show that Ta sheet on oxygen terminated diamond gives the most stable cohesion.

4 研究業績

- (1) 「ダイヤモンド半導体の電極形成に関する理論的研究」, 上田陽亮, 計算材料科学と数学の協働によるスマート材料デザイン手法の探索, 東北大学, 2013年3月.
- (2) "Ohmic contacts on diamond semiconductor devices", Tack A. Uyeda, Quantum Monte Carlo in the Apuan Alps VIII, The Towler Institute, Italy, 2013/7/30.
- (3) "Ohmic contacts on diamond semi-conductor devices", Tack A. Uyeda et.al., XVIIIth Int. Workshop on Quantum System in Chem., Phys. and Biology, Paraty, Brazil, 2013/12/13.

メモリ階層対応ダイナミックコンパイルーション技術の研究開発

情報社会基盤研究センター 佐藤幸紀
使用計算機 pcc, altix, vsmp

JAIST の佐藤グループでは JST CREST 「ポストペタスケール時代のメモリ階層の深化に対応するソフトウェア技術」(研究領域「ポストペタスケール高性能計算に資するシステムソフトウェア技術の創出」)の支援を受けて「メモリ階層対応ダイナミックコンパイルーション技術の研究開発」として、メモリ階層や異種メモリのパラメータの相違をアプリケーションのデータ参照局所性に最大限マッピングするメモリ階層対応ダイナミックコンパイルーション技術を開発し、メモリ階層チューニングを自動/半自動で行うダイナミックコンパイラツールチェーンとして確立することを目指して研究開発を進めている。

2013 年度は、ループ階層構造を実行時に透過的に抽出する機構[6]と連携するメモリ局所性プロファイラ Exana とメモリ性能シミュレータの開発に加えて、これら 2 つの結果を入力としてコード最適化を行う単一命令セット環境における実行時バイナリ変換システムの基本設計を行い、その構成要素について概念実証を行うことについて重点的に取り組んだ。

メモリ局所性プロファイラに関しては、ワーキングデータセットを測定する区間を特定のループにおける特定のイテレーション数にて指定できるインターフェースの実装[5]や、ワーキングデータセットの時間的変化を観測する機能を実装[1]し、ユーザから利用できるような仕組みを整えた。加えて、アプリケーションの要求するメモリバンド幅の指標として実行時の命令レベルの BF 値を測定する機構を実装すると同時に、ハードウェアの持つパフォーマンスカウンタから DRAM へのリクエスト数と浮動小数点命令の実行数を測定し実測レベルの BF 値の算出方法を確立した。また、コード最適化計画を効果的に作成するために実アプリケーションを手動でチューニングする手法の調査とその再現および高度化を行った。具体的には、CREST 藤澤チームと連携してグラフ解析処理のベンチマークである Graph500 のメモリアロケーションや局所性向上を狙うチューニング手法の適用[2]を行った。本チューニングを実施したコードを Altix にて評価したところ、2013 年 11 月の Graph500 にて 50 位にランクする性能であった。電力あたりの性能の観点で競われる Green Graph 500 においては、BigData 部門で 6 位にランクインされた。これらの結果より、JAIST で稼働しているマシンにより大規模なメモリを効率的に処理できることを実証した。なお、50 位にランクインした Graph500 においては、単一の OS が稼働するシングルノードのシステムでは最高位であった。

単一命令セット環境における実行時バイナリ変換に基づくコード変換機構の開発においては、

コード最適化計画が出力する最適化を実際のコードに透過的に行うための手段を提供することを目指し、実行時バイナリ変換により本機構を実装する方法の Proof-of-Concept 実装を行い、その基礎的な評価を行った[3][4]。

研究業績等

- [1] 佐藤幸紀. メモリ階層対応ダイナミックコンパイル機構の動作原理とコードプロファイリング. 情報処理学会第55回プログラミング・シンポジウム, 伊東市, 2014年1月.
- [2] Yuichiro Yasui, Katsuki Fujisawa and Yukinori Sato. Fast and Energy-efficient Breadth-first Search on a single NUMA system. In Proceedings of International Supercomputing Conference 2014 (ISC'14). June. 2014 (accepted).
- [3] 佐藤幸紀. バイナリ変換による実行駆動型アプリケーションプロファイリングとそのチューニングへの応用. 自動チューニング研究会オープンアカデミックセッション, 東京大学, 2013年10月16日.
- [4] Yukinori Sato. Architecting Dynamic Compilation Mechanisms for Transparent Performance Tuning of Data Locality in Memory Subsystem. The International Workshop on Innovative Architecture for Future Generation High-Performance Processors and Systems (IWIA) 2014, Hawaii, USA, Mar. 19, 2014.
- [5] Yukinori Sato, Hiroko Midorikawa, and Toshio Endo. Identifying working data set of particular loop iterations for dynamic performance tuning. In 6th Workshop on Architectural and Microarchitectural Support for Binary Translation (AMAS-BT2013). Held in conjunction with the 40th Int'l Symposium on Computer Architecture (ISCA-40), Tel-Aviv, Israel, pp. 1-6, Jun. 24, 2013.
- [6] Yukinori Sato, Yasushi Inoguchi, Tadao Nakamura. Identifying Program Loop Nesting Structures during Execution of Machine Code. IEICE Transaction on Information and Systems, Vol.E97-D,No.9,Sep. 2014. (In Printing)

階層メモリアクセスパターン解析ツールの研究開発

情報社会基盤研究センター

産学官連携研究員 松原裕貴

使用計算機 SGI Altix UV1000

高性能計算機分野のアプリケーションでは多くのメモリアクセスが発生し、メモリウォールの観点からメモリアクセスの効率化を実現することが実行時間の短縮を実現する鍵となると考えられる。このため、メモリ階層や異種メモリを意識した自動/半自動チューニングの実現を目指したツールの開発を行っており、本研究ではその前段階となるメモリアクセスパターン解析ツールの開発を行っている。実駆動型アプリケーション解析ツール **Exana** から得られるメモリトレースからメモリアクセス命令毎にシーケンシャルやストライドといった基底パターン、更にループ処理で生じるようなアクセスをオンラインで検知可能なアルゴリズムの提案・実装を行い、メモリ局所性等の判断に利用可能な一定のルールに従ってモデル化した情報や分類等の提示を行う。

本ツールを利用し、ステンシル計算を行う姫野ベンチマークのメモリアクセストレースの特定ループの解析を行った結果、トレースデータに対してモデル化後のデータ数は **95%** の圧縮率を達成しており、膨大なメモリトレースからどのような特徴のアクセスが発生したかプログラムに対してモデル化によりわかりやすく示すことが可能となり、圧縮されたデータの利用により自動/半自動チューニングの実現時にパフォーマンスの向上が期待できる。また、基底パターンで表現出来ないより複雑なアクセスパターンが確認されおり、オフライ処理の実装となるが基底パターンを **ID** に変換することによりアクセスパターンをメモリトレースの様に再表現することで同様のモデル化処理が再帰的に可能となり、テンポラルブロッキングが適用された姫野ベンチマークのようなより複雑なアクセスパターンが発生する場合でも階層的な表現によりモデル化することができるよう改良が進められている。

● 研究業績

1. 松原裕貴, 佐藤幸紀, "メモリトレース解析によるアクセスパターンのモデル化", 並列/分散/協調処理に関するサマー・ワークショップ (SWoPP 北九州 2013)
2. 松原裕貴, 佐藤幸紀, "メモリ階層の深化に対応するメモリアクセス解析ツール", ハイパフォーマンスコンピューティングと計算科学シンポジウム (HPCS2014 ポスター論文)

広帯域無線通信における通信環境変化時の堅牢性向上を 目指したチャンネル推定技法の検討

情報科学研究科 高野泰洋
使用計算機 pcc

研究概要

スマートフォン等の端末が普及するにつれ、無線通信は、高速化と共に、更なる堅牢性向上が要望されている。無線通信では通信中にチャンネルが変化するため、チャンネル推定が必須である。チャンネル推定の性能向上のために、漸近的に **Cramér-Rao bound (CRB)** を達成可能な **Multi-burst (MB)** チャンネル推定法を利用することができる。**MB** チャンネル推定法は、**Minimum mean square error (MMSE)** 規範に基づいているため、現時刻から一定期間の過去の時刻までの観測信号が統計的に同じ性質を持つことを想定している。この想定は、例えば、音声通話などの連続的な通信には当てはまる。しかし、**Web** ブラウジングなどのデータ通信では、断続的な伝送が行われることから、上記の想定は必ずしも妥当ではない。従って、通信環境変化時、**MB** チャンネル推定法は通信環境変化の追従に失敗し、トラッキングエラーを引き起こす可能性がある。

本研究は、**MMSE** 規範に ℓ_1 ノルム制約を付与することでトラッキングエラーの改善を検討する。 ℓ_1 ノルム制約付き **MMSE** 問題は貪欲法により解を求められることが知られている。貪欲法に基づくアルゴリズムは、一般的に高演算量を要するが、**pcc** 計算機の並列演算を利用して効率的にシミュレーション評価を実施中である。さらに、貪欲法による評価結果を性能リファレンスとして、演算量を削減した現実的なアルゴリズムを検討していく。

エキスパートの大局観のモデル化に向けた評価指標の推定

情報科学研究科 竹内 章

使用計算機

vSMP

研究概要

コンピュータにとって、ある目的関数に基づき最適化することは比較的容易であるが、様々な目的に基づき総合的に判断する能力、将来を見越した方針や構想力などを実現させるのは難しい。また、人間は専門的な経験を積み重ねることにより、判断する能力や感覚を身につけることができる。経験により判断能力や感覚が磨かれたエキスパートの思考を解明することによって、これまで機械やコンピュータにさせることが難しかったことを実現できるようになることが期待される。

本研究では、将棋を対象として、大局観と呼ばれる長期的かつ全体的な視野に基づく判断能力のモデル化を目指して検討する。近年、コンピュータ将棋の進歩は目覚ましく、勝負という観点においてはトッププロに迫るところまで来ている。しかしながら、観る人を感動させる棋譜を残すとか、構想力や創造力といったコンピュータが及ばない領域も存在する。プロ棋士の対局においては、形勢に優劣がついても将来を見越した逆転の可能性がある難解な局面となっており、勝ち負けが明解な局面は終局近くにしか表われない。これらのことから、経験を積み重ねることによって、局面の難解さや芸術性といった感覚を身につけていると考えられる。

検討手順として、まず、棋譜上に表われる各局面からの指し手の読みをコンピュータに探索させることによって観測されるデータから、新たな評価指標を提案する。この指標を用いたモデル化を考え、多数の棋譜を用いてそのモデルパラメータを推定する方法を検討する。棋譜は、2人のプロ棋士が一日かけて思考し、作り上げられたものである。特別な対局においては、2日かけて作られた棋譜もある。プロ棋士の大局観をモデル化するためには、コンピュータにも同等の思考をさせて評価指標を算出する必要がある。また、少なくとも数百局の棋譜を用いて統計的に分析するため、並列計算機が必要とされる。

Analyzing the Impact of Mitigation Strategies on the Spread of a Virus

Thanh Dang Nguyen, François Bonnet, and Xavier Défago
School of Information Science
Japan Advanced Institute of Science and Technology (JAIST)
1-1 Asahidai, Nomi, Ishikawa Prefecture 923-1292, Japan
+81 761-51-1111 {thanh, f-bonnet, defago}@jaist.ac.jp

Abstract—The *spread of a virus and the containment of the spread* have been widely studied in the literature. These two problems can be generalized in an abstraction of a two-side problem in which one side tries to spread the infection as much as possible while the other side tries to detect and limit the spread. Three parameters play an important role: (1) the probability of a successful infection, (2) the probability of a successful detection, and (3) the topology of the network. The existing studies consider both sides of this problem separately. They either study the spread without detection or study the containment when detection is perfectly accurate.

A natural question that arises when attack detection may possibly be inaccurate, is whether it is possible to contain the spread and, if it is, then under what conditions?

This paper studies the two-side problem with defense strategies that can be grouped into two main classes; (1) *Killing strategies*, where a node decides to sacrifice itself and possibly deactivate some of its neighbors, and (2) *Cutting strategies*, where a node decides to cut or deactivate some communication links. Both classes aim at containing the epidemic by disconnecting infected nodes from healthy ones.

Keywords—Containment, epidemic, simulation, topological graphs, virus spread.

I. TOPOLOGIES AND SIMULATION SETTINGS

A. Topologies

This paper focuses on three classical graph topologies; square torus, unit-disk graph, and one kind of small-world. The first one is a regular topology which allows to understand more easily the behaviors of different strategies. As explained later, this regularity allows us to find an equivalence with percolation theory, but these graphs are not so interesting from a practical point of view.

Therefore we also study the two other topologies since they represent more realistic networks. Unit-disk graphs are typically used to model ad-hoc wireless networks, while small-world topologies can be used to model some types of social networks. In both cases, the graphs are generated randomly using different parameters (such as the number of nodes, the number of links, ...).

We define below more precisely each of these graphs.

1) *Regular square torus*: We consider two-dimensional tori of size $m \times m$, with m^2 nodes. A torus corresponds to an undirected square grid where the left side is connected to the right side and, similarly, the top and bottom sides are also

connected. Contrary to a grid, the torus exhibits a uniform structure “without sides.”

2) *Unit-disk graph*: We consider two-dimensional random unit-disk graphs $UDG(n, x \times y)$. A set of n nodes are deployed uniformly randomly on an $x \times y$ rectangle area. There is a communication link between two nodes if they are at Euclidean distance at most 1. Let Δ be the average degree of a $UDG(n, x \times y)$, we use the notation $G_{UDG}(n, \Delta)$ to refer to a unit disk graph having average degree Δ . Parameters are chosen such that the generated graphs are connected with high probability.

3) *Small-world graph*: We consider small-world graphs that are generated from unit-disk graphs. Given a unit-disk graph $G_{UDG}(n, \Delta)$, we add ℓ random edges for each node. These “long edges” are chosen uniformly randomly. We use the notation $SW(n, \Delta, \ell)$ to represent such generated small-world.

B. Simulation settings

We wrote a discrete simulation in C++ to study our containment strategies. We measure the number of infected, sacrificed, and sane nodes at the end of the spread. The number of nodes varies from 100 to 90,000. For the two random topologies, other parameters (density, number of long links) also vary. The probability of infection p and the probability of detection q are changed from 0 to 1 by 0.01 steps. The results are stated at the 95% confidence interval level for absolute value. In the critical area of the phase transition, we repeat the simulation until the confidence interval is smaller than 2% of the value or 20000 times of running time for each 0.01 steps.

II. PUBLICATION LIST

- T.D. Nguyen, F. Bonnet, X. Défago, “Analyzing the Impact of Mitigation Strategies on the Spread of a Virus”, Submitted paper in ICCCN (IC3N) 2014.

3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバ利用研究

OpenFFT: An Open-Source Package for 3-D FFTs with Minimal Volume of Communication

Truong Vinh Truong Duy

ISSP, The University of Tokyo

Currently stationed at Ozaki Laboratory, RCSS, JAIST

17 March 2014

General Information

Machine: Cray XC30.

Codes: OpenFFT [1] and OpenMX [2].

Typical computational size: About two hours and 256 processors.

Abstract

We develop OpenFFT [1], which has its origin in OpenMX [2], with a decomposition method for the parallelization of multi-dimensional FFTs possessing two distinguishing features: adaptive decomposition and transpose order awareness for exploiting data reuse when transposing to achieve minimal communication volumes [3,4]. Based on a row-wise decomposition that translates the multi-dimensional data into one-dimensional data for equally allocating to the processes, our method can adaptively decompose the data in the lowest possible dimensions to reduce communication volume in the first place, differently from previous works that have pre-defined dimensions of decomposition. Also, this decomposition offers plenty of orders in data transpose, and different order results in different volumes of communication. By analyzing all possible cases, we find out the best transpose orders that can reuse data in transpose with minimal communication volumes for 3-D, 4-D, and 5-D FFTs. We implement the method in our OpenFFT package for 3-D FFTs, and numerical results show good performance and scalability of our package in comparison with other packages such as 2DECOMP&FFT, FFTW3 MPI version, and MKL Cluster FFT.

References

[1] OpenFFT: An Open Source Parallel Library for 3-D FFTs, <http://www.openmx-square.org/openfft/>

[2] OpenMX: Open source package for Material eXplorer, <http://www.openmx-square.org/>

[3] T.V.T. Duy and T. Ozaki, "A three-dimensional domain decomposition method for large-scale DFT electronic structure calculations", *Computer Physics Communications*, Vol. 185, Issue 3, pp. 777-789, 2014.

[4] T.V.T. Duy and T. Ozaki, "A decomposition method with minimum communication amount for parallelization of multi-dimensional FFTs", *Computer Physics Communications*, Vol. 185, Issue 1, pp. 153-164, 2014.

不均一系 Ziegler-Natta 重合用ドナー化合物の非経験的設計への試み
 –ジアルキルジアルコキシシランの構造性能相関–
 (マテリアルサイエンス研究科 准教授) 谷池 俊明

背景

近年の計算科学の発展は固体触媒に関する現実的なシミュレーションを可能にした。一方で、第一原理計算を主導とした固体触媒あるいは触媒反応の開発は未だに大きな挑戦である。不均一系 Ziegler-Natta 触媒における計算科学では、ドナーと呼ばれるルイス塩基化合物の開発がターゲットとされてきたが、これまでに提唱されたモデルは、ドナーに関する多様な実験結果を同時に説明可能なほどに高精度ではなかった。

近年、我々は実験結果に裏打ちされた密度汎関数計算によって、種々の実験結果を統一的に説明可能な共吸着モデル(Fig. 1)を提唱した^{1,2}。昨年、このモデルを更に高精度化し、遂にはモノエステル系ドナーを用いた Ziegler-Natta 触媒の性能を定量的に再現することに初めて成功した。本年は、工業ドナーとして広く使用されているジアルキルジアルコキシシラン類の分子構造とドナーとしての性能に関する構造性能相関の解明を行った。

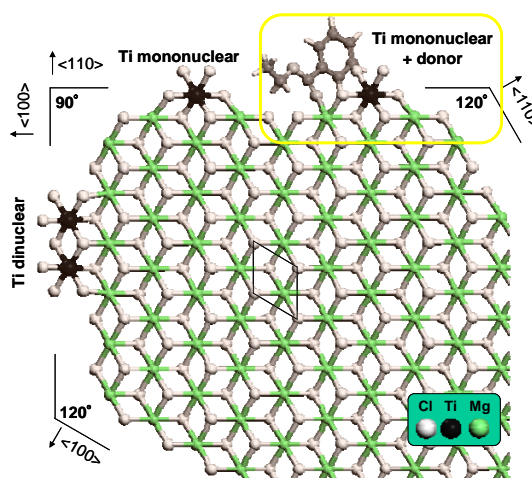


Fig. 1. Active site models in MgCl_2 -supported Ziegler-Natta catalysts. The “coadsorption model” is shown in the frame.

計算方法

密度汎関数計算には DMol3 を使い、主に PCC で実行した。交換相関汎関数として GGA PBE を、基底関数には DNP 及び有効殻ポテンシャルを用いた。 MgCl_2 (110)・(100)表面はスラブ法による無限遠表面として表し、(110)表面には 6 原子層の $p(2 \times 2)$ のユニットセルを、(100)表面には 14 原子層の $p(4 \times 1)$ のユニットセルを使用した。このような(110)・(100)平坦表面を出発点として、 MgCl_2 単位の加減によって各表面上にステップやエッジ構造をモデリングし

た。

Fig. 2 に示されるようなストップフロー重合法を用いて、様々な構造のジアルキルジメトキシシランを外部ドナーとして使用した際の触媒の活性、及び、立体特異性 (*o*-ジクロロベンゼン可溶分として) を求めた。

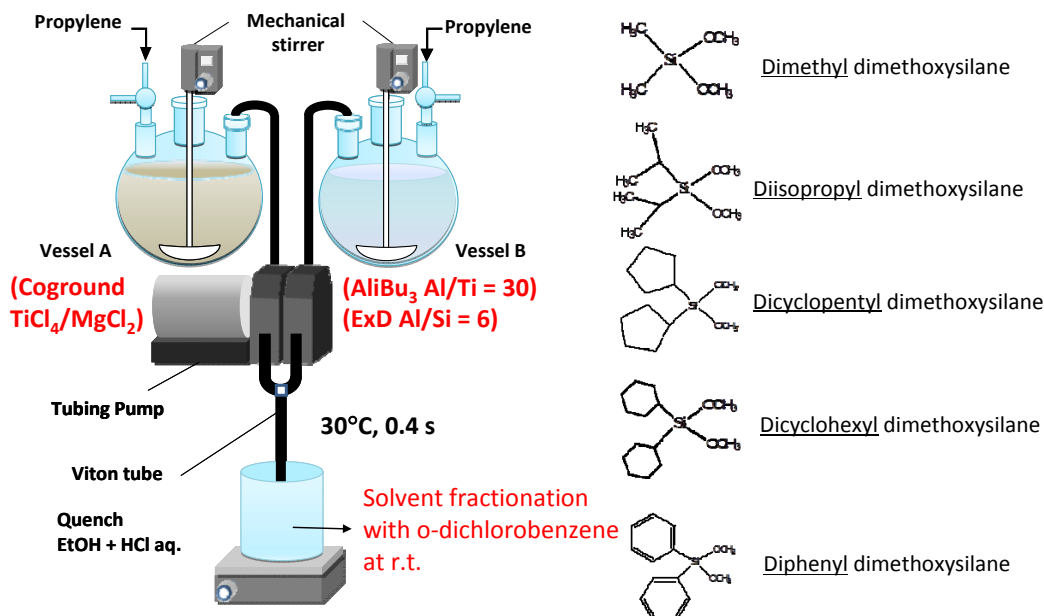


Fig. 2 Stopped-flow polymerization with a variety of dialkyldimethoxysilane

成果

上述のストップフロー重合において、各種ジアルキルジメトキシシランを添加した際の触媒活性は、**dicyclopentyl > diisopropyl > dimethyl > dicyclohexyl > diphenyl** の順となった。計算によって求めた様々な特性との相関を検討したところ、ジアルキルジメトキシシランの活性点近傍への吸着エネルギーが実験より得られた活性と良い相関を示すことがわかった (Fig. 3)。これは、強く吸着するドナーほど有機アルミニウムによる活性点の失活を抑制できるという観点から理解される。一方で dicyclohexyl が類似の dicyclopentyl と比較して非常に低い活性を示すことは、物理化学的な観点からも計算化学的な観点からも説明できなかった。考慮されていない要因が存在するものと推測された。

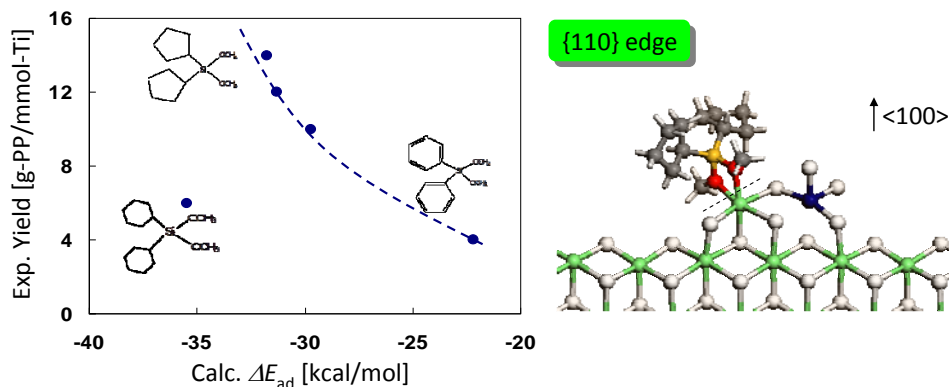


Fig. 3. Relationship between the experimental polymer yield and the calculated adsorption energy of dialkyldimethoxysilane

Fig. 4に示されるように、実験より得られたポリマーの立体規則性は、前述の共吸着モデルより得られた活性点の立体特異性と非常に良く相関していた。ジアルキルの C_{α} 位の分岐の有無とその詳細がジアルキルジメトキシシラン類の立体制御能を決定付ける因子であることが明らかとなった。

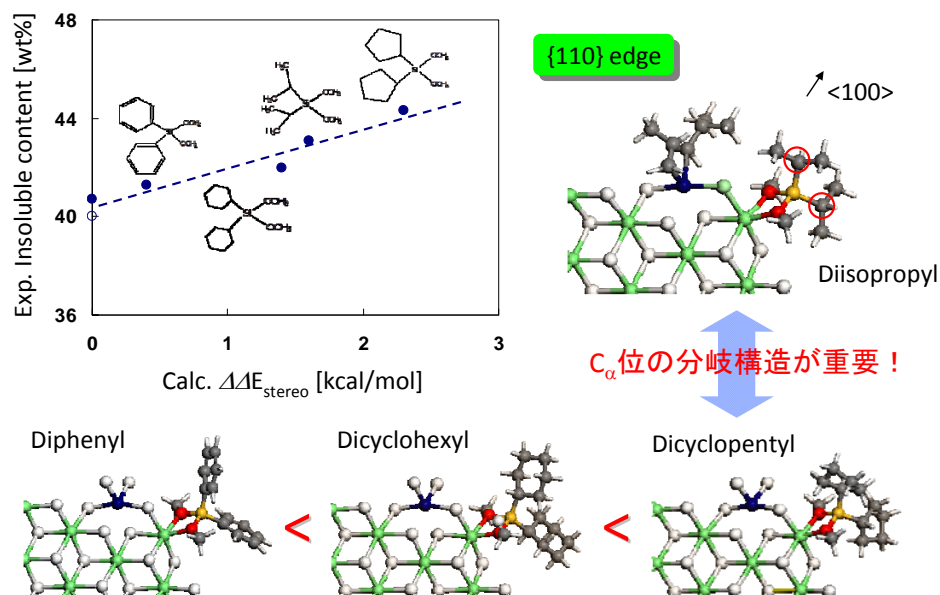


Fig. 4. Relationship between the experimental polymer stereoregularity and the calculated stereospecificity of active sites coadsorbed with dialkyldimethoxysilane

以上、本研究ではモノエステル系ドナーに引き続き、工業的に広く用いられるジアルキルジアルコキシシラン類の分子構造とドナーとしての性能に関する構造性能相関を解明することに初めて成功した。

文献

- 1) T. Taniike, M. Terano, *Macromol. Rapid Commun.* **2007**, 28, 1918.
- 2) T. Taniike, M. Terano, *J. Catal.* **2012**, 293, 39.

主な発表

1. Ziegler-Natta 触媒用ドナー化合物の非経験的設計への試み, 谷池 俊明, 寺野 稔, 第3回ポリオレフィン研究会若手会, 能美, 2013年1月24日-25日.
2. Ziegler-Natta プロピレン重合用ジエステル系内部ドナーに関する構造性能相関の解明, 谷池 俊明, 寺野 稔, 第62回 高分子学会年次大会, 京都, 2013年5月29-31日.
3. 計算化学を利用した Ziegler-Natta 触媒のオレフィン重合性能の定量的予測, 谷池 俊明, 寺野 稔, 第5回 岩澤コンファレンス「サステイナブル社会のための最先端触媒化学・表面科学」, 東京, 2013年10月22日.
4. 不均一系 Ziegler-Natta 触媒の非経験的設計に向けて～ドナーに関する構造性能相関, 谷池 俊明, 寺野 稔, 第43回石油・石油化学討論会, 北九州, 2013年11月14日-15日, 依頼.

MaterialsStudio+COSMOtherm による有機化合物の物性予測

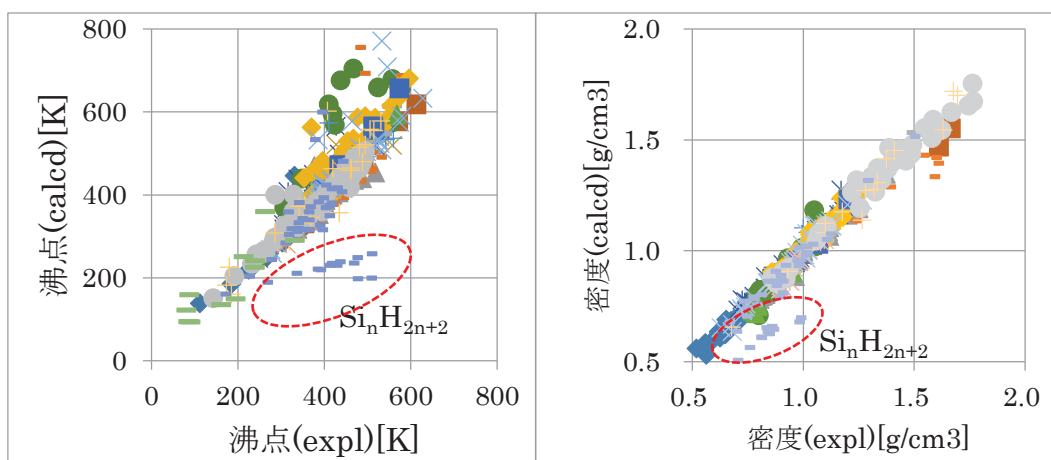
マテリアルサイエンス研究科 下田 研 高岸秀行 (指導: 深田和宏)

使用計算機: Appro PC Cluster、使用ソフトウェア: Materials Studio、COSMOtherm

沸点、粘度、溶解度などの物性値は、有機化合物の合成、塗布、成膜といった実験を行う上では極めて重要な指標である。ただ、これらを実測するには、ある程度の量の純粋な物質を準備する必要があり、これは必ずしも容易ではない。そこで今回、計算機上で密度、粘度、沸点、2成分の共沸温度、固体の溶解度などを算出することを試みた。

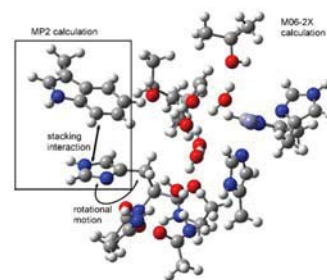
まず Materials Studio 6.0 (Accelrys 社) を用いて約 500 種類の有機化合物の構造最適化を行い、さらに表面電荷密度分布データファイルを出力した。ここでは汎関数に PBE および VWN-BP を、基底関数に DNP4.4 を用いた。次に、得られた表面電化密度分布を COSMOtherm ver. C30 (COSMOlogic 社) に読み込ませて、各種物性値を計算した。

炭化水素系化合物に関してはおおむね良好な精度で実験値を再現できた。細かく見ると、たとえば benzene や cyclohexane などは特に再現が良く、一方で n-hexane などのフレキシブルな分子は外れやすい傾向が見られた。置換基の影響は意外に少なく、水素結合を作りやすいアルコール類やアミン類に関しても、それほど大きく外れることは少なかった。ずれの主な原因は配座異性体の影響だと考えられる。屈曲性分子は室温程度でも自在に変形するため多数の配座異性体の混合物として存在しているが、計算に用いたのは最安定構造のみである。現状の結果でも実用可能な水準ではあるが、さらに精度向上を期待するならば、複数の異性体構造を盛り込む必要があると考えられる。一方で水素化ケイ素化合物 ($\text{Si}_n\text{H}_{2n+2}$) は常に実測値よりも低めの数値が算出された。この理由は、補正係数が欠けているためと思われる (COSMOtherm は実験値を元に作成した補正係数を内部に保有している)。ただ、実験値とのずれは一定の傾向を持っているので、あらかじめ補正係数を算出しておけば、実用に耐える値が得られると考えられる。



以上のように、Materials Studio と COSMOtherm を用いた簡単な操作で、実験の参考にできる水準の物性値予測が可能であることが確認できた。

【概要】近年、生命現象を解き明かすための様々な手法が概ね確立され、一つの生体高分子をあらゆる角度から総合的に解析することが可能となった。そこでは、ある一つの手法が他の手法の不足を補う又は相補することによって、これまでおぼろげにしか捉えることが出来なかった対象をより詳細に特徴づけることが出来る。例えば、ある一つの酵素蛋白質に対して、X線結晶構造解析法によって得ることが出来ない水素の構造情報をNMR法によって定量的に観察し、さらに、そこでより判然とした活性発現や阻害の機構を計算科学手法によって得られる理論値から検証するといった具合で、揺るぎない像を描出するというものである。生物化学や分子生物学といった分野の手法がそれら手法の礎となり、全体として生体触媒科学と呼ばれる分野が構築される。その中で相互に関連した情報の集積が合理的な創薬や現在我々が直面する環境に関する問題をより容易に解決する方向に導くと期待される。実際、報告者は、二酸化炭素の水和反応を触媒する炭酸脱水酵素(CA)にフォーカスを絞り、実験的に提唱を行った触媒機構に基づいて、新たな創薬手法や二酸化炭素削減に係る仕組みを開発してきた。そこでは、あらゆる側面において、手持ちのパーソナルコンピュータで扱うことが不可能な程大きな規模の系に対する迅速な理論的アプローチを本学共有計算機資源が叶えている。具体的に、本年度、CA活性部位に存在する2つの解離基(亜鉛結合水とイミダゾール基)の間に架かる水素結合ネットワークをM06-2X及びMP2法を用いた量子化学計算手法(Gaussian09)によって解析を進めた(図)。その結果、亜鉛結合水と亜鉛結合ヒドロキシド、イミダゾール基の三態(2つの互変異性体と正に荷電したフォーム)とその回転、そしてそのイミダゾールと他の芳香環(インドール基)との間の相互作用を考慮することによって、2つの芳香環の π -stackingの影響下そのイミダゾール基の回転が水素結合を引き千切るために必要とされるエネルギーの値を初めて理論的に算出するに至った。これによって、二酸化炭素水和反応に先んじる水の解離によって生成されるプロトンが放出される経路の全貌がさらに露となった。以下に、本研究によって得られた本年度の成果を記載する。



【本年度の成果リスト】

国際学会(1) 国内学会(2) 産学連携(3-4) 学術論文(5) 科研費(6) 共同研究費(7)

1. π -stacking Interaction between Heterocyclic Rings in a Reaction Field of Biological System, Muhamad KOYIMATU, Hideto SHIMAHARA, Kimikazu SUGIMORI, Kazutomo KAWAGUCHI, Hiroaki SAITO, and Hidemi NAGAO, The 12th Asia Pacific Physics Conference (APPC12), Chiba, Jul 14-19, 2013
2. Chemical Exchange between Two Conformations within His64 in a Mutant of Carbonic Anhydrase Is Sufficiently Slow on the NMR Timescale 炭酸脱水酵素のある変異体の His64 の2つの配向の間の化学交換はNMR時間軸上十分遅い, 島原 秀登, 第51回日本生物物理学会年会, 京都, 2013. 10. 28-30
3. 炭酸脱水酵素と植物に関する研究, 島原秀登, 産学意見交換会, 富山, 2014. 03. 03
4. 炭酸脱水酵素を用いた固体炭酸の作成に関する研究, 島原秀登, 産学意見交換会, 石川, 2013. 10. 11
5. π -stacking Interaction between Heterocyclic Rings in a Reaction Field of Biological System, Muhamad KOYIMATU, Hideto SHIMAHARA, Kimikazu SUGIMORI, Kazutomo KAWAGUCHI, Hiroaki SAITO, and Hidemi NAGAO, The 12th Asia Pacific Physics Conference of the Association of Asia Pacific Physical Societies, accepted, 4 pages, 2013
6. 科学研究費採択「炭酸脱水酵素を利用した選択的二酸化炭素捕捉水和触媒の開発と固体炭酸への転換」研究期間：2012年4月1日～2015年3月31日(予定) 研究分野：環境関連化学 研究種目：基盤研究(C) 島原秀登
7. H25 金大と JAIST との教育研究活動の支援採択「金属含有蛋白質のプロトン輸送の機構解明に係る共同研究グループ」研究期間：2013年4月1日～2014年3月31日(予定) 金大-長尾秀実, Muhamad Koyimatu, 杉森公一, JAIST-島原秀登

共有計算サーバー使用成果報告書

マテリアルサイエンス研究科

水田研究室

今村知典

使用計算機 SGI Altix UV1000(altix)

研究成果の概要

グラフェンは表面对体積比率が非常に高いため、表面への分子吸着による電気特性変化が大きく、超高感度ガスセンサとしての応用が期待されている。本研究では、単一 CO₂ ガス分子を吸着させたアームチェア型グラフェンナノリボン(AGNR)に対して、第一原理計算を行い、CO₂ ガス分子と AGNR 間の電荷移動の詳細を解析した。

Materials Studio を用いて単一 CO₂ ガス分子を吸着させた AGNR モデルを作製し、OpenMX を用いて構造最適化を行った。この構造最適化の計算 Altix を用いて計算した。その結果、CO₂ と AGNR の距離が 3.01 Å の位置で安定し、吸着エネルギーは -0.10939 eV と、とても小さいことが分かった。このことより、AGNR と CO₂ ガス分子との吸着がとても弱く、物理吸着を示していることが判明した。また、Altix を用いて電荷移動計算を行った。電荷移動解析には Mulliken population 解析によって計算した。分子内の各原子の電荷は、原子核の電荷から原子上の電子数を差し引くことによって見積もった。構造最適化の結果 AGNR から CO₂ ガス分子に、-0.00436 e の非常に小さい電荷移動をしている。この結果から、CO₂ ガス分子はアクセプタとして働いていることが分かった。さらに CO₂ ガス分子と AGNR 間の距離を手動で変化させ、それぞれの位置での電荷移動を求めた。その結果、3 Å を境に電荷移動が逆転した。CO₂ ガス分子と AGNR の距離が 3 Å 以上であれば電荷移動はマイナスで、アクセプタとして働く。しかし、3 Å 以下の時は、電荷移動がプラスとなり、CO₂ から AGNR に電子が移動していることを示している。CO₂ がドナーとして働いていることを意味している。このことから、CO₂ ガス分子は、距離によってアクセプタかドナーか、振る舞いに変化することが分かった。

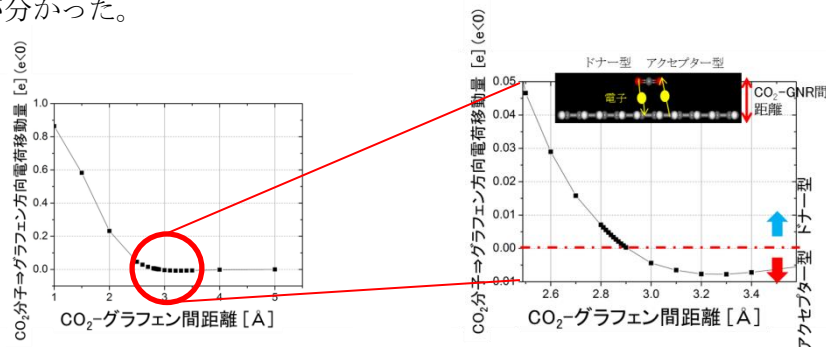


図 1 CO₂-グラフェン間距離における電荷移動量

学会発表

第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 20a-E2-8

Substrate Dependence of the Proton Transport and Oriented Structure in
Oligo[(1,2-propanediamine)-alt-(oxalic acid)] Thin Films

School of Materials Science

Yuki Nagao

Used MPC : Appro PC Cluster

The design of highly proton-conductive solid electrolytes is necessary for many applications in the field of solid-state ionics. A recent report has described anomalous proton conductivity by thin films based on oligomeric amides. Thin films (ca. 200 nm) of oligomers on SiO₂ substrate exhibit about 10-times-higher proton conductivity than their pelletized sample (thickness ca. 0.5 mm). Although the reason for this enhancement in proton conduction remains unknown, application of this phenomenon shows promise as a new strategy to produce highly proton-conductive materials. Our group's previous report described that this origin for the proton conductivity enhancement by thin film can result from structural effects such as a molecular orientation by thin film on the substrate. This report explains the substrate dependence of the proton transport property in thin films, which had different molecular-oriented structure.

Three oligo[(1,2-propanediamine)-alt-(oxalic acid)] thin films were prepared on SiO₂, R-plane sapphire, and MgO(100) substrates, and their proton conductivities were investigated. Conductivity depended on the substrate and varied from 4×10^{-3} to 1×10^{-4} S cm⁻¹ under the same conditions (80% relative humidity and 298 K). The thin films between the R-plane (1102) sapphire and MgO(100) substrates showed different molecular oriented structures. The thin film on the sapphire substrate, which shows higher proton conductivity, has a structure oriented parallel to the substrate. The molecular orientation in the thin film could be correlated with the proton-transport properties.

Density functional theory (DFT) calculations were performed for the vibration frequencies of oligomeric amide using the DMol3 package in Materials Studio v6.0.0. (Accelrys Software Inc.) The Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) function was chosen. The convergence threshold for the maximum force and maximum displacement for normal geometry optimization were respectively set to 0.004 Ha Å⁻¹ and 0.005 Å. A short chain of oligomeric amide was built as a model.

Based on the DFT calculation, the broad absorption around 1650 cm⁻¹ in the FT-IR spectrum corresponds to the amide I bands. The vibration mode corresponding to amide

groups near the end groups tends to be a higher wavenumber than the others. This result suggests that the inside (not near the end groups) amide groups in the oligomer chain have stronger hydrogen bonds. The proton conductivity exhibited higher value in the case of thin film on the sapphire substrate compared to the MgO substrate probably because of these hydrogen bonding networks.

Publication

1. Y. Nagao, "Substrate dependence of the proton transport and oriented structure in oligo[(1,2propanediamine)-alt-(oxalic acid)] thin films", *Chemistry Letters*, 42, 468 - 470 (2013).

The Report for Using Computing Facilities of JAIST

Wenhong Yang

Key laboratory of Engineering Plastics, Institute of Chemistry,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

Machines used: PCC

Program Code: Materials Studio

Molecular Modeling Studies on Polymerization Activity for Late Transition Metal Complex Pre-catalyst

Abstract: Compared with many theoretical calculations on the polymerization mechanism by ab initio or density functional theory method, there is little work related to the catalysis activity. In our previous studies, the MANCC method was developed and successfully predicted the polymerization activity for several transition metal catalysts, by using the combination of molecular mechanics and charge equilibration method. This method establishes a quantitative correlation between the effective net charge on central metal of catalyst and its experimental catalysis activity. Through this way, series of transition metal complexes were investigated and the calculated net charges were correlated with each system's catalysis activities from experiments. Results showed that in general, for former transition metal pre-catalyst, the activity decreases with the effective net charge on metal central increasing; for late transition metal system, this variation trend becomes conversed; and these two variation trends can both be present in the iron complex system. The reason for the different correlation depended on different transition metal system was supposed to be the d orbital number on central metal atom. For former transition metal system, the d orbital number is less than 5 which is the most stable state for transition metal, and then the electronic donor group may make the metal more effective to react, thus the relationship between effective net charge and activity is inverse proportion. More complex system should be investigated to verify this hypothesis. For some complex system, beside for the electronic effect, the steric effect also needs to be taken account into to explain the catalysis activity.

Publications:

1. Yang, W.; Sun, W.-H. "Simulation Modeling for Transition Metal Complex Pre-catalyst on Ethylene Polymerization", International Symposium on Catalysts and Fine Chemical 2013, Dec. 1-5, 2013, Beijing, China.
2. Yang, W.; Sun, W.-H. "Activity and mechanism of Transition Metal Complex Pre-catalyst for Ethylene Polymerization by Molecular Modeling", Asian Polyolefin Workshop 2013, Oct. 15-19, 2013, Beijing, China.

Gaussian 09 Calculations Carried Out Using Computational Facilities at JAIST

Laboratory: Matsumi

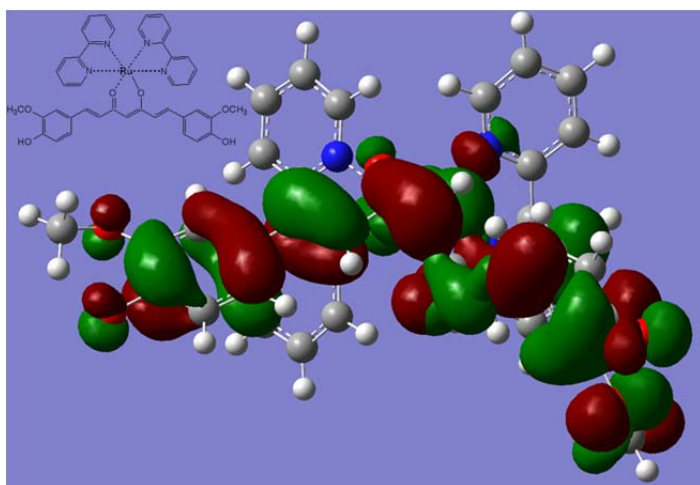
Professor: Noriyoshi Matsumi

User: Raman

Purpose of Study:

The production of renewable and non-polluting fuels by the direct conversion of solar energy into chemical energy is one of the main issues of this 21st century. Hydrogen, the fuel with the highest energy capacity per unit mass, has the potential to supplement and possibly replace fossil fuels in the next decades. Since the discovery of photocatalytic splitting of water in a cell consisting of a Pt and a TiO₂ electrode under a small electric bias, the photoassisted production of hydrogen and oxygen from water offers an extremely promising way for clean, low-cost and environmentally friendly conversion of solar into chemical energy. In this direction, Matsumi laboratory has been working vigorously in synthesizing a bio-friendly and highly efficient sensitizer for the TiO₂ semiconductor.

Generally, the sensitizers are incorporated with ruthenium ion in order to effectively separate the charge and inject the electron in to the semiconductor. Understanding, the band gap energy and the HOMO, LUMO values are of major importance for determining the efficiency of the sensitizer. Gaussian software is a powerful tool in such calculations. Matsumi laboratory has effectively utilized this software in developing a number of such sensitizers. One recent development in this angle is the synthesis of a curcumin dye. The HOMO and LUMO of the dye was calculated using Density Function Theory; B3LYP method and with basis set LanL2DZ.



The results gave an in depth understanding on the band gap separation and the energy. The synthesis of this dye was carried out successfully and was used effectively for water splitting.

Apart from this, more than 50 calculations have been carried out using computational facility at JAIST for simulating and confirming various spectra like

Raman, UV-Vis and NMR for novel compounds prepared at Matsumi Laboratory.

全学共用計算サーバ・並列計算機利用レポート

尾崎泰助 シミュレーション科学研究センター

使用計算サーバ：Cray-XC30

計算規模：128-512 コア，計算時間は最大で3日程度

研究の概要；「ノンコリニア密度汎関数法に基づく第一原理電気伝導計算手法の開発」

ノンコリニア磁気構造が発現するスパイラル磁気構造、磁壁、トンネル磁気抵抗素子などの第一原理電気伝導計算を実現するために、ノンコリニア密度汎関数法と非平衡グリーン関数法に基づく計算手法とプログラムコードを開発した。2成分スピノールにより非平衡グリーン関数を記述することで、容易に非平衡グリーン関数法にノンコリニア密度汎関数法が導入できる。またスピン軌道相互作用、LDA+U法、スピン・軌道磁気モーメント方位の制約法も同時に理論的枠組みに組み込み、広範囲な物質群の取り扱いが可能となった。とりわけ磁気モーメント方位の制約法によって、任意のノンコリニア磁気構造を持つ散乱体の電子状態を非平衡グリーン関数法によって自己無撞着に決定できるようになった。スピン磁気モーメント方位の制約は原子サイト毎に密度行列によるペナルティー関数を付加(ペナルティー関数法)することで実現された。また原子サイト毎に局所磁場を導入(局所磁場法)することで、軌道磁気モーメントの方位も自己無撞着計算の下で制御可能となった。Kohn-Shamポテンシャルへの寄与は、LDA+U法、ペナルティー関数法、局所磁場法の全てにおいて同一の非局所ポテンシャルで記述され、実装も容易である。計算によって得られたジグザグ

グラフェンナリボンのネール磁壁 (a)

構造を図 3(a)に、またこのネール磁壁を介した電子透過率を図に示す。磁壁を介した透過率はほとんど低下しておらず、コリニア計算で得られた結果と本質的に異なる結果が得られた。今後、トンネル磁気抵抗素子への応用展開を進める予定である。

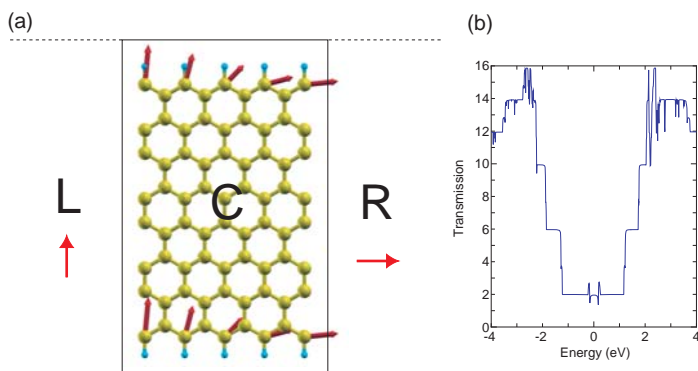


図 ネール磁壁を持つジグザググラフェンナリボンの伝導計算

学会発表：“ノンコリニア密度汎関数法に基づく第一原理電気伝導計算手法の開発”，日本物理学会 2013 年秋季大会，尾崎泰助（北陸先端大），Yang Xiao(南京航空航天大学).

大規模第一原理計算に適用可能な軌道解析手法の開発

日産自動車株式会社 総合研究所 大脇 創

使用計算機：Appro PC Cluster, Cray XC30；計算規模：1~128 プロセッサ

【概要】近年の第一原理計算では、1,000~10,000 原子サイズの大規模モデルを扱うことが一般的となった。しかしながら、そのような大規模シミュレーションの結果から目的の情報を抽出する解析作業のコストは膨大になる。例えば、第一原理 MD 計算で化学反応が確認された場合、その機構を解明するには反応に与る電子状態を詳細に解析する必要がある。しかし、その際に全系に張られた基底系に基づいて波動関数を扱うことになる（波動関数は一般的に全系に非局在化している）ため、特に大規模モデル系では電子状態解析が困難となる。

そこで我々は、大規模第一原理計算で軌道解析を効率的に行う手法を開発した。我々の手法は、局在軌道の一つである natural bond orbital (NBO) ^[1] を任意の領域で計算するものである。NBO は正規直交系の Lewis 型軌道であり、各化学結合部分に局在化しているため、特定領域内での電子状態解析に適する。これにより、大規模計算において、膨大なデータ量で記述される全系の波動関数を扱うことを回避し、局所領域における電子状態を詳細に解析することを可能とした。

【方法】NBO は Natural Atomic Orbital (NAO) ^[1] を基底とした局在軌道である。NAO は、密度行列の各原子ブロックで一般化固有値問題を解き、更に原子間で直交化を実施して得られる原子軌道であり、各原子が置かれている化学的環境が個々の NAO に反映されている。NAO は通常、フルサイズの密度行列に基づいて計算されるが、我々は昨年度、truncation 法（物質の化学的性質の大部分は局所的な原子配置によって決定されていること（電子の近視性）に基づき、注目する原子から近距離の情報からその原子上の電子状態を決定するアイデア）に基づくことで、フルサイズの密度行列の扱いを回避して NAO を計算する手法を開発した^[2]。今回は、その truncation 法に基づいて計算した NAO から NBO を構築するツールを開発し、第一原理計算プログラム OpenMX 3.7^[3] に導入した。

【実証計算】開発した NBO 計算ツールを実際の第一原理 MD シミュレーションに適用した。MD 計算は Li 金属表面と有機系電解質（プロピレンカーボネート（PC）+LiBF₄ 塩）の界面モデル（656 原子；Fig. 1）について O(N)-Krylov 部分空間法^[4]で実施し、そこでシミュレートされた PC 分子の還元分解反応（炭酸イオンとプロペンの生成反応；Fig. 2）の機構を NBO 法に基づいて解析した^[5]。NBO 解析によると、Li 表面との相互作用を通じて還元電子を受け取った PC 分子は、①一旦その電子を 5 員環酸素上の lone pair 軌道 (LP；Fig. 3(a)) で保持し、②その後その LP 軌道から C-O の反結合性軌道 (σ_{C-O}^* ；Fig. 3(b)) への電子移動が PC 分子の構造揺らぎを介して起こり、③最終的に C-O 結合が切断されることが分った。 σ_{C-O}^* 上の電子数が LP との相互作用を通じて上昇する過程を Fig. 4 に示す。

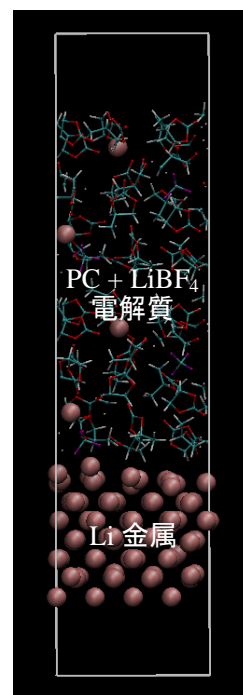


Figure 1. Li 金属表面と有機系電解質 (PC + LiBF₄) の界面モデル。

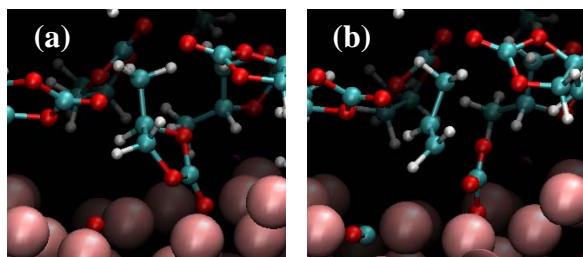


Figure 2. PC 分子の還元分解反応. (a) PC 分子と Li 金属表面の相互作用状態. (b) 84 fs 後に PC 分子が炭酸イオンおよびプロペンに分解.

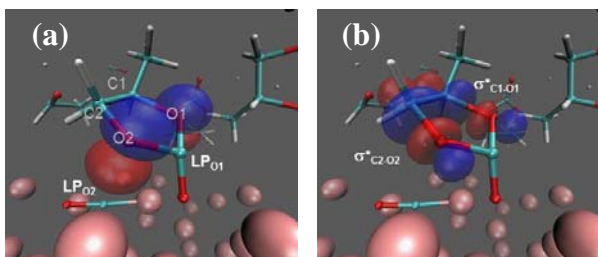


Figure 3. PC 分子還元分解反応に関わる主な NBO. (a) 5 員環 O 上の lone pair (LP). (b) C-O 反結合性軌道 (σ_{C-O}^*).

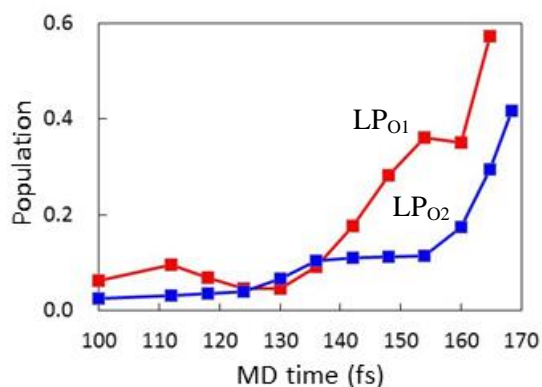


Figure 4. PC 分子の 5 員環中の C-O 反結合性軌道 (σ_{C-O}^*) における電子数変化.

【まとめ】本手法により、これまで困難だった大規模第一原理計算における軌道解析が、任意の局所領域のみについて実施できるようになったことで容易になった。特に $O(N)$ -Krylov 部分空間法に適用することで、軌道の取り扱いが出来なかった同 $O(N)$ 法に基づく計算に軌道概念を導入することが可能となった。更に、これまでの NBO 法などの軌道解析は、主に静的な計算に適用されることがほとんどであったが、本報告のように動的な計算の中で軌道相互作用の変化を詳細に追跡することが可能になったことは、今後の大規模第一原理 MD 計算の有用性を高めると期待される。

【参考文献など】

- [1] A.E. Reed, L.A. Curtiss, F. Weinhold, Chem. Rev. **88**, 899 (1988).
- [2] 大脇 創, 北陸先端大共有計算サーバ使用成果報告 2012, 51 頁.
- [3] <http://www.openmx-square.org/>
- [4] T. Ozaki, Phys. Rev. B **74**, 245101 (2006).
- [5] T. Ohwaki, M. Otani, T. Ozaki, J. Chem. Phys. (submitted).

SiO₂/Si 上グラフェンナノリボンの大規模第一原理電子伝導計算

富士通研究所 實宝秀幸

計算コード：OpenMX, 計算サーバ：Cray-XC30, 計算規模：～1200 cores × ～40 hours

【概要】

3000 原子規模の SiO₂/Si 上グラフェンナノリボンの第一原理電子伝導計算を実施し、電流のオンオフ比について実験とコンシステントな結果が得られた。

【詳細】

グラフェンは、電子デバイス中では通常 SiO₂ などの絶縁膜上に担持され、孤立グラフェンとは著しく異なる電気伝導特性を示す[1,2]。また、SiO₂ の表面処理の違いによっても電気伝導特性が変化することが報告されている[3]。そこで、本研究では、SiO₂/Si 上のアームチェア型グラフェンナノリボン(AGNR)について、SiO₂ 表面が O 終端されている場合と OH 終端されている場合の電気伝導特性を調べた。AGNR のチャンネル長は 9.91nm と 15.1nm の 2 つについて、電気伝導特性を比較した。

計算に用いた SiO₂/Si 上 AGNR (チャンネル長 9.91nm) の構造モデルを図 1 に示す。AGNR チャンネルが半無限の AGNR 電極リードに挟まれた構造である。構造モデル中の原子数は、O 終端 SiO₂/Si 上 AGNR の場合、チャンネル長が 9.91, 15.1nm のモデルで、それぞれ 1974, 3030 原子である。伝導計算には、OpenMX に実装された非平衡グリーン関数法を用いた。

図 2 は、バイアス電圧がゼロの場合の透過率から見積もった電流値である。ソース・ドレイン電圧が 0.5V の場合を模し、横軸のエネルギーを中心に 0.5eV の範囲で透過率を積分して電流値を求めた。横軸はバックゲート電圧印加時の AGNR にかかる電圧と見なせる。孤立 AGNR[(a)と(b)]では、チャンネル長 15.1nm の場合の方が 9.91nm の場合より 10⁷ も電流のオンオフ比が大きいが、O 終端 SiO₂/Si 上 AGNR[(c)と(d)]では、オンオフ比はチャンネル長に依存しない。電流のギャップは 0.7eV シフトし、*p* 型伝導を示している。O 終端 SiO₂/Si 上 AGNR で得られた 10⁵ というオンオフ比は、孤立グラフェンのオンオフ比よりも著しく小さく、その値は SiO₂ 上 GNR の実験データとコンシステントである[1]。OH 終端 SiO₂/Si 上 AGNR では、*p* 側で O 終端 SiO₂/Si 上 AGNR よりもオンオフ比が小さい。これは、OH 基が AGNR の価電子帯

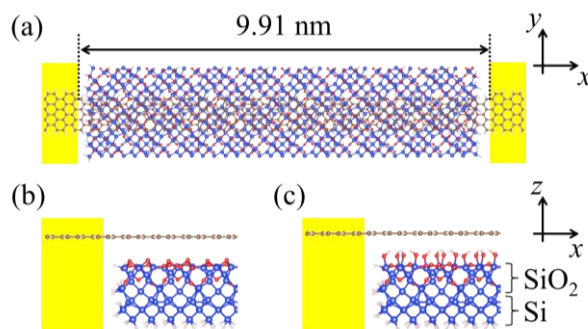


図 1: SiO₂/Si 上 AGNR (チャンネル長 9.91nm) の構造モデルを(a)上から見た図と(b)横から見た図。SiO₂ 表面は(b)O と(c)OH で終端されている。黄色く塗った領域は半無限の電極リード。

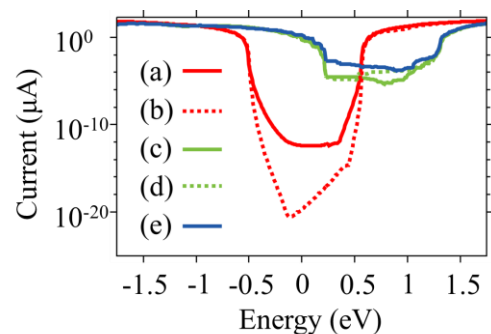


図 2: (a)(b)孤立 AGNR、(c)(d)O 終端 SiO₂/Si 上 AGNR、(e)OH 終端 SiO₂/Si 上 AGNR の電流値。チャンネル長は、(a)(c)(e)9.91nm、(b)(d)15.1nm である。

上端付近に広がった状態を持っており、より多くのホールが AGNR へ注入されるためである。このような電荷移動は、OH 終端 SiO₂ 上グラフェンの実験[3]で観測されたディラック点のシフトや移動度の低下に関連している可能性がある。

【参考文献】

- [1] X. Li *et al.*, Science 319, 1229 (2008).
- [2] M. -W. Lin *et al.*, Nanotechnology 22, 265201 (2011).
- [3] K. Nagashio *et al.*, J. Appl. Phys. 110, 024513 (2011).

【論文発表】 1 本

- 1) “First-principles electronic transport calculations of graphene nanoribbons on SiO₂/Si”, H. Jippo, T. Ozaki, and M. Ohfuchi, Appl. Phys. Express 7, 025101 (2014). <査読有り>

【学会発表】 2 件

- 1) “SiO₂/Si上グラフェンナノリボンの大規模第一原理電子伝導計算”, 實宝, 尾崎, 大淵, 2014 年第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 2014年3月17~20日 (20a-E2-9).
- 2) “Large-scale first-principles study of the electronic transport properties of graphene nanoribbons on SiO₂/Si”, H. Jippo, T. Ozaki, and M. Ohfuchi, 第46回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 東京大学, 2014年3月3~5日 (3-4).

【関連プレスリリース】 1 件

- 1) 「従来比 3 倍となる 3,000 原子規模のナノデバイス・シミュレーションに成功」, 富士通プレスリリース (<http://pr.fujitsu.com/jp/news/2014/01/14.html>) ; 日刊工業新聞 1/14 一面

「InSb の電子状態および光学誘電率の第一原理計算」

佐野陽之

石川工業高等専門学校一般教育科・教授

<目的>

InSb などの機能層を含む光ディスクでは、光の解像限界以下の微小ピットを読み取ることができる超解像現象が起こることが知られている。この現象は入射光によって発生する熱で機能層の光学誘電率が変化するために起こるが、その詳細はまだ解明されていない。本研究では、機能層材料として有望な InSb を対象に、融解による光学誘電率の変化の起源を明らかにするため、結晶状態と融解状態の InSb の電子状態及び光学誘電率の計算を行う。

<内容>

第一原理計算には VASP (Vienna ab-initio simulation package) を用いた。昨年度、結晶状態 InSb の電子状態 (状態密度とエネルギーバンド図) および光学誘電率の計算を行ったので、これに対応する溶融状態の InSb (融点 798K) の計算を今年度実施した。

立方体の super-cell に In 原子 32 個、Sb 原子 32 を結晶状態と同じ位置に配置し、これを初期状態として分子動力学 (MD) 計算を行った。最初、1500K, 6ps のアニールにより初期状態 (結晶状態) の情報を消失させた後、900K, 6ps で保持し溶融 InSb の原子配置を用意した。この溶融 InSb に対して、電子状態および光学誘電率の計算を行った。

結晶状態および溶融状態の計算結果を比較したところ、結晶状態で narrow band-gap の半導体であった InSb は、溶融により band-gap が消失しフェルミ準位付近の状態密度が増大した。この変化に対応して、溶融状態の InSb は金属的な光学誘電率を示した。これらの結果は、InSb の光学誘電率の実験データと定量的によく合うことが分かった。

本研究は、JAIST マテリアルサイエンス研究科の水谷教授との共同研究に基づいて、JAIST の SGI-Altix-UV1000 と xc30 を用いて実施した。

<研究業績等> 本研究に関連する研究発表を以下に示す。

論文発表

- (1) 佐野陽之、島隆之、桑原正史、藤田宜也、内山宗久、青野嘉幸、
“光ディスクの超解像再生の物理シミュレーション”, 映像情報メディア学会技術報告
ITE Technical Report Vol. 37, No. 26, MMS2013-16, pp. 23-25 (June 2013). (査読なし)
- (2) H. Sano, T. Shima, M. Kuwahara, Y. Fujita, M. Uchiyama, and Y. Aono, “Multi-physics simulation of super-resolution effect in an optical disk”, Proceedings of the 25th Symposium on Phase Change Oriented Science (PCOS2013), (2013). (査読なし)

学会発表

- (1) 佐野 陽之、島 隆之、桑原 正史、藤田 宜也、内山 宗久、青野 嘉幸、“光ディスクの超解像再生の物理シミュレーション”、マルチメディアストレージ研究会 2013年6月21日(東北大)
- (2) 佐野 陽之、島 隆之、桑原 正史、藤田 宜也、内山 宗久、青野 嘉幸、“超解像再生の連成物理シミュレーション解析”、応用物理学会 2013年9月17日(同志社大)
- (3) H. Sano, T. Shima, M. Kuwahara, Y. Fujita, M. Uchiyama, and Y. Aono, “Multi-physics simulation of super-resolution effect in an optical disk”, 第25回相変化研究会シンポジウム(PCOS2013) 2013年11月28-29日(ホテル瑞鳳、仙台)
- (4) 佐野 陽之、島 隆之、桑原 正史、藤田 宜也、内山 宗久、青野 嘉幸、“超解像再生の連成物理シミュレーション解析Ⅱ”、応用物理学会 2014年3月(青山学院大相模原キャンパス) 発表予定

遺伝子アルゴリズムと第一原理計算の併用による不均一系触媒の非経験的構造決定

(マテリアルサイエンス研究科 谷池研究室 M1)相原 亮一

背景

触媒は環境・エネルギー問題に対する化学分野の要となる材料であり、中でも化学プロセスの大半を担う不均一系（固体）触媒が注目される。触媒の高性能化が求められる中で、特に表面の精密設計が重要視されるが、種々の測定技術が発達した現在でも 1 原子レベルでの厳密な情報は得難い。また、材料のシミュレーションには初期情報として妥当性のある分子モデルを入力する必要があることから、計算科学的に不均一系触媒の構造を探索することも困難を極める。

本研究では、遺伝子アルゴリズムによる広域探索と、第一原理計算による局所探索を併用し、不均一系触媒の非経験的構造決定の実現を目指す。本年度においては、 Au_{30} クラスタを対象とするベンチマーク計算を実施し、本プログラムの整合性を検証した。

計算方法

遺伝子アルゴリズムは、反復計算によって最適解を獲得するアルゴリズムであるため、本プログラム中で第一原理計算による構造最適化を実施する過程において、精度と同時に計算速度も要求される。そのため、第一原理計算には密度汎関数法を採用し、DMol³を用いてPCC上で実行した。交換相関汎関数としてGGA PBEを、基底関数にはDNP及び有効各ポテンシャルを用いた。また、プログラムの円滑な実行のためthermal smearing (0.0050 Ha)を適用した。以上の条件下で構造最適化を行い、 Au_{30} クラスタに対して本プログラムを実施した。

成果

各世代でのエネルギー値の推移と最新世代の最安定構造を図1に示す。また、乱数を用いて生成した別の初期構造群を用いて3回の並列計算を実行したが、ほぼ同様のエネルギー値・構造に収束したことから、本プログラムの正当性を確立できたと言える。今後は、実用触媒として用いられる多成分系 (MgCl_2 、 TiO_2 等) へ本プログラムを適用する。

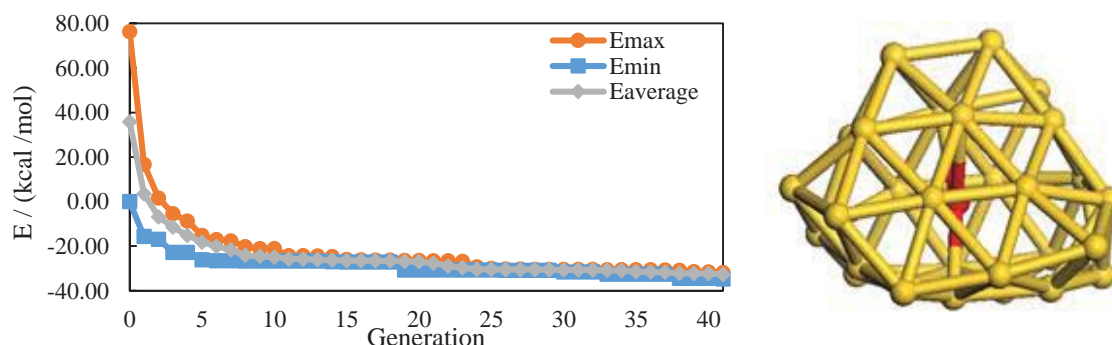


図1 各世代でのエネルギー値の推移（左）及び Au_{30} クラスタの最安定構造（右）

鉍物テトラヘドライト $\text{Cu}_{12-x}\text{Ni}_x\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ の電子構造

広島大学大学院先端物質科学研究科 末國晃一郎
利用計算機：Cray XC30

固体素子を用いて熱エネルギーを電気エネルギーに変換する技術を熱電発電という。自動車や工場の廃熱を利用した発電の実証試験が近年盛んに行われている。しかし、熱電発電に応用できる高い性能を有する既存物質に毒性元素の鉛や稀少元素のテルルが含まれることが問題となっている。

最近我々は、環境調和型元素である銅(Cu)と硫黄(S)からなる硫化鉍物のテトラヘドライト $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ (Sb : アンチモン)が実用高温領域である 400°C において高い熱電変換性能を示すことを実験的に明らかにした。さらに、Cu の一部を Ni で置換すると、ホール密度が減少して性能が向上することを見出した。しかし、Ni の置換によりホール密度が減少する原因は判っていない。

昨年度、第一原理電子状態計算プログラムパッケージ OpenMX を用いて計算を行い、 $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ の電子構造には半導体的なバンドギャップがあり、フェルミ準位 E_F は価電子帯端から 0.1 eV 程度低いエネルギーに位置することを示した。本年度は、Cu を Ni で置換した $\text{Cu}_{12-x}\text{Ni}_x\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ ($x = 1, 2$) の電子構造を計算し、置換によりホール密度が減少する原因を調べた。

Ni 置換系では、Ni の 3d 軌道が E_F よりも高いエネルギー(バンドギャップ中)に現れることが判った。これは、3d 軌道の交換分裂幅が結晶場分裂幅よりも大きいことに起因する。また、Ni がイオン化することで価電子帯へ電子を供給し、その結果ホール密度が減少することが判った。価電子帯から不純物準位への電子の熱励起に対応する電気抵抗率の熱活性型の温度依存性と Ni^{2+} イオンのキュリー・ワイス則に従う磁化率を実験的に観測しており、計算結果と実験結果が対応することを確かめた(論文投稿中)。今後は、本研究結果を基にしてテトラヘドライトの熱電性能を向上させる方法を提案したい。

学会発表リスト:

1. 硫化鉍物テトラヘドライト $\text{Cu}_{12-x}\text{Ni}_x\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ の伝導・磁性と電子構造 (口頭)
末國晃一郎, 富澤雄基, 尾崎泰助, 小矢野幹夫
日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 29 日, 東海大学湘南キャンパス, 29pCG-3
2. 高性能熱電硫化鉍物テトラヘドライトの電子バンド構造と物性 (口頭)
末國晃一郎, 尾崎泰助, 太田道広, 山本淳, 小矢野幹夫
第十回日本熱電学会学術講演会(TSJ2013), 名古屋大学, 2013 年 9 月 8 日, S4-2
3. 硫化鉍物テトラヘドライト $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ の構造・電子物性 (口頭)
末國晃一郎, 西堀英治, 真木祥千子, 尾崎泰助, 小矢野幹夫
日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 27 日, 徳島大学常三島キャンパス 27pKD-13

User Research Report using MPC Servers for 2013

Name: Guo-Liang Chai

Affiliation: Department of Organic and Polymeric Materials, Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology

Collaborator: Prof. Kiyoyuki Terakura in JAIST

Used machines: XC30 and PC cluster (PCC)

Typical computational size: 48 hours/32 procs for PCC or 48 hours/128 procs for XC30.

Simulation codes used: Quantum-Espresso and CPMD

Abstract of the work

Polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) are one of the most promising power sources due to their prominent characteristics of rather high efficiency, low operating temperature, and low environmental impact. However, their wide commercialization is still prohibited by the expensive Pt based catalysts. So the nitrogen doped carbon alloy catalysts (CACs) were studied to substitute Pt catalysts. Previously, I have studied the active sites for nitrogen doped CACs by using DFT (Quantum-Espresso code) and MD (Car-Parrinello molecular dynamics) calculations. For this previous study, I just investigated the standard $4e^-$ oxygen reduction reaction (ORR) process. However, the experiments also indicated that the $2e^-$ ORR process can also happen. So the present work is related with $2e^-$ ORR process for CACs.

In the present research work, by screening a lot of configurations we find that for the first $2e^-$ ORR process the H_2O_2 is produced in the edge state (the reaction barriers are about 10 kcal/mol). For the second $2e^-$ ORR process the H_2O_2 is decomposed to water. For this process the current results suggest that the active sites are possible to be in the bulk surface of CACs (the reaction barriers are about 15-20 kcal/mol by using molecular dynamics calculations). For these two processes, the DFT calculations (Quantum-Espresso code) are employed to investigate their thermodynamic properties (Norskov's analysis). In order to know the reaction pathway more clearly, we started to use other methods to investigate the second $2e^-$ ORR process recently. This type of calculation work is ongoing.

The impacts of electronic state hybridization on the binding energy of single phosphorus donor electrons in extremely downscaled silicon nanostructures

Le The Anh

Mizuta Lab, School of Material Science, JAIST,

Machines: Cray XC30, Altix UV1000

Program: Openmx

Typical computational size: 128CPUs/job

We present the density functional theory calculations of the binding energy of the P donor electrons in extremely downscaled single P-doped Si nanorods. In past studies, the binding energy of donor electrons was evaluated for the Si nanostructures as the difference between the ionization energy for the single P-doped Si nanostructures and the electron affinity for the un-doped Si nanostructures. This definition does not take into account the strong interaction of donor electrons and Si at the conductive states at nano-scale and predicts a monotonous increase in the binding energy by reducing the nanorod's dimensions. By using the projected density of states and wavefunction analyses, we found that the first conductive state is capped near the upper edge of the dopant potential with respect to the surrounding Si in extremely small nanorods. This causes the weakly dependence of binding energy on the nanorod's sizes. Figure 1 (a) and (b) show the positions of the donor excited states plotted with the PDOS at the P atom and the electrostatic potential.

The inset shows the full range electrostatic potential. From figure 5(b), we can see that the LUMO+28 stay above the upper edge of local potential of the P donor. Therefore, the hybridization with the Si states becomes stronger than the state below the edge. Above the edge, the interaction between the donor electrons and the core P ion become stably small because the electrons are no longer confined by the local potential of the P ion. As a result, the amplitudes of charge density near the P atom keep small from the LUMO+28 to the upper levels as we can see from the figure 1(c).

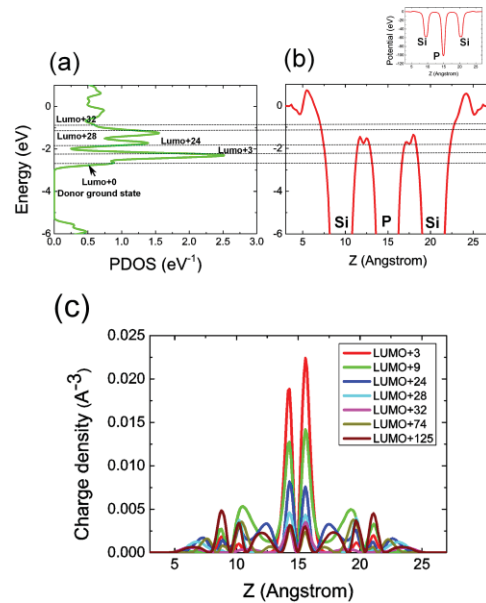


Figure 1. The positions of the donor excited states (a) in comparison with the PDOS at the P atom, (b) with the electrostatic potential. The inset shows the full range electrostatic potential, (c) Charge density for the dopant electron along the [100] direction, z is the coordinate along that direction

First-principles studies of two-dimensional materials using computational facilities of JAIST

School of materials science

Chi-Cheng Lee

(in collaboration with Florian Gimbert, Antoine Fleurence, Rainer Friedlein, Yukiko Yamada-Takamura and Taisuke Ozaki)

Used Machine: Cray-XC30

Two-dimensional materials have a great potential to become a new operating core in the Si-based industry and are promising for a more efficient technology needed for the new generation. With the design narrowed down into the layer scale, graphene and silicene definitely have caught attention to researchers. Our studies would focus on silicene on the $\text{ZrB}_2(0001)$ thin film and on graphene with a single carbon vacancy. All calculations are based on the density functional theory (DFT) within a generalized gradient approximation (GGA), implemented by the OpenMX code.

For the silicene study, we have found two possible phases to be existing on the $\text{ZrB}_2(0001)$ surface. One of the structure is planar-like that shows a $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ reconstruction. Sharing the same $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ reconstruction, the other structure is buckled-like and is closer to the freestanding form of silicene. Although experiments have shown promising progress in fabricating silicene on various substrates, the geometrical structures and the electronic structures of silicene are still under debate. We are trying to resolve the controversial issue of the very phase of silicene on the $\text{ZrB}_2(0001)$ surface, especially aiming at excellent agreement between theoretical and experimental observations. Given that a large-scale stripe domain was measured by the STM experiment, some of the studied systems are expected to require a heavy computation.

On the other hand, the defect engineering and spin electronics are important topics for future industrial applications. Therefore, the defect-induced magnetism in the extensively studied graphene becomes an interesting and important issue. We have performed the calculation of graphene with a single carbon vacancy and studied its physical properties. Since the vacancy-induced magnetism could highly depends on the vacancy concentration, it is important to explore a large enough supercell in comparison with experimentally relevant low vacancy concentrations. The largest supercell we have explored so far is the 16×16 supercell that contains 511 carbon atoms with one carbon vacancy. Many calculations of silicene and graphene are still underway.

Publication list:

1. Florian Gimbert, Chi-Cheng Lee, Rainer Friedlein, Antoine Fleurence, Yukiko Yamada-Takamura, and Taisuke Ozaki, <http://arxiv.org/abs/1401.0142> (2013).
2. Chi-Cheng Lee, Yukiko Yamada-Takamura, and Taisuke Ozaki, <http://arxiv.org/abs/1311.0609> (2013).
3. A. Fleurence, Y. Yoshida, C.-C. Lee, T. Ozaki, Y. Yamada-Takamura, and Y. Hasegawa, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 021605 (2014).
4. Chi-Cheng Lee, Antoine Fleurence, Rainer Friedlein, Yukiko Yamada-Takamura, and Taisuke Ozaki, *Phys. Rev. B* **88**, 165404 (2013).
5. Chi-Cheng Lee, Yukiko Yamada-Takamura, and Taisuke Ozaki, *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 345501 (2013).

First-principles calculations on Si and Ge new allotropes

Name: GIMBERT Florian

Affiliation: Takamura Lab, School of Materials Science

Used Machines: Cray-XC30

Program code: OpenMX / Wien2k

Si and Ge new allotropes

With the forefront runner graphene and its unique and exotic properties, at present, two-dimensional materials experience an explosion of interest in scientific and technological aspects. While the excellent electronic properties of graphene are derived from its structural robustness, the same property makes it a challenging task to engineer the optical and transport properties. This challenge is stimulating the search for alternative two-dimensional layered materials that are more flexible in terms of its structural and electronic properties. In this context, in particular, two new promising two-dimensional materials with a honeycomb structure made of silicon or germanium atoms have been studied as theoretical objects since 1994. Most importantly, in yet hypothetical, slightly buckled, free-standing forms, silicene and germanene, as they were later called, exhibit a band structure similar to that of graphene, merging linear dispersions of π and π^* bands at the Fermi level to form Dirac cones at the K points. Experimentally, it has been shown that two-dimensional Si honeycomb lattices can be formed epitaxially on Er layers as well as on the Ag(111), ZrB₂(0001) and Ir(111) surfaces. It is established that the interactions with the substrates have a distinct influence on the structural and electronic properties of the layers. No experimental evidence for the existence of germanene has been reported yet.

We investigated the stability of this new Si phase (MoS₂-Si) together with a possible similar Ge allotrope (MoS₂-Ge) whose structures are that of a single layer of molybdenum disulfide, or MoS₂. The results are compiled for a wide range of lattice constants and compared to those with that of other two-dimensional silicon structures. The phonon dispersion further demonstrates that MoS₂-Si is stable on the Born-Oppenheimer surface. A new form of σ bonding expressed by three cigar-shaped orbitals co-exists with an extended π electronic band structure. The direction of these orbitals has changed from the typical in-plane direction of the orbitals in the sp² hybridization to the out-of-plane direction to form cigar-shaped orbitals. In analogy to the nematic electronic structure, the aligned and cigar-shaped orbitals may be called “nematic”. Importantly, the presence of an extended π electronic system different to those in silicene and graphene will lead to properties that must still be explored. In a wider context, this finding does not only open new opportunities in the engineering of novel nanostructures to be employed in future applications but it also leads to intriguing fundamental questions related to the physics and chemistry of Si systems in general.

The DFT calculations within a generalized gradient approximation¹⁸ have been performed using the OpenMX code which is based on norm-conserving pseudopotentials generated with multi reference energies and optimized pseudoatomic basis functions. The energy curves have also been confirmed by calculations with the first principles code WIEN2k.

Typical computational size: 1-64 processors

First principles study of edge irregularities in Graphene Nanoribbon device

M. Manoharan

Mizuta Lab, School of Material science, JAIST,

Machines used: Cray XC30, SGI Altix4700

Program code: OpenMX

Typical computational size: XC30 → 256 cores/job; Altix UV1000:64/128CPUs/job

Graphene is studied widely for its potential applications of nanoscale electronic devices. All the superior properties of graphene encourage us to downscale graphene devices. Unnecessarily, edge irregularities/defects are created in the geometrically constricted regions during electron/ion beam exposure in the device fabrication process. These defects strongly affect the electronic properties of the device and consequently its transport characteristics are also affected. In this work, we study the electronic states and transmission properties of Graphene Nanoribbon (GNR) with edge irregularities based on Density Functional Theory and Non Equilibrium Green's Function techniques based on openmx ode. OpenMX is a parallelized electronic structure code, based on density-functional theory (DFT) method and designed for large-scale materials simulations. It has been developed by Prof. Ozaki group. Initially, the device channels with point defects were geometrically optimized (Fig. 1a) and the resultant geometrical structures were used in the further ab-initio simulations. The zigzag edge extrusion of the armchair GNR (AGNR) channel leads to resonant states in the energy bandgap (Fig. 1b). Single vacancy edge roughness in AGNR causes acceptor doping and resonant states inside the energy bandgap. The vacancy edge defects increase the transport bandgap due to the localization of the wavefunction in the defect region (Fig. 1c). Similar calculations are done for gas sensor applications as well.

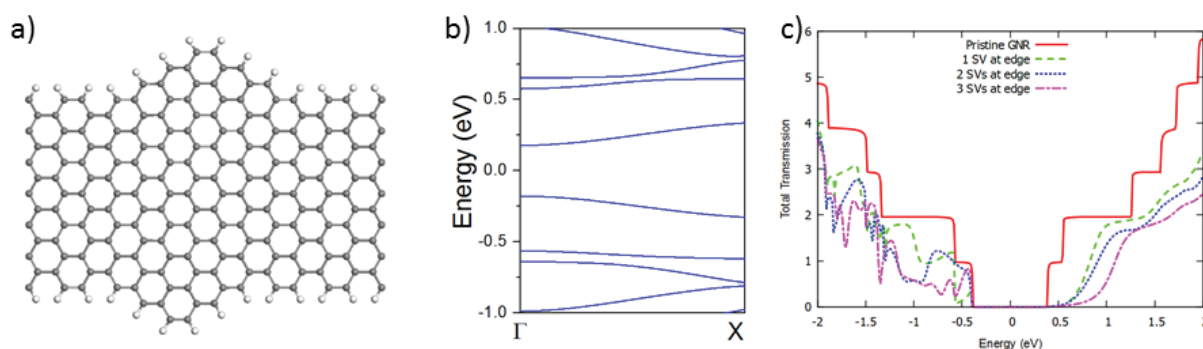


Fig. 1 a) AGNR with two zigzag extrusions, and its electronic band structure (b). c) Transmission Spectrum of AGNR channel devices with single vacancy edge defects.

Publications:

1. Manoharan M. and H. Mizuta Point defect induced transport bandgap widening in the downscaled armchair graphene nanoribbon device, Carbon, 64, 416-423, 2013
2. Adsorption of CO₂ and NH₃ molecules on armchair graphene nanoribbons and its electronic states and transport properties, Manoharan M., S. Inoue and H. Mizuta, JSAP-MRS Joint Symposia, Symposium C: Advanced Nano Carbon Devices and Materials, Kyoto, 16-20 September 2013
3. First principle study of Edge defects in Graphene Nanoribbon devices, M. Manoharan, Hiroshi Mizuta 61st JSAP Spring Meeting, Kanagawa, 17-20 March, 2014.

The report on Use of Computing facilities of JAIST

¹*Research Center for Integrated Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology, Ishikawa 923-1292, Japan*

²*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*

Hongming Weng

Used Machines: XT5, Appro PC Cluster, SGI Altix UV1000

1. Transition-Metal Pentatelluride ZrTe_5 and HfTe_5 : A Paradigm for Large-Gap Quantum Spin Hall Insulators

Quantum spin Hall (QSH) insulators are a class of two-dimensional exotic quantum matter, a branch in the broad family of topological insulators. While the interior of a QSH material is electrically insulating, its edge serves as a "two-lane highway" for mobile electrons with opposite spin alignment traveling in opposite directions. Such electronic transport is, in fact, very robust against perturbations (for example, those caused by impurities), and under appropriate conditions, it is resistance-free—similar to a superconducting current. The potential of such materials for technological applications is obviously great. A major obstacle, however, stands in the way to their wide application: the lack of actual QSH materials that can not only be easily fabricated, but also have a large energy gap associated with the bulk insulation—a prerequisite for room-temperature applications.

In this work, we predict, based on first-principles calculations, that two known layered thermoelectric compounds ZrTe_5 and HfTe_5 ,

are also the most promising candidates for QSH materials to date. We find that their interlayer coupling is as weak as that in graphite (which gives rise to graphene) and that their single-layer sheets are large-gap QSH insulators, which are also robust against external strains. The weak interlayer coupling should lead to relative ease in material fabrication, and the bulk gap of the monolayer sheets is large enough to support applications at room temperature.

While our prediction awaits experimental confirmation, such confirmation will no doubt open a new playground for both fundamental and applied research based on QSH materials at elevated temperatures.

The calculations in this work is performed by using OpenMX software package (<http://www.openmx-square.org>) developed by T. Ozaki in JAIST. The topological analysis is based on the accurate effective low energy Hamiltonian from Wannier Function orbitals. This work is published on PRX, 4 (2013) 27003.

2. Superconductivity in Topological Insulator Sb_2Te_3 Induced by Pressure

Topological superconductivity is one of most fascinating properties of topological quantum matters that was theoretically proposed and can support Majorana Fermions at the edge state. Superconductivity was previously realized in a Cu-intercalated

Bi₂Se₃ topological compound or a Bi₂Te₃ topological compound at high pressure. In this work, we report the discovery of superconductivity in the topological compound Sb₂Te₃ when pressure was applied. The crystal structure analysis results reveal that superconductivity at a low-pressure range occurs at the ambient phase. The Hall coefficient measurements indicate the change of p-type carriers at a low-pressure range within the ambient phase, into n-type at higher pressures, showing intimate relation to superconducting transition temperature. The first principle calculations based on experimental measurements of the crystal lattice show that Sb₂Te₃ retains its Dirac surface states within the low-pressure ambient phase where superconductivity was observed, which indicates a strong relationship between superconductivity and topology nature.

The calculations in this work is performed by using OpenMX software package (<http://www.openmx-square.org>) developed by T. Ozaki in JAIST. The topological analysis is based on the accurate effective low energy Hamiltonian from Wannier Function orbitals. This work is published on *SCIENTIFIC REPORTS*, 3 (2013) 2016.

3. Topological Crystalline Kondo Insulator in Mixed Valence Ytterbium Borides

The electronic structures of two mixed valence insulators YbB₆

and YbB12 are studied by using the local density approximation supplemented with the Gutzwiller method and dynamic mean field theory. YbB6 is found to be a moderately correlated Z2 topological insulator, similar to SmB6 but having much larger bulk band gap. Notably, YbB12 is revealed to be in a new novel quantum state, strongly correlated topological crystalline Kondo insulator, which is characterized by its nonzero mirror Chern number. The surface calculations find an odd (three) and an even (four) number of Dirac cones for YbB6 and YbB12, respectively.

The LDA part are performed with WIEN2k and the effective model is obtained from Wannier90. LDA+G is developed in IOP. The results are published on Phys. Rev. Lett. 112, 016403 (2014).

The Report on Use of Computing Facilities of JAIST

Department of Organic and Polymeric Materials, Graduate School of Science and
Engineering, Tokyo Institute of Technology
Zhufeng HOU

Used machines: Cray XT5, Cray XC30, SGI Altix UV1000 and PC cluster (pcc)

Typical computational size: 48 hours and 32(64 or 128) procs.

Simulation codes used: Quantum-Espresso, CP2K, and CPMD

1. Screening of the catalytic active sites in N-doped graphene for oxygen reduction reaction

The non-precious carbon alloy catalysts (e.g., nitrogen-doped graphene) have recently been shown to have high catalytic reactivity towards oxygen reduction reaction (ORR) in polymer electrolyte fuel cell (PEFC). To search the promising catalytic active sites for ORR, we have performed extensive density functional theory calculations to study the equilibrium thermodynamics of the ORR intermediate species (such as *O, *OH, and *OOH) on different structures of N-doped graphene. We have examined the doped N around defects (unoxidized vacancies, oxidized monovacancies, Stone-Wales defect, and extended line defect) and the iron-nitrogen centers in graphene. Our results show that the pyridinic N and pyridiniumlike N at monovacancy cannot facilitate the ORR because the carbon atoms next to vacancy site would be oxidized during the ORR. The oxidation of vacancies can stabilize the graphitic N and make this type of doped N be catalytically active for the ORR with maximum activity of about 0.5 V. The doped N around defect in bulk region of graphene show slightly lower maximum activity than those at the defective edge of graphene. For the iron-nitrogen centers in graphene, only the FeN₄ center show promising catalytic activity for the ORR through the 4-electron reaction process.

Publication:

1. Zhufeng Hou, Da-Jun Shu, Guo-Liang Chai, Takashi Ikeda, and Kiyoyuki Terakura, Oxidation of Monovacancy and its Influence on Nitrogen Doping in Graphene, oral contribution on the 5th in the series of Conferences on Recent Progress in Graphene Research, Sep. 9-13, 2013, Tokyo, Japan.

4. 謝辞

本報告は、JAIST の並列計算機利用者メーリングリストである `mpc` メーリングリストにおいて各ユーザへ報告を依頼し、各著者のご厚意によって提出いただいた文章をまとめたものである。ご多忙のところ、ご協力をいただいた著者各位に感謝します。