

Tight-binding 量子分子動力学法の超高速化と 化学反応ダイナミクスへの応用

○遠藤 明¹, 鄭 善鎬¹, 大沼宏彰¹, 小野寺 拓¹, 坪井秀行¹, 古山通久¹,
畠山 望¹, 高羽洋充¹, 久保百司¹, Del Carpio Carlos A.¹, 宮本 明^{2,1}

¹東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

²東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

【緒言】

当研究室では従来の第一原理分子動力学法よりも数千倍高速な, Tight-binding 近似に基づく量子分子動力学法プログラム Colors の開発と応用[1-3]に成功してきた. 本研究では, Tight-binding 量子分子動力学法プログラムにおける量子化学計算部分のさらなる高速化を可能とするアルゴリズムを考案し Colors プログラムへ実装することで新プログラム"New-Colors"を開発したので報告する. あわせて応用結果についても報告する.

【計算方法】

当研究室開発の Tight-binding 量子分子動力学法プログラム Colors において, 系の全エネルギーは次の式によって表される:

$$E = \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} m_i v_i^2 + \sum_{k=1}^{\text{occ}} n_k \epsilon_k + \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \frac{Z_i Z_j e^2}{r_{ij}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N E_{ij}^{\text{repul}}(r_{ij}) + \sum_{i=1}^N E_{\text{corr}}(Z_i) \quad (1)$$

ここで, 上記の式(1)における右辺第1項, 第2項, 第3項, 第4項, 第5項はそれぞれ原子核の運動エネルギー, 軌道エネルギー, クーロンエネルギー, 近接交換反発エネルギー, 補正エネルギーである. 本プログラムでは, 密度汎関数理論に基づく第一原理計算を利用して得たパラメータを Tight-binding 近似のハミルトン演算子に適用することで, 電子状態計算の精度を確保しつつ高速計算を可能にしている.

【結果および考察】

重なり積分行列要素 S_{rs} は波動関数情報のみならず原子間距離にも依存し, ハミルトニアン行列の非対角要素 H_{rs} はWolfsberg-Helmholz近似を用いて計算するため S_{rs} に比例することがわかっている. そこで, 量子分子動力学計算において原子の座標が変化するとき S_{rs} と H_{rs} のみを更新し, 指定された時刻に到達するまで波動関数情報を拘束するアルゴリズムを考案した. このアルゴリズムを実装した新規開発プログラム"New-Colors"を用いて, 系の総電子数を2~200にした場合の量子分子動力学計算に要する時間を測定した. 比較のため改造前のColorsによる計算も行った. その結果を図1に示す. この図から, 本研究で開発したNew-Colorsプログラムが従来のColorsと比較して, 200電子系で約14倍の高速化していることがわかる. これにより, 本研究で開発したアルゴリズムが計算所要時間の大幅な低減に有効であることが示された. 現在, 触媒・トライボロジー分野への応用や古典分子動力学法とのハイブリッド化を進めている.

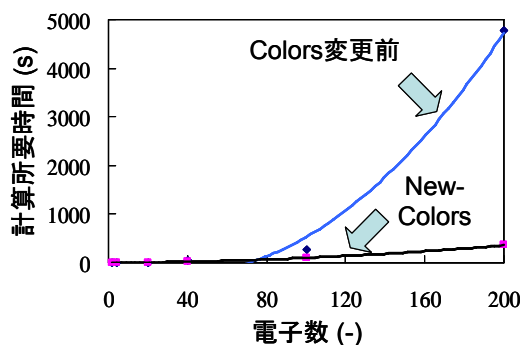


図1. 従来の Colors プログラムと本研究で開発した New-Colors プログラムの計算所要時間の比較.

参考文献

[1] M. Elanany et al., *J. Phys. Chem. B*, **107**, 1518 (2003).

[2] R. Ishimoto et al., *Appl. Catal. A-Gen.*, **305**, 64 (2006).

[3] K. Kasahara et al., *Electrochem. Solid-State Lett.*, **9**, A490 (2006).