

改良粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化法の開発と応用

日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究部門・腐食損傷機構研究グループ
五十嵐 誉廣(Takahiro Igarashi)

Research Group for Corrosion Damage Mechanism,
Nuclear Science and Energy Directorate,
Japan Atomic Energy Agency

名古屋工業大学大学院
尾形 修司(Ogata Shuji)

Graduate School of Engineering,
Nagoya Institute of Technology

1. はじめに

近年の計算機能力の向上は目を見張るものがあり、現在の家庭用計算機は一世代前の大型計算機に近い性能を発揮するに至る。この発展は計算機内部の中央演算装置(CPU)設計時における微細加工技術、いわゆるナノスケールプロセッシングの発展によるところが大きい¹。このようにナノスケールは、近年の工業用デバイス産業において最重要キーワードの一つであると言える。また同様に、微細観察技術においても大いなる発展が見られる²。現在では原子間力顕微鏡や透過型電子顕微鏡などを用いて、腐食や疲労、破壊などの現象をナノスケールで確認することが可能である。だが一方、デバイスの微細化がナノスケールに達すると、Hall-Petch 則³などに代表されるマクロスケールモデルが成り立たないことがわかってきた。この事実は、ナノスケール物質の物性はマクロな視点からの議論だけではなく、ミクロな視点、つまり原子レベルからの議論が必須であるということを示唆している。

系のサイズの小ささのため、ナノスケール系の物性に原子レベルの現象が現れる。言い換えると、ナノスケール系においては原子レベルの挙動とマクロレベルの挙動の間に強い相関があるということである。例えば、原子レベルで発生した化学反応の影響は、マクロレベルでは熱伝播という形で現れる。系のサイズが大きい場合は原子レベルの影響は伝播の過程で平均化されるため、現象が単純化される。それ故、単純な

形で表されるマクロスケールモデルでも現象を記述することが可能である。しかしナノスケール系では、平均化される前に系全体の現象として現れるため、原子レベルの影響を無視することができない。ナノスケール系の物理現象を完全に記述するためには、単純なマクロスケールモデルだけではなく原子レベルにおける解析を併せて行う必要がある。

ナノスケール物質を解析する方法の一つとして、計算機を用いた原子レベルのシミュレーション解析が挙げられる。計算機シミュレーションを行うことで、原子スケールの現象を短い時間スケールで動的に追うことが可能であり、ナノスケール物質の物理的性質のメカニズムを解明するための有用な方法となりうる。また、近年の計算機性能の向上により対象系のサイズ拡大・解析時間の削減がなされたことから、新しいナノデバイスの開発や性能予測などに対する強力な手法として期待されている。しかし計算機性能が向上したとはいえ、現在の計算機で扱える計算自由度は10億程度であり、ナノスケール系全体を原子描写して取り扱うことは困難である。

上記の問題を解決する方法の一つとして、ハイブリッドシミュレーション法が挙げられる⁴⁻⁶。ハイブリッドシミュレーション法では、解析対象の系をいくつかの領域に分割し、それぞれの領域に適した計算方法、例えば古典分子動力学計算⁷、タイトバインディング計算⁸、第一原理計算⁹などを適用することで、計算精度を保ちつつ計算速度の向上を実現する。また、上記の原子レベルでの解析手法と、連続体近似計算を接続するハイブリッドシミュレーション法も提案されている¹⁰。

本研究では特に原子-連続体ハイブリッドシミュレーション法に着目する。ハイブリッドシミュレーション法で用いられる連続体近似手法は、有限要素法¹¹、準連続体法¹²などがあるが、本研究ではRuddらによって開発された比較的新しい手法である粗視化粒子法 (Coarse-Grained Particle Method) を採用する¹³。粗視化粒子法では、解析する系の内部に仮想的な粒子 (以後 CG 粒子と呼ぶ) を導入し、原子変位のフォノン熱統計平均操作によって CG 粒子の変位にくりこむ (以後 CG 変換と呼ぶ) ことで CG 粒子同士の相互作用を得る。CG 変換の過程において、数学的近似はなく第一原理的であることから、粗視化粒子法は有限要素法や準連続体法と比較して短波長の波の記述がよいという特徴を持つ。また、CG 変換において粗視化の比率を $\text{CG:atom}=1:1$ 、つまり CG 粒子位置を原子位置と一致させた場合、CG 粒子間ポテンシャルは自動的にフォノン近似された原子間ポテンシャルと一致するため、古典 MD 法に代表される原子シミュレーションとのハイブリッド化に適している。

粗視化粒子法は原子シミュレーション法とのハイブリッド化に適した手法である一方、オリジナルの表記では2つの制限を持つ。一つは、オリジナルの CG 変換には原子数規模サイズの対称行列の逆行列計算が含まれるため原子数の3乗オーダーの計算が必要であり、サイズの大きいシステムにそのまま適用することが難しいことである。もう一つは、CG 変換によって得られる粗視化粒子系 (以下 CG 系と呼ぶ) ポテンシャルは CG 粒子の平衡位置からの変位の関数として表されるため、系の移動や

変形に対応できないことである。本研究では、オリジナルの粗視化粒子法に修正を施し制限を克服した新しい手法の開発を行う。そして新しい粗視化粒子法と古典分子動力学法とのハイブリッドシミュレーション法を開発を行う。開発したハイブリッドシミュレーション法を用いた解析例から、計算精度、計算時間の両面からの優位性を議論する。

2. オリジナル粗視化粒子法

Rudd らによって開発された粗視化粒子法は、原子のフォノンを系に適宜配置した CG 粒子に熱統計平均を用いてくりこむことで粗視化を行う手法である。CG 変換する過程で全く近似がなく第一原理的であることから、粗視化粒子法は長波長の波だけではなく短波長の波を含む力学特性の記述がよいという特徴を持つ¹³。

まず、原子系における調和近似をした原子系の全エネルギー E_{atom} を考える。

$$E_{\text{atom}} = \sum_{\alpha} \sum_r \frac{p_{(\alpha,r)}^2}{2m_{\alpha}} + \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \sum_r \sum_s \frac{1}{2} u_{(\alpha,r)} D_{(\alpha,r),(\beta,s)} u_{(\beta,s)} \quad (1)$$

ここで $u_{(\alpha,r)} \equiv x_{(\alpha,r)} - x_{(\alpha,r)}^{(0)}$ と $p_{(\alpha,r)}$ は、それぞれ原子 α の平衡位置 $x_{(\alpha,r)}^{(0)}$ からの変位と運動量の r 方向成分($r: x, y, z$)を表す。 m_{α} は原子 α の質量、 N_{atom} は原子数、 $D_{(\alpha,r),(\beta,s)}$ は原子系の動力学マトリクスの成分を表す¹⁴。

次に CG 変換を施した CG 系を考える。CG 変換を行うに際し、他の粗視化手法と同様に系をいくつかの領域に分割し、各領域に CG 粒子を設定する。原子系と同様に、CG 粒子 i についての平衡位置 $X_{(i,r)}^{(0)}$ からの変位の r 方向成分を $U_{(i,r)} \equiv X_{(i,r)} - X_{(i,r)}^{(0)}$ 、速度を $\dot{U}_{(i,r)}$ と定義する。ここで原子と CG 粒子を結びつける次のような関係を仮定する。

$$U_{(i,r)} = \sum_{\alpha} \sum_s f_{(i,r),(\alpha,s)} u_{(\alpha,s)} \quad (2)$$

$$\dot{U}_{(i,r)} = \sum_{\alpha} \sum_s f_{(i,r),(\alpha,s)} p_{(\alpha,s)} / m_{\alpha} \quad (3)$$

式(2),(3)中の $f_{(i,r),(\alpha,s)}$ は、原子と CG 粒子を関係づける $3N_{\text{CG}} \times 3N_{\text{atom}}$ の重みマトリクスの要素を表す。 N_{CG} は CG 粒子数である。

式(2),(3)から CG 粒子を固定する束縛 Δ をデルタ関数を用いて

$$\Delta \equiv \prod_i \prod_r^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} \delta \left(U_{(i,r)} - \sum_{\alpha} \sum_s^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} f_{(i,r),(\alpha,s)} u_{(\alpha,s)} \right) \delta \left(\dot{U}_{(i,r)} - \sum_{\alpha} \sum_s^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} f_{(i,r),(\alpha,s)} \frac{p_{(\alpha,s)}}{m_{\alpha}} \right) \quad (4)$$

と定義し、その束縛を与えたカノニカルアンサンブルを考えることで、CG系のエネルギーは次のように定義される。

$$E_{\text{CG}} \equiv \frac{1}{Z} \left(\prod_{\alpha} \prod_r^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} \int du_{(\alpha,r)} dp_{(\alpha,r)} \right) E_{\text{atom}} \exp \left(-\frac{E_{\text{atom}}}{k_B T} \right) \Delta \quad (5)$$

ここで Z は E_{atom} の分配関数を表す。つまり式(5)は、原子系の全てのフォノンモードを考慮したうえで CG 粒子変位を固定した式である。

次に、重みマトリクス $\mathbf{f}$ について考える。 $\mathbf{f}$ は各 CG 粒子に関する原子の重みの合計が 1 になるという条件下で自由に定義できる。ここでは有限要素法における $3N_{\text{CG}} \times 3N_{\text{atom}}$ の形状マトリクス $\mathbf{N}$ から $\mathbf{f}$ を導く方法を紹介する。 $\mathbf{N}$ を用いた原子と CG 粒子の変位の関係式は、次のように表される。

$$u_{(\alpha,r)} = \sum_i \sum_s^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} [\mathbf{N}^t]_{(\alpha,r),(i,s)} U_{(i,s)} \quad (6)$$

ここで t は行列の転置を表す。式(2)を式(6)に代入し両辺左側から $\mathbf{N}$ を乗算すると、次の関係式が得られる。

$$\sum_{\beta} \sum_s^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} N_{(i,s),(\beta,s)} u_{(\beta,s)} = \sum_j \sum_s^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} \sum_{\beta} \sum_t^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} [\mathbf{N}\mathbf{N}^t]_{(i,r),(j,s)} f_{(j,s),(\beta,t)} u_{(\beta,t)} \quad (7)$$

$\mathbf{N}\mathbf{N}^t$ は対称行列なので逆行列をもつ。これより $\mathbf{f}$ と $\mathbf{N}$ の関係は次のように得られる。

$$f_{(i,r),(\alpha,s)} = \sum_j \sum_t^{N_{\text{atom}} \text{ axes}} [(\mathbf{N}\mathbf{N}^t)^{-1}]_{(i,r),(j,t)} N_{(j,t),(\alpha,s)} \quad (8)$$

式(5)について、デルタ関数をフーリエ表示に変換し Gauss 積分を施すことにより、 E_{CG} は解析的に以下のように導かれる。

$$E_{\text{CG}} = E_{\text{int}} + \frac{1}{2} \sum_i \sum_j^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} \sum_r \sum_s^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} \left(\dot{U}_{(i,r)} M_{(i,r),(j,s)} \dot{U}_{(j,s)} + U_{(i,r)} K_{(i,r),(j,s)} U_{(j,s)} \right) \quad (9)$$

ここで $E_{\text{int}} \equiv 3(N_{\text{atom}} - N_{\text{CG}})k_B T$ である。式(9)中の $\mathbf{K}$ と $\mathbf{M}$ はそれぞれ CG 系の剛性マトリクスと質量マトリクスで、 $3N_{\text{CG}} \times 3N_{\text{CG}}$ の対称マトリクスである。それぞれ $\mathbf{f}$ を用いて次のように表される。

$$K_{(i,r),(j,s)} = [(\mathbf{f}\mathbf{D}^{-1}\mathbf{f}^t)^{-1}]_{(i,r),(j,s)} \quad (10)$$

$$M_{(i,r),(j,s)} = \left[(\mathbf{f} \mathbf{m}^{-1} \mathbf{f}^t)^{-1} \right]_{(i,r),(j,s)} \quad (11)$$

式(11)中の $\mathbf{m}$ は原子系の質量マトリクスで、 $3N_{\text{atom}} \times 3N_{\text{atom}}$ の対角行列である。 $\mathbf{m}$ の対角要素は $m_{(\alpha,r),(\alpha,r)} = m_\alpha$ で、それ以外の要素は0となる。式(9)の第2項には温度 T は含まれていない。それは式(5)からの変換の過程で温度の項が解析的に消えたためであり、式(9)には原子系のフォノンモードを通して有限温度の効果が含まれている。

CG粒子 i の運動量を

$$P_{(i,r)} \equiv \frac{\partial E_{\text{CG}}}{\partial \dot{U}_{(i,r)}} = \sum_j \sum_s^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} M_{(i,r),(j,s)} \dot{U}_{(j,s)} \quad (12)$$

と定義すると、CG系のハミルトニアン $H_{\text{CG}} \equiv E_{\text{CG}} - E_{\text{int}}$ は次のようになる。

$$H_{\text{CG}} = \frac{1}{2} \sum_i \sum_j \sum_r \sum_s^{N_{\text{CG}} \text{ axes}} \left(P_{(i,r)} [\mathbf{M}^{-1}]_{(i,r),(j,s)} P_{(j,s)} + U_{(i,r)} K_{(i,r),(j,s)} U_{(j,s)} \right) \quad (13)$$

式(10)から、 $\mathbf{K}$ を求めるには $\mathbf{D}^{-1}$ の計算が必要となるが、周期境界条件または自由境界条件を課した系では $\mathbf{D}$ は固有値にゼロを含むために逆行列を持たない。この問題を避けるために、例えば $\mathbf{D}$ の対角要素に微小値 χ を加えて逆行列演算を可能にするという方法がある。

$$K_{(i,r),(j,s)} = \left[\mathbf{f} (\mathbf{D} + \chi \mathbf{I})^{-1} \mathbf{f}^t \right]_{(i,r),(j,s)} \quad (14)$$

ここで $\mathbf{I}$ は $3N_{\text{atom}} \times 3N_{\text{atom}}$ の単位行列を表す。その他、原子を一つ選び位置を固定する等の方法もあるが、本研究では前者の方法を選択し、剛性マトリクスの計算には式(14)を用いている。

原子系のフォノンモードを統計的にくりこむことによってCG粒子の変位を定義した結果、CG粒子間相互作用は長距離となる。隣接原子のみと相互作用する系、例えばバネモデルなどに対してCG系への変換を施した場合でも、やはりCG粒子間相互作用は長距離となる。1次元ばねモデルについてのフォノン分散解析と弾性波伝播解析の結果、粗視化粒子法は有限要素法よりもよい結果が得られている¹³。これはフォノンモードを全て取り入れることに関係するCG粒子間の長距離相互作用が重要であることを示している。

3. 粗視化粒子法の修正とハイブリッド化

本章では始めにオリジナル粗視化粒子法の制限を克服するための修正法を示し、次

に修正された粗視化粒子法と古典分子動力学法とのハイブリッド化について説明する。

3.1. 粗視化粒子法の修正

前章で示したオリジナルの粗視化粒子法には、現実的な系に適用するうえで2つの制限がある。一つは、CG系の剛性マトリクス式(14)中に含まれる動力学マトリクス $\mathbf{D}$ の逆行列計算は $O(N_{\text{atom}}^3)$ の計算コストがかかるため、原子数の大きな系に対して粗視化粒子法を適用することが難しいことである。 $\mathbf{D}$ の逆行列計算にかかる計算コストを削減する方法として、ここではCG粒子間ポテンシャルにカットオフ距離を導入する。この方法では、系全体に対してCG変換を行わず、代わりにカットオフ距離に応じたサイズのスーパーセルを考え(以後は仮想系と呼ぶ)、CG粒子間相互作用をカットオフ距離内に限定する。設定した仮想系に対してCG変換を行い仮想系の剛性マトリクス値のテーブルを作成し、得られた剛性マトリクスをオリジナル系に適用する、という手順を踏む。仮想系に含まれる原子数はオリジナルの系の原子数に比べて格段に少ないため、計算コストを大幅に削減することが可能となる。カットオフ距離を導入することで計算精度の低下が見られるが、仮想系のサイズの拡大とともに計算精度は向上するので、計算精度と計算速度のバランスを考えて仮想系のサイズを決定するとよい。

もう一つの制限は、オリジナル粗視化粒子法におけるCG系ハミルトニアンはCG粒子変位を変数とする関数であるため、平衡位置自身に変化するような大規模変形を表すことができないことである。ここでは、CGポテンシャル(式(13)第2項)に含まれる変数をCG粒子変位ベクトル $U_{(i,r)} \equiv X_{(i,r)} - X_{(i,r)}^{(0)}$ からCG粒子相対位置ベクトル

$R_{(i,j),r} \equiv X_{(j,r)} - X_{(i,r)}$ へ変換することで、この制限の克服を試みる。原子系を成す動

力学マトリクス $\mathbf{D}$ は原子間ポテンシャルから得られる。 $\mathbf{D}$ には、任意の行の要素の和は0で、特に対角要素以外の要素の和が対角要素に-1を乗算した値と一致する、つまり $D_{(\alpha,r),(\alpha,s)} = -\sum_{\beta \neq \alpha} D_{(\alpha,r),(\beta,s)}$ となる性質がある。そして、式(14)から得られるCG系の

剛性マトリクス $\mathbf{K}$ についても原子系と同様の性質、つまり

$$K_{(i,r),(i,s)} = -\sum_{j \neq i} K_{(i,r),(j,s)} \quad (15)$$

という性質がある。これは、系の平行移動を意味するベクトル $\mathbf{C}$ を考えると、CG粒子変位が $\mathbf{U}$ の時のCG系ポテンシャルの値と、CG粒子変位 $\mathbf{U}$ に $\mathbf{C}$ を付与した時のCG系ポテンシャルの値が一致することを意味する：

$$\begin{aligned}
E_{\text{CG}}^{\text{pot}} &= \frac{1}{2} \sum_i^{N_{\text{CG}}} \sum_{j \neq i}^{N_{\text{CG}}} \sum_r^{\text{axes}} \sum_s^{\text{axes}} U_{(i,r)} K_{(i,r),(j,s)} U_{(j,s)} \\
&= \frac{1}{2} \sum_i^{N_{\text{CG}}} \sum_{j \neq i}^{N_{\text{CG}}} \sum_r^{\text{axes}} \sum_s^{\text{axes}} (U_{(i,r)} + C_r) K_{(i,r),(j,s)} (U_{(j,s)} + C_s)
\end{aligned} \tag{16}$$

式(16)を用いると、CG 系ポテンシャルは次のように変形できる。

$$E_{\text{CG}}^{\text{pot}} = - \sum_i^{N_{\text{CG}}} \sum_{j \neq i}^{N_{\text{CG}}} \sum_r^{\text{axes}} \sum_s^{\text{axes}} (R_{(i,j),r} - R_{(i,j),r}^{(0)}) K_{(i,r),(j,s)} (R_{(i,j),s} - R_{(i,j),s}^{(0)}) \tag{17}$$

ここで $R_{(i,j),r}^{(0)}$ は平衡状態における CG 粒子相対位置ベクトル値を表す。式(17)より、

変数変換を行った $E_{\text{CG}}^{\text{pot}}$ は $R_{(i,j),r}$ の関数となり、CG 系の移動や線形の範囲内での系の膨張を扱うことが可能となる。

仮想系の剛性マトリクスを計算する際、周期境界条件を用いてバルク系を仮定する。それ故、表面（系内部の空洞なども含む）を持つ系に対して得られた仮想系の剛性マトリクスを適用すると、表面から非物理的な破壊が生じるなどの不具合が発生する。表面に配置された粒子には、粒子を固定するべき「梁」の役割を持つ粒子が存在しないため、表面付近の粒子面が滑る方向にエネルギーが低い状態がある。これが表面粒子が崩れる原因となっている。この問題を解決するため、系の局所的回転角度を動的に計算し、系のポテンシャル計算の際に回転補正を行うことを考える。局所的回転補正を導入することで、表面粒子面の滑りを防ぐ効果が期待できる。CG 粒子 i 、 j を含む局所領域の角度を初期の参照軸に回転して戻すための回転行列を $\mathbf{Q}^{(i,j)}$ とすると、

回転補正後の CG 粒子 i 、 j 間距離 $R'_{(i,j),r}$ は $R'_{(i,j),r} = \sum_s^{\text{axes}} Q^{(i,j)}_{r,s} R_{(i,j),s}$ と記述できる。これより局所的回転補正を導入した CG 系ポテンシャルは

$$E_{\text{CG}}^{\text{pot}} = - \sum_i^{N_{\text{CG}}} \sum_{j \neq i}^{N_{\text{CG}}} \sum_r^{\text{axes}} \sum_s^{\text{axes}} (R'_{(i,j),r} - R_{(i,j),r}^{(0)}) K_{(i,r),(j,s)} (R'_{(i,j),s} - R_{(i,j),s}^{(0)}) \tag{18}$$

となる。

以上の修正により、オリジナル粗視化粒子法では扱いが難しいサイズの系に対しても適用可能となる。図 1 は、サイズ(x,y)~(1400,1200)Å、粒子数 128164 個からなる中央部に切り欠きを含む 2 次元アルゴン系に対し、横方向に微小な引張応力を与え構造緩和を行った時の xx 方向の内部応力分布 σ_{xx} と、粗視化比率 CG:atom=1:36 の CG 変換を施した系に対し同様の処置を行った時の内部応力分布を比較した結果である。CG 系の結果は、応力が集中する切り欠き先端部を含め原子系の結果とよい一致を見せていることがわかる。また構造緩和に必要とする計算時間を比較すると、CG 系は原子系に比べ約 60 倍の計算速度向上が見られた。これより、修正を行った粗視化粒

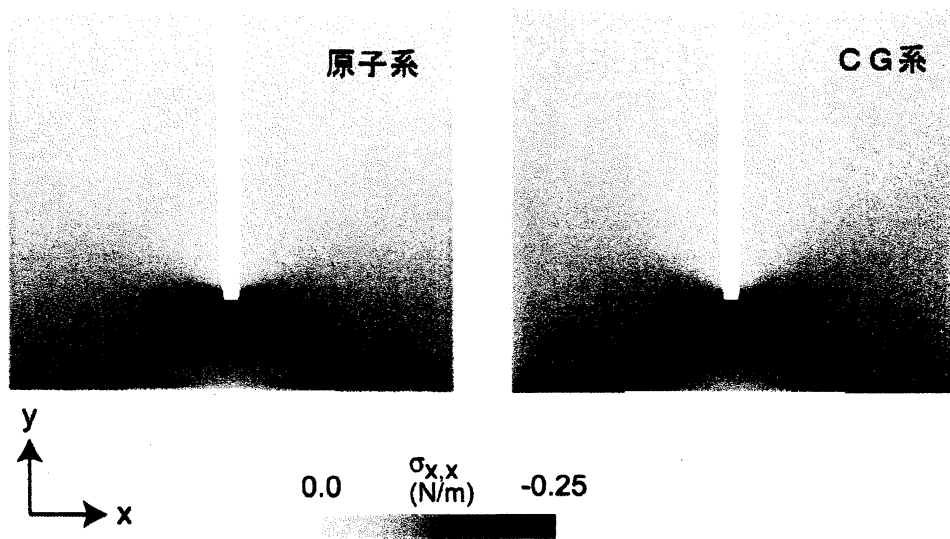


図 1: 切り欠き系に対し x 方向に 1% 引き延ばした時の応力分布。系のサイズは $(x,y) \sim (1400, 1200) \text{ \AA}$ で、切り欠きのサイズは幅 $30 \text{ \AA}$ 、深さ $900 \text{ \AA}$ 。原子系での原子数は 128164 個、CG 系での CG 粒子数は 3555 個。

子法は計算精度と計算速度を両立できることが示された。

3.2. 粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化

粗視化粒子法において原子位置に CG 粒子を配置する、つまり粗視化比率を $\text{CG:atom}=1:1$ にすると、得られる剛性マトリクスは原子系の動力学マトリクスと完全に一致する。それ故に、CG 系と原子系との接続は非常に容易である。そこで最初に、解析を行う系に対し CG 粒子を定義する。その際、原子レベルの解析を行いたい領域を選択し、クラスター領域と定義する。クラスター領域とその周辺においては、粗視化比率を $\text{CG:atom}=1:1$ とし CG 粒子位置と原子位置を一致させる。今、いくつかのクラスター領域を含んだ CG 系、つまり粗視化粒子/分子動力学ハイブリッド系のハミルトニアン $H(\mathbf{r}_{\text{all}}, \mathbf{p}_{\text{all}})$ を次のように定義する。

$$H(\mathbf{r}_{\text{all}}, \mathbf{p}_{\text{all}}) \equiv H_{\text{CG}}^{\text{system}}(\mathbf{r}_{\text{all}}, \mathbf{p}_{\text{all}}) + \sum_{\text{cluster}} \{E_{\text{MD}}^{\text{cluster}}(\mathbf{r}_{\text{cluster}}) - E_{\text{CG}}^{\text{cluster}}(\mathbf{r}_{\text{cluster}})\} \quad (19)$$

ここで $\mathbf{r}_{\text{all}}$ 、 $\mathbf{p}_{\text{all}}$ はそれぞれ系全体の粒子位置ベクトルと運動量ベクトル、 $\mathbf{r}_{\text{cluster}}$ 、

$\mathbf{p}_{\text{cluster}}$ はそれぞれクラスター領域の粒子位置ベクトルと運動量ベクトルを表す。

$H_{CG}^{system} \equiv E_{kin}(\mathbf{p}_{all}) + E_{CG}^{system}(\mathbf{r}_{all})$ は系全体の CG ハミルトニアンで、 E_{kin} は系の運動エネルギー、 E_{CG}^{system} は系全体の CG ポテンシャルエネルギーである。 $E_{MD}^{cluster}$ 、 $E_{CG}^{cluster}$ はそれぞれクラスター領域の原子系ポテンシャルエネルギーと CG ポテンシャルエネルギーを表す。以後、原子系ポテンシャルを用いて解析する原子クラスターを MD クラスター、CG ポテンシャルを用いて解析する原子クラスターを CG クラスターとする。式(19)の第 2 項は、CG 系の一部を原子系にするためのエネルギー補正項となる。式(19)より、クラスター内部に属する粒子同士の相互作用は $E_{MD}^{cluster}$ 、クラスター外部に属する粒子同士の相互作用、クラスター内部に属する粒子とクラスター外部に属する粒子との相互作用は E_{CG}^{system} にて表される。

しかし式(19)をそのまま用いると、本来バルク中に属するクラスター領域をそのままの状態に計算するためクラスター表面において表面効果が生じ、クラスター領域の接続部付近で CG 領域との不整合が発生してしまう。この問題を防ぐため、尾形によって開発された buffered-cluster 法を用いる¹⁵。buffered-cluster 法では、クラスター表面に発生する表面効果を最小化するため、式(19)第 2 項の計算の際にクラスターの周囲に仮想粒子（以下 buffer 粒子と呼ぶ）を配置する。buffer 粒子を考慮したときのハイブリッド系ハミルトニアンは次のようになる。

$$H(\mathbf{r}_{all}, \mathbf{p}_{all}) \equiv H_{CG}^{system}(\mathbf{r}_{all}, \mathbf{p}_{all}) + \sum_{cluster} \{ E_{MD}^{cluster}(\mathbf{r}_{cluster}, \mathbf{r}_{buffer}^{MD}) - E_{CG}^{cluster}(\mathbf{r}_{cluster}, \mathbf{r}_{buffer}^{CG}) \} \quad (20)$$

ここで $\mathbf{r}_{buffer}^{MD}$ 、 $\mathbf{r}_{buffer}^{CG}$ はそれぞれ原子系と CG 系の buffer 粒子位置ベクトルを表す。

4. 粗視化粒子-分子動力学ハイブリッドシミュレーション法

の応用例

前章で提案した粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化法の応用として、アルゴン薄板の弾性波伝播解析を行う。弾性波伝播解析を行うため、サイズ $(x,y,z) \sim (110,55,16)\text{\AA}$ 、原子数 2000 個のアルゴン薄板系を準備する。板の片面から約 $30\text{\AA}$ の領域を原子クラスター領域とし、残りを CG 領域とする。CG 領域において、CG 領域と原子クラスターの境界（以後 CG/MD 境界と呼ぶ）から約 $20\text{\AA}$ の領域は粗視化比率 CG:atom=1:1、つまり CG 粒子と原子を一致させ、残りの領域については粗視化比率 CG:atom=1:4 とする。この結果、原子クラスター領域の原子数は 888 個、CG 領域の粒子数は 882 個となり、ハイブリッド系に含まれる総粒子数は 1770 個と

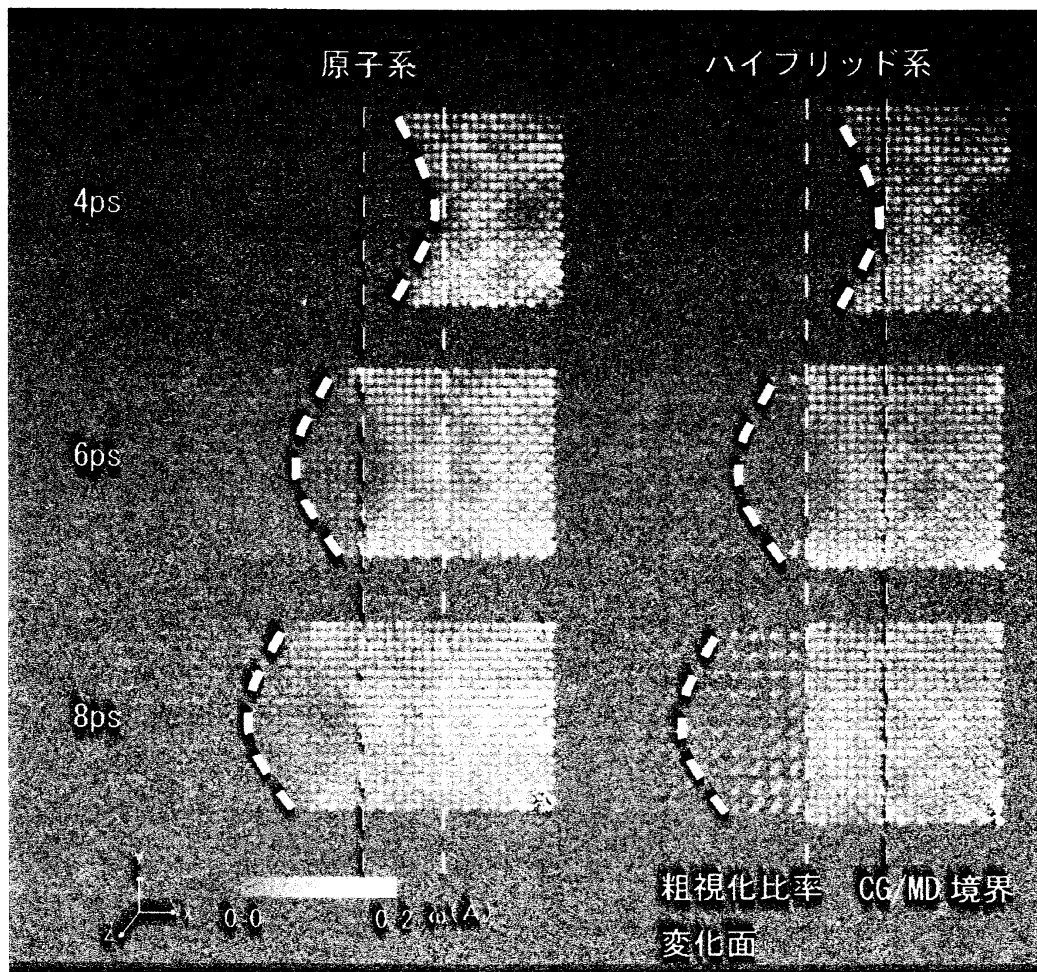


図 2 : 3 次元アルゴン薄板の弾性波伝播解析（弾性波発生から 4ps, 6ps, 8ps 後）。右列は粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化法を用いて解析した結果で、左列は通常の分子動力学法を用いて解析した結果を表す。ハイブリッド系中の細い破線は右から粗視化比率変化面、CG/MD 境界を表す。粒子の色は局所粒子数密度、系中の太い破線は弾性波の先端部を表す。

なる。次に yz 面中央部に微小変位を与え、発生した弾性波の振る舞いを粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化法を用いて観察する。薄板中の弾性波の記述には、各粒子の初期位置からの距離

$$w_i \equiv \left| \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_i^{(0)} \right| \quad (21)$$

を用いる。また系全体を原子で扱った通常の原子系についても同様の解析を行い、ハイブリッド系と原子系の弾性波伝播の比較を行う。

図 2 に、弾性波発生後 4ps, 6ps, 8ps の弾性波伝播のスナップショットを示す。ハイ

ブリッド系の図中の細い破線は CG/MD 境界を表す。原子系の図中の破線は、ハイブリッド系における CG/MD 境界と内部で粗視化比率が変化する境界、それぞれに対応する位置を表す。図中の太い破線は進行する弾性波の先頭を表す。結果より、ハイブリッド系の弾性波は CG/MD 境界、粗視化比率が変化する境界においても弾性波に不可解な事象は見られず、原子系のそれとほぼ一致していることがわかる。計算速度については、本解析において原子系とハイブリッド系でほとんど違いが見られなかった。本解析の粗視化領域における粗視化比率が CG:atom=1:4 と小さかったことに加え、系全体に対してクラスター領域が占める割合が大きいことから、ハイブリッドシミュレーション法におけるクラスター領域の計算重複、buffer 原子の余剰計算の影響が大きくなったことが原因と思われる。よって、粗視化比率の拡大、クラスター領域の適切な選択を行うことにより計算速度の向上が期待できる。

5. まとめ

本研究では、新しい粗視化法の一つである粗視化粒子法について、応用性を高めるための修正を行った。オリジナルの粗視化粒子法には、計算時間過多、平行移動不可という2つの問題があった。計算時間の問題に対しては、仮想系の導入によるカットオフ距離を設定することで計算時間を大幅に削減することができた。平行移動の問題に対しては、粗視化粒子ポテンシャルの変数を粗視化点の平衡状態からの変位から、粗視化点間距離に変換することで解決した。仮想系の導入により表面を持つ系が非物理的な破壊を起こすという新たな問題が発生したが、これに対しては局所的回転補正を粗視化ポテンシャルに導入することで解決した。これらの修正を施した修正粗視化粒子法について、2次元アルゴン系を用いて計算精度の検証を行った結果、内部応力解析では計算精度の保持を確認できたと同時に、計算速度の大幅な向上が見られた。

次に、修正粗視化粒子法と原子系とを接続した粗視化粒子-分子動力学ハイブリッドシミュレーション法の開発を行った。ハイブリッド化には buffered-cluster 法を用いた。計算精度検証の結果、粗視化粒子系-原子系接続境界、粗視化比率変化境界ともに精度が保たれていることを確認した。開発した粗視化粒子-分子動力学ハイブリッド化法の応用例として、アルゴン薄板系における弾性波の伝播解析を行った。原子クラスター領域で発生した弾性波が、粗視化粒子系-原子系接続境界、粗視化比率変化境界を問題なく伝播することが確認できた。また、原子系の結果と比較した結果、よい精度で伝播していることがわかった。

今回の研究によって、粗視化粒子-分子動力学ハイブリッドシミュレーション法の大きな汎用性を示すことができた。ハイブリッドシミュレーション法を用いた今後の発展として、材料設計への応用、原子スケールから見た材料の破壊現象の機構解明などが挙げられる。また、本手法と流体理論との接続を行うことで、実機環境により近い環境を模擬したシミュレーションが可能となり、実用材料開発において産業界に大

きな貢献ができると期待される。

参考文献

- 1 J.H.Fendler, *Nanoparticles and Nanostructured Films* (Wiley-VCH, NY, 1998)
- 2 IEEE, *Microelectromechanical Systems (MEMS), 1999 IEEE 12th International* (IEEE, NY, 1999)
- 3 T.L.Anderson, *Fracture Mechanics, 2nd Ed.* (CRC Press N.Y., 11995)
- 4 A.Nakano, M.E.Bachlechner, P.Branicio, T.J.Campbell, I.Ebbsjö, R.K.Kalia, A.Madhukar, S.Ogata, A.Omeltchenko, J.P. Rino, F.Shimojo, P.Walsh, and P.Vashishta, *IEEE Trans. Electron Devices* 47, 1804 (2000).
- 5 A.Nakano, M.E.Bachlechner, R.K.Kalia, E.Lidorikis, P.Vashishta, G.Z.Voyiadjis, T.J.Campbell, S.Ogata, and F.Shimojo, *IEEE Comp. Sci. & Eng.* 3, 56 (2001).
- 6 J.Q.Broughton and F.A.Abraham, N.Bernstein, and E.Kaxiras, *Phys. Rev. B* 60, 2391 (1999).
- 7 M.P.Allen and D.Tildesley, *Computer Simulation of Liquids* (Clarendon, Oxford, 1987).
- 8 K.Tsuruta, C.Totsuji, H.Totsuji, and S.Ogata, *Trans. Mat. Res. Soc. Jpn.* 29, 3669 (2004)
- 9 S.Ogata, F.Shimojo, and A.Nakano, P.Vashishta, and R.K.Kalia, *J. Appl. Phys.* 95, 5316 (2004).
- 10 F.E.Abraham, J.Q.Broughton, N.Bernstein, and E.Kaxiras, *Comp. Phys.* 12, 538 (1998).
- 11 R.D.Cook, D.S.Malkus, and M.E.Plesha, *Concepts and Applications of Finite Element Analysis, 3rd Ed.* (Wiley, NY, 1989).
- 12 E.B.Tadmor, M.Ortiz, R. Phillips, *Phil. Mag. A* 73, 1529 (1996).
- 13 R.E.Rudd and J.Q.Broughton, *Phys. Rev. B* 58, R5893 (1998).
- 14 N.W.Ashcroft and N.D.Mermin, *Solid State Physics, HRW Int'l Ed.* (Saunders College, Philadelphia, 1976).
- 15 S.Ogata, *Phys. Rev. B* 72, 45348 (2005).