

課題名 (タイトル) :

相対論的量子モンテカルロ法の開発

利用者氏名 : 中塚 温

理研での所属研究室名 : 計算科学研究機構 量子系分子科学研究チーム

1. 本課題の目的

電子状態を精密に考慮することは、様々な物性・物質の解析・設計を行う上で重要である。『京』に代表される超並列計算機を活用して、従来扱えなかったサイズ・精度での触媒設計・反応解析を行うために、高並列かつ低スケールな高精度電子相関手法が求められる。量子モンテカルロ法は、統計的手法に基づく手法で、高並列性・計算コストスケール面での利点を持った高精度電子相関手法である。しかし、現状の量子モンテカルロ法は安定性・適応範囲の点で多くの改良すべき点がある。その一つとして、重原子に対して重要な相対論効果を取り込む手法の欠如がある。これに対し、これまで相対論 Hamiltonian に基づき、相対論的変分モンテカルロ (ZORA-VMC) 法と、対応するカスプ補正法を開発してきた。本課題ではより高精度な拡散モンテカルロ (DMC) 法への拡張と適用を行い、また ZORA-DMC 法を簡便に取り扱えるプログラムの開発を行うことを目的とする。

2. 具体的な利用内容、計算方法

開発した相対論的 QMC 法プログラム『R4QMC』のデバッグ・実行環境として RICC を利用した。小分子系に対するテスト計算を RICC で行った。また、タスク単位での並列化を行い、RICC でのテスト計算を行った。

3. 結果

軽原子を含む小分子系の計算で ZORA-DMC 法と、これまでに開発した ZORA カスプ補正法を組み合わせることで、非相対論 DMC 法と同程度の電子相関効果と、相対論効果を同時に取り込んだ安定した電子状態計算が可能であることが示された。更に、CuH 分子の解離エネルギー計算に ZORA-DMC 法を適用し、実験値 0.1014 a.u.

に対して、計算値 0.09(3) a.u.を得た。電子相関効果を含まない ZORA-Hartree-Fock 法での計算値 0.067 a.u.であり、銅原子程度の重さの金属原子に対しても、ZORA-DMC 法がある程度安定的に適用可能であることが示された。これらの結果は現在論文として執筆中である。

また、RICC を用いたタスク単位の並列計算では、最大 8192 コアまでの並列計算を行い、ほぼ 100% の並列化効率を達成した。

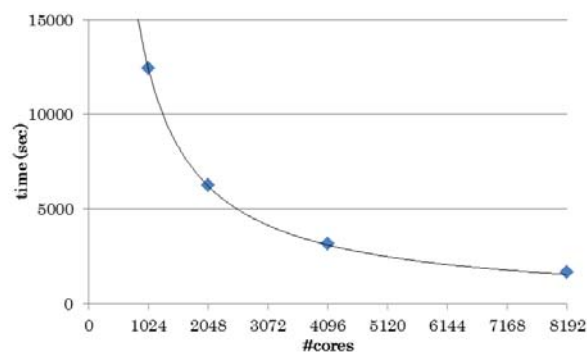


図. 計算規模を固定した並列数に対する計算時間プロット。曲線は $1/(\text{コア数})$ の理想曲線

4. まとめ

ZORA Hamiltonian に基づく相対論的拡散モンテカルロ法の理論・プログラムを開発し、RICC 上でテスト計算を行った。また、タスク単位の並列計算を行う形にプログラムを修正し、RICC での並列化効率の計測を行った。

5. 今後の計画・展望

スピン-軌道相互作用まで含んだ相対論効果を QMC 法に取り入れる。現在タスク単位で行っている並列化を、1 サンプル生成の並列化まで拡張し、数十分子の系に適用する。

6. RICC の継続利用を希望の場合は、これまで利用した状況 (どの程度研究が進んだか、研究におい

平成 23 年度 RICC 利用報告書

てどこまで計算出来て、何が出来ていないか)や、
継続して利用する際に行う具体的な内容

本研究の最終的な目的は、相対論効果と電子相関効果を同時に取り扱える、高並列かつ汎用的な、量子化学計算用の理論・プログラムを作ることである。量子化学の対象となる分子系は数原子程度の問題から百原子以上の問題まで様々にあるが、これまでの研究では小分子系に絞って理論の精度と計算の安定性を検証するにとどまっていた。この段階では、相対論効果と電子相関効果の記述に関しては期待される結果が得られたので、より現実的な、原子数の多い系、より重い原子を含む系へ適用するためのプログラムの効率化、詳細な並列化などのチューニングを行っていく。次年度も RICC を、特に並列性能の確認・改善のための環境として利用したい。

平成 23 年度 RICC 利用研究成果リスト

【論文、学会報告・雑誌などの論文発表】

なし

【国際会議などの予稿集、proceeding】

なし

【国際会議、学会などでの口頭発表】

○中塚温・中嶋隆人、相対論的拡散モンテカルロ法の開発、第 5 回分子科学討論会 2011 札幌、2011 年 9 月 20 日、札幌.

【その他】

なし