

カーボンナノチューブの大規模シミュレーション研究

(財)高度情報科学技術研究機構

計算科学技術第二部

手島 正吾、神保 昇、朴 魯政、
南 一生、中村 壽

はじめに

近年、原子分子等の微小な世界の現象を人類の技術に利用するナノテクノロジーが急速に発展してきている。特に、カーボンナノチューブ(以降、ナノチューブ)及びカーボンフラレン類(以降、フラレン)はナノテクノロジーの基本材であり、従来の材料にはない多くの優れた性質を持ち、多彩な応用分野があることが分かってきた。

ナノチューブ及びフラレン類の研究開発には様々なアプローチが取り組まれているが、これらの構造安定、電子状態の性質が実験に先駆けて理論で解明された経緯から、この分野では計算機科学手法が威力を發揮している。

我々は、世界最大、最速の地球シミュレータを利用して、大規模並列シミュレーションソフトウェアを開発し、カーボン類の熱・機械基本特性、熱安定性、新素材開発などを評価するナノシミュレーションを実施した。これまで、いくつかユニークな結果を得ることができたのでここに紹介する。

Keywords : 地球シミュレータ、大規模並列シミュレーション、カーボンナノチューブ

1. 導入

ナノチューブやフラレンを使った、電解放出、水素吸蔵、カーボン結合などの多くの

応用例が報告されており、ナノ炭素材は新しい時代を築く技術であると期待されている。

しかし、これらのテクノロジーを効果的に産業に導入するためには、計算機シミュレーションによる詳細な設計が必要となる。

我々は地球シミュレータ向けに分子動力学量子計算並列ソフトウェアを開発した。このソフトウェアは原子群が非対称に配置されても大規模なシミュレーションに適しており、地球シミュレータで高速及び大規模シミュレーションに適している。現在、量子現象を扱える大規模シミュレーションは、 10^4 ほどの多量の粒子(原子)系の振る舞いを把握することができる性能を有している。

最近の研究として、ナノチューブの熱伝導¹⁾、ピーポッド^(3,4)(ナノチューブの中空部にフラレンを内包させたもので、その形がソラマメ煮に似ていることからこの英語名がついた)の形成プロセス、高温下のスーパーダイヤモンド構造の安定性¹⁾、マッカーイ構造の硬さ⁽²⁾、ナノダイヤモンドの創製^(5,6)などのテーマを実施した。

我々の目的は、ナノスケールにおける物理現象、ナノ炭素類の特性の解釈を明確化して、大規模シミュレーションを用いてナノ構造から新材料をデザインする指導原理を確立することである。

2. 研究活動

ナノチューブの大規模シミュレーション研究を地球シミュレータで実施するにあたり、我々は「カーボンナノチューブ シミュレーション研究会」なるコンソーシアムを実験、理論、計算機技術の専門家と組織して、意見交換をしながら、研究を進めている。主なメンバーは、遠藤ファイバー、遠藤電池で有名な遠藤守信教授(信州大学)、理論のバイオニア斎藤理一郎教授(東北大学)、斎藤晋教授(東京工業大学)、フラーレンの存在を実験に先駆け理論で予測した大澤映二先生(豊橋技大名誉教授)、ナノチューブの物理では世界的権威トマネク教授(米国ミシガン州立大)といったカーボンナノチューブ及びフラーレン分野では世界をリードしている研究者から成り立ち、重要なテーマを議論しながら選び、その大規模シミュレーションを地球シミュレータを利用して進めている。このうちRISTは主に、大規模シミュレーション等に係わる計算科学の役目を担い、地球シミュレータを十二分に発揮する高度な並列ソフトウェアの開発を行っている。

3. 研究内容

3.1 熱伝導のシミュレーション⁽¹⁾

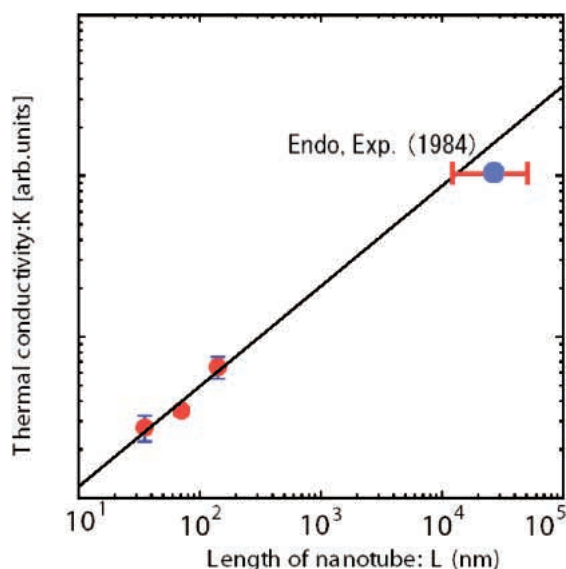
はじめに、計算手法を簡単に述べる。

強結合分子動力学(以降、MD)シミュレーションは原子レベルの構造体の動的振る舞いを研究するのに適している。4つの原子の軌道(s, px, py, pz)を基底に電子波動の計算も行い、近接原子と相互作用するモデルである。計算量を軽減するために炭素系に特化しており、局所密度近似して得たグラファイトシート、バルクダイヤモンド、2炭素原子などの電子構造を大局的に再現するようにパラメータを導入して、計算の高速化が図られている。

原子に作用する力を決めるアルゴリズムは、粒子ごとに独立に電荷密度を求めること

ができるため、並列計算に対して高い適応性があり、この実装は大規模並列シミュレーションを行うMD計算性能に強力な優位性を与えている。

ダイヤモンドは強固なsp³ポンドを持つために、高い熱伝導率をもつ物質のひとつである。ダイヤモンドの熱伝導率は332[W/m・K]であり、銅にくらべて約8倍高いため、更に強固なsp²ポンドにより結合するナノチューブは、非常に高い熱伝導率が期待されている。しかし、実験でこの値を調べることは、ナノスケールの実験となるゆえに、技術的に難しく、またその精度も問題となる。そこで、我々は理論的に熱伝導の大規模シミュレーションを通じて求め、産業界、科学界の標準的な値を提供することにした。従来のシミュレーションでは原子数はたかだか数百から千程度であったが、我々は最大4万粒子のナノチューブの熱伝導について大規模シミュレーションにより求めた。



図(1) ナノチューブの熱伝導率の長さ依存性

シミュレーションの結果、数百ナノメートルのナノチューブの熱伝導率は長さ依存性があることが分かった。熱伝導は熱を運ぶ格子振動が散乱せずに進める距離(平均自由行程)

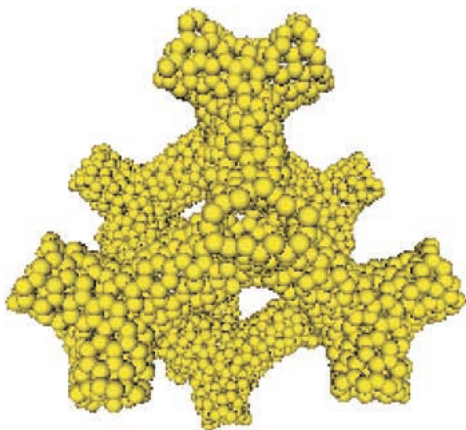
に支配されるが、ナノチューブの平均自由行程が長いために、試料の長さに熱伝導率が依存していると考えられる。しかしその依存性は3次元構造のものとは大きく異なり、図(1)では1次元的なべき乗を示すことがナノチューブの特徴と言える。今後、熱伝導のナノチューブ構造がもつ螺旋度に対する依存性、温度依存性、同位体効果などさらに評価を進め、高い熱伝導率をもつナノチューブの発見とメカニズム研究を進めている。

3.2 スーパーダイヤモンドの安定化のシミュレーション⁽¹⁾

スーパーダイヤモンド構想の安定性に関して大規模シミュレーションを行った。この構造は、ダイヤモンド構造の格子間をカーボンナノチューブ結んでいて、ナノチューブの原子溶接構造体といえる。sp²ボンドの高い構造的安定性から考えて、ダイヤモンド構造は非常に硬いと予想できる。我々は融点から沸点までの詳細な力学特性の研究を行った。

シミュレーションはマクスウェル分布に基づいたランダムな原子速度を与えた後、徐々に温度を上昇させた。シミュレーションの結果、スーパーダイヤモンドはフラレンの融点より高い3000K以上でも安定性を保った。このような熱に強いナノ構造体の研究も進めている。

(図(2)参照)



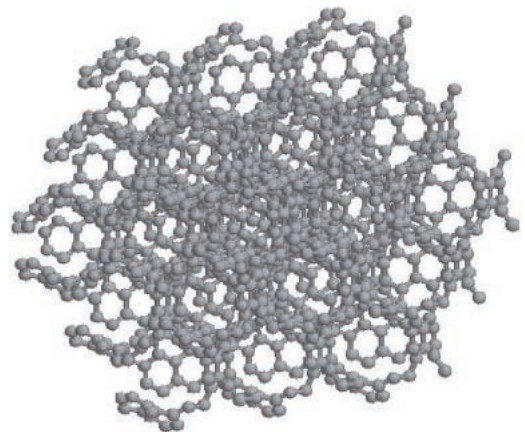
図(2) 3000 Kのダイヤモンド構造

3.3 ジャングルジム構造⁽²⁾

スーパーダイヤモンド構造がナノチューブの原子溶接ならば、ジャングルジム構造はフラレンの原子溶接構造体である。

正のガウス曲率を持ったsp²ボンドのカーボン構造体の研究例は幾つかあるが、負のガウス曲率をもった(ジュバルタイト)ものはほとんどない。なぜなら、現実により上げることが困難であったからである。

しかし最近、ジュバルタイトの研究が進み、正のガウス曲率がクラスター構造を作り易い一方、ジュバルタイトは3次元構造を作り易いことが分かり、顕著な性質も得られてきた。第一原理計算により、図(3)の様なジャングルジム構造の性質は、硬さがダイヤモンドの25%、重さが20%、そしてバンドギャップが0.5eVと半導体的であることが示された。硬く、軽く、電気を流すことができることから、電子デバイスとしての応用が期待できる。

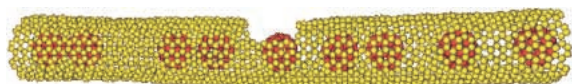


図(3) ジャングルジム構造

3.4 ピーポット生成過程のシミュレーション^(3,4)

ナノチューブの中心の中空部にフラレンが入ったピーポットに対して、安定性のシミュレーションを行った。初期状態では、ナノチューブには欠陥があり、端は開いたままの状態とした。9個のフラレンが12nmのナノチューブの中で15ps(ピコ秒間)運動する

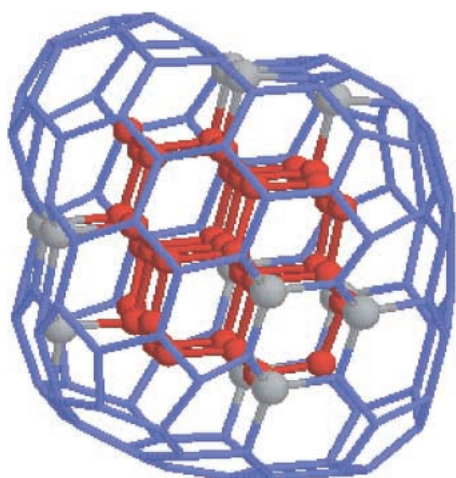
様子を観察した。この間、フラレンは欠陥、ナノチューブの端に近づいても外部には出て行かず、ナノチューブも破壊されないことが示させた。このシミュレーションの結果は、ナノリアクター(ナノスケールの化学反応器)に役立つと期待できる。(図(4)参照)



図(4) 15ps後のピーポットの構造

3.5 ナノダイヤモンド創製^{5,6)}

ナノダイヤモンドは、小さく、硬く、安定であることから吹き付け剤、ナノ研磨などに役立つと期待されている。ナノダイヤモンドは環境の違いにより表面が丸みを帯びた構造体に変化することが分かってきた。しかしそのメカニズムは良く分かっていない。原型を保つためには、(1)高圧力下である、(2)低圧力下では水素原子があること、などが有力とされていたが、これら以外の条件下でも安定であることが最近、確認された。我々は、電荷に着目し、第一原理計算を行い、電子注入によりナノダイヤモンドが原型をとどめることをしました。この結果は、圧力、水素原子に無関係であり、実験事実を再現している。(図(5)参照)



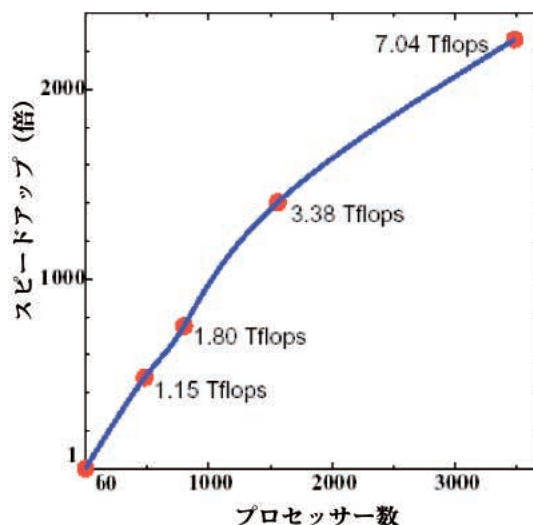
図(5) 再結合によるオニオン構造

4. コードの性能最適化⁽¹⁾

地球シミュレータは、世界で最高速並列計算機であり、各ノードは8ギガフロップス(1秒間に80億回の計算処理)の演算性能をもつ8つのベクトルプロセッサから構成され、16ギガバイトの分散共有メモリを持つ。トータルプロセッサ数は5120で、約40テラフロップス(1秒間に40兆回の計算)の演算性能と10テラバイトの主記憶量を誇る。

RISTは数年前から、東大計算機センタの超並列計算機SR8000を利用して大規模シミュレーション研究を進め、数100並列までは良好な性能が得られていた。そこで地球シミュレータでは、数1000並列で性能が得られるように99.9%以上の並列化効率と高いベクトル性能を目標に大規模ソフトウェアの開発を行った。

大規模シミュレーションでは、原子数4.8万、1万ステップのナノチューブ熱伝導の計算により性能を測定した。最終的に435ノード(3480プロセッサ)を使い17.05テラフロップスのトータル性能が得られた。これは435ノードを使った地球シミュレータの最高演算速度の25.3%に達する。この4.8万粒子、1万ステップの計算量は89ペタフロップ(89京回の計算量)に相当し、435ノードを使った場合約3.5時間で計算可能となる。(図(6)参照)



図(6) 地球シミュレータ上での演算速度

5. まとめ

我々は世界最高性能の地球シミュレータを用いて、カーボンナノチューブ、フラーレンに関する特性推定、及び新物質創製の大規模シミュレーションを世界最初に行い、また世界最高速の演算速度で大規模シミュレーションを実施し、計算科学により新物質設計、評価が可能なことを示すことができた。今後は、こうした研究テーマを広げ、厳しい国際競争にある我が国のナノ、バイオ分野に戦略的優位性の優位性を保つために、大規模シミュレーション技術を確立したい。また、物理学、化学及び計算科学、大学、企業など、いろいろな分野や組織間の垣根を越えた新しい形の研究スタイルの実験モデルを作って行きたい。

参考文献

- 1 . S .Tejima et al ., Massively Parallel Simulation on Large-Scale Carbon Nanotubes , NANOTECH 2003 , San Francisco ,USA ,p102 ,February 2003 .
- 2 . N Park et al 2 , Charging effects on the stability of diamond nanoclusters , APS Austin , USA , A6 011 , March , 2003 .
- 3 . S .Tejima et al . Simulation and in situ observation of the peapod formation process . Quantum Transport in Synthetic Metals and Quantum Functional , Yonsei University , Seoul , Korea , p624 , May , 2002 .
- 4 . S .Tejima et al . Massively parallel simulations of nanotube and peapod formation . International Conference on the Science and Application of Nanotube , Boston College , USA , Su - P + + 3 , July , 2002 .
- 5 . N Park et al . , Diamondoids as functional building blocks for nanotechnology , APS , Austin , USA , G27 . 010 , March , 2003 .
- 6 . N Park et al . , Charging effects on the diamond nanocluster . The 10th International Symposium on Advanced Materials , Tsukuba , Japan , March 2003 .