

Title	スーパーコンピューターを活用した材料設計第一原理 計算の実際
Author(s)	川添, 良幸
Citation	サイバーメディアHPCジャーナル. 2016, 6, p. 17-24
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/70508
rights	
Note	

# Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

# スーパーコンピューターを活用した材料設計第一原理計算の実際

川添 良幸 東北大学 未来科学技術共同研究センター

# 1. はじめに

スーパーコンピューター (以下、スパコン)の歴 史は、1976年にロスアラモス研究所に納入された ベクトル計算機 Cray-1 に始まる。クロック周波数 80MHzの単一 CPU で、ピーク性能 160MFLOPS を 達成した。1981 年に筆者はマックスプランク研究 所で原子核理論の研究用に使い、当時の国産機に比 べ、その絶対的速さに驚いたことを鮮明に覚えてい る。その6年後に、マルチプロセッサで800MFLOPS の Cray X-MP が投入された。その後、日米の数社 がスパコンを作り始め、クロック周波数と CPU 台数 の増大で、ムーアの法則(1年半で2倍の性能向上) が現在に至るまで継続している。日本の計算機メー カのベクトル計算機による寄与には素晴らしいも のがあり、ドンガラ氏の世界トップ 500 レポートに 一番から相当数が登場した時期もあった。残念なが ら、米国との経済摩擦に端を発して独自の CPU を 継続的に作れなくなり衰退した。「京」1台が短期 間トップになるレベルでは如何ともしがたい。さら に、この10年程はクロック周波数は上がらず、CPU が主メモリーを共有するノードとその中のコアと 複雑な構造になることが性能向上の主要因を占め、 本稿で示す第一原理計算分野の実効性能が上がら ない状態になっていることは利用者である我々に とって大問題である。初期の国産スパコンの様に 我々利用者の意見を十分に取り込んで独自開発す ることなく、カタログ性能のみで判断される現状に 問題がある。

HPCI では、従来からの大規模ユーザの分布を基 盤にして5戦略分野を設定しているが、第一原理計 算は主として「予測する生命科学・医療および創薬 基盤」と「新物質・エネルギー創成分野」に関係し ている。防災・減災に資する地球変動予測と次世代 ものづくり分野は、構造計算や流体計算のための有 限要素法、そして、物質と宇宙の起源と構造では大 規模データ保存・処理も重要になる。特に、第一原 理計算で多用される密度汎関数理論(以下 DFT=Density Functional Theory)は、1964年にコー ン教授によって開発された電子多体系の理論で、構 築されて200年近いナビエ・ストークス方程式に比 べれば、未だ50年の歴史しかない発展途上の理論 である。<sup>(1)</sup>さらに量子力学の基礎に関係する困難な 問題を含むために正しい理解がなされず、特に電子 の交換相関相互作用汎関数E<sub>xc</sub>がDFTとしては与え られていないために、実験値に合うパラメータによ り単にスパコンを使って実験的・工業的に興味のあ る対象物に適用される様になりつつあり、とても本 来の第一原理計算とは呼べる状態ではないことに 気がついてさえいない現状は嘆かわしい。

# 2. 本当の第一原理計算

新物質・新材料・新薬を実験以前に設計し、開 発時間の短縮と経費の削減を達成する手段として 第一原理計算が期待されている。第一原理(first principles、ab initio) 計算法というのは、電子及び 原子核の質量や電荷等の物理の基本的定数以外は パラメータを用いずに、量子力学の基本方程式で あるシュレディンガー方程式(相対論的にはディ ラック方程式)を解くことである。電子多体問題 は3体問題でも難しい位なので、現実系に対して は極めて困難な数値計算となる。これは量子力学 のはじめの頃に、ディラックが「必要な方程式は 全て分かった。後は解くだけである」と言ったに も関わらず、今でも「解けていない」程の難問題 である。具体的には求めたい物理量ごとに定式化 とプログラミングが必要である。例えば基底状態 の磁気モーメントを求める場合には DFT は Exc に 依らずに相当の高精度計算結果を与える。しかし、

バンドギャップを求めようとすると DFT は理論的 に対応出来ず、最低でも GW 近似計算が必須であ る。超微細構造定数や NMR 化学シフトを算定しよ うとすれば、芯電子状態が効くので擬ポテンシャ ル法では対応出来ず、全電子法が必要となる。こ の様に、求めたい物理量に対応した近似レベルを 使うことが有限速度のスパコンによって行う第一 原理計算法を理想的な手法とする。

最近では、市販の第一原理シミュレーション計算 ソフトウェアが高度化し、ユーザーフレンドリー なため、自分ではプログラムを作成せず、利用す るだけという数値計算屋が多くなった。その場合 でも、次の節の問題点は正しく理解して活用する ようにして欲しい。そうでないと、いつになって も実験先行の材料設計・開発体制のままで、理論 設計を基盤にする様になるパラダイムシフトを起 こすことは出来ない。

# 3. 適切な近似レベル

材料・物質の理論的取り扱いには、モデル計算と 呼ばれる極めて単純化した手法もあり、代表的な例 がハバード模型である。物理量そのものを対象とし ているために分かり易い。最近では、数値計算によ り具体的な対象物を扱うことにも多用されている。 しかし、電子の多体系はそう簡単にモデル化出来る 程単純ではない。我々は、原子や小さい分子に対し て知られているフント則(縮退した基底状態ではス ピン最大状態が基底状態)が従来の2準位模型では 本質的な間違いの上での説明であったことを明ら かにした。(2)これはハバード模型の場合にも適用出 来る。2準位に対して同じ空間波動関数を適用する ことは本質的に間違っている。系の全ハミルトニア ンを解けば、ハバード模型の扱う2準位のエネルギ 一差の多くは空間波動関数の違いから発現してい ることが分かる。tとUの様な分かり易いパラメー タで説明出来る程、電子多体系は単純ではない。も ちろん、物理量を分かり易く導出出来る理論体系は 望ましく、新たな取り組みが大事であるが、現在ま でのところ、この様な「都合の良い」理論はない。

量子化学や物性物理の教科書では、水素分子を最 初の例題として採り上げる。(3) そこに登場するのが ハイトラー・ロンドン模型(以下 HL)で、各水素原 子の 1s 電子状態をパウリの排他律が成立するよう に重ね合わせで水素分子の状態を構成する。「電子 雲が重なって分子状態が出来る」と言い、電子とい う実体が雲だと喩えで教えてしまう。実は観測の問 題であり、電子は質量が極めて小さいため光を当て ると影響を受ける。しかしその範囲は限られていて、 その近くにいるとは言えるので、その辺りを雲と呼 ぶ。表1に示す様に、HL では、原子から分子が構 成される時、運動エネルギーT が下がりポテンシャ ルエネルギーVが上昇するが、全エネルギーE=T+V は低下して安定化する。しかし、実は、これは「自 然の摂理に反する」安定化である。2つの電子は負 の電荷を持つ粒子であり、近寄ることで安定化は出 来ない。系の安定化要因は原子核と電子の間の引力 相互作用であり、図1に示すように電子が原子核に 近づいて(Vが下がって)安定化する。電子はより 高速に運動するようになりTは上昇する。クーロン 相互作用する多体系の必要条件であるビリアル定 理(平衡状態では 2T+V=0) により、T の上昇は V の低下のちょうど半分になる。



図1.水素分子は、孤立した2つの水素原子が各々 電子を原子核に引き寄せてポテンシャルを下げる ことで安定化する。電子雲の重なりは斥力で安定化 には逆に働く要因である。 表1.1s 軌道のみを仮定する HL 模型や分子軌道法 (MO)はパウリ原理を満たし全エネルギーが低下す るので一見正しそうであるが、TとVを別々に算定 すると、運動エネルギーを下げる(電子雲を広げる) という方策であることが分かり、自然の摂理に反し ている。ハートリー・フォック法(HF)はビリアル定 理を満たし、正しく分子構築理由を表現する。拡散 モンテカルロ法(DMC)によれば、実験値も絶対値で 精密に再現できる。

		精度の問題ではなく、正負が逆				では が逆
(eV)	条件	HL	MO	HF	DMC 3	実験値
$\Delta E$	負	-2.48	-2.88	-3.63	-4.75	-4.75
$\Delta T$	Æ	-5.01	-4.22	3.63	4.8(1)	金
$\Delta V$	負	2.53	1.33	-7.27	-9.6(1)	対値
$-\Delta V / \Delta T$	2	0.5	0.3	2.0	2.0(1)	で 一
						致

原子1個と言え、水素原子以外は多体電子系であ り厳密な意味では容易に解ける系ではないが、ハー マン・スキルマン法等で相当の精度の数値計算が可 能である。その原子の電子状態を使い、分子や結晶 の量子力学計算をするのがハートリー・フォック法 を基本とする分子軌道法である。原子に対する近似 以外はパラメータを使わないので、第一原理計算本 来の計算法であり、高精度計算が可能である。とは 言っても、精度を上げるためには原子数の10 乗と いうレベルの計算量になってしまい、小さい原子系 に限られる。

DFT は縮退のない基底状態に対する電子多体系 の厳密な理論であり、多体問題の難しさは全て交換 相関汎関数 Exeに込められている。対象電子以外の 電子は環境(衣)として扱い、n電子系の波動関数 を3次元で記述出来るため、多数の原子を含む系へ の適用が容易である。実際の数値計算には何らかの Exe を具体的に「与える」必要がある。コーン教授 は一様分布電子系を想定した局所密度近似 (LDA=Local Density Approximation)を提案し成功

している。直ぐに一般化勾配法 GGA が考案され、 現在に至るまでこれらが DFT での標準となっている。 DFT は基底状態の理論なのだが、実験は基本的に 励起状態を経由する。そのため、例えば、半導体の 発光波数を決めるバンドギャップは荷電子帯の最 上位準位から伝導電子帯の最下位準位の間のエネ ルギー差として求められる。基底状態の理論のDFT ではこれが出来ない。しかし、入力に設定した準位 数だけ対角化した後でエネルギー準位が得られる ので、本当は意味のない伝導電子帯の最下位準位を 使う。すると実験値より遙かに小さな値になってし まう。これはしょうがないことなのだが、ここで理 論の適用範囲を逸脱し、どうせ分からないパラメー タなのだからと Exc をいじり、現象論的に実験値を 再現する。LDA+Uやハイブリッド汎関数である。 計算量は O(n<sup>6</sup>)と増大するが、GW 近似によって伝 導電子帯の最下位準位のエネルギーを求める方が 理論的には好ましい。最近ではファンデルワールス 力の計算を Exc によってパラメータ化するケースが 見られるが、ファンデルワールス力は双極子励起状 態間の相互作用であり、Excとは無関係である。我々 は独自の全電子第一原理計算プログラム TOMBO(TOhoku Mixed Basis Orbitals Ab Initio Simulation Package)<sup>(3)</sup>に時間依存 DFT(TDDFT)を 適用してこの問題解決に当たっている。

この様に第一原理計算は手法自体が未完であり、 今後とも開発を継続しなければならない。計算機の 進歩に合わせ、原子数を増やして実験的に興味ある 物質に適用する。そのために並列化に膨大な時間を かける。もちろん、これも取り組まなければならな い重要な課題であるが、DFT 自体の問題を解決し てこそ初めて大規模系への適用の意義がある。

# 4. 具体的例題

#### 4.1 イオン液体による瓦礫からの希少元素抽出

東日本大震災の被害として大量の瓦礫が発生した。この中には電子基板の様な有用元素が多量に含まれている場合があり、その抽出方策が東北発素材技術先導プロジェクト・希少元素高効率抽出領域 (リーダー中村崇教授)として検討されている。特



図2.a) [Br] 負イオンを取り囲む水分子(紫は正で 黄色は負電荷を表す)。

b) [NTF<sub>2</sub>]<sup>-</sup>負イオンを取り囲む水分子(黄色は正で シアンは負電荷を表す)。白、灰色、青、赤、茶色、 緑、黄色の球は、それぞれ水素、炭素、窒素、酸素、 臭素、フッ素、硫黄原子を表す。

にイオン液体を活用する抽出法に集中した研究を 推進中である。その中で我々は理論計算を担当し、 実験家との共同で有用イオン液体の探索業務に当 たっている。<sup>(5)</sup>

イオン液体は実験室系では有用な物性を有する が、瓦礫処理の様な環境では直ぐに水蒸気を吸って 劣化してしまう。我々は実験家との共同で、疎水性 のイオン液体の探索とその理由を明らかにした。正 負のイオンの組み合わせは膨大であり、実験のみで は迅速な開発が困難である。

イオン液体は極めて粘度が高く、その温度依存性 も大きい。網羅的にイオン液体の粘度を測定するこ とは実験のみでは困難な作業となる。特に親水性の 場合には純粋なイオン液体ではなく水の混入した 物質に対する測定になりかねない。そこで、我々は 第一原理計算、古典分子動力学、及び流体計算を組 み合わせて理論的に粘度を算定する定式化を行い、 種々のイオン液体に適用している。図3に親水性 (IBr)及び疎水性イオン液体(IFT<sub>2</sub>) (イオン液体分 子 10 対の系) に対する水分依存性のシミュレーシ ョン計算結果を示す。

最終目的である希少元素の抽出に関しては、主と して負イオンに各種リガンドを付加したイオン液 体を対象とした実験・理論的取り組みを行っている。 特に、実験的に困難とされて来たロジウム(Rh)の 高効率抽出剤探索を集中的に行っている。



図3. IBr 及び ITF2の粘性の水分依存性の計算結果

# 4.2 ペンタグラフェン

実験的には見つかっていない新物質を第一原理 シミュレーション計算によって設計した例題とし てペンタグラフェンを取り上げる。<sup>(6)</sup>炭素の作る 安定構造にはダイヤモンドとグラファイトがある と長年教科書に書かれて来た。しかし、1985年、 炭素のナノ構造体である C<sub>60</sub>フラーレンが見つかっ てこの概念が崩れ、その後、ナノチューブ、グラフ ェン(グラファイトの1層分の2次元構造体)と進 展してきた。グラフェンに関する研究が盛んになさ れ、理論の論文数もうなぎ登りである。フラーレン がサッカーボールの縫い目の重なり位置に原子が ある構造であり、五員環は隣り合うことがないこと から IPR (=Isolated Pentagon Rule)が成り立つと信じ られる様になった。炭素ナノ構造体を扱う教科書に も IPR が登場する。しかし、人間が作る規則には限 界がある。我々は五員環のみで構成されるペンタグ ラフェンが安定構造であることを理論的に証明し、 IPR の破綻を示した。図4に3次元プリンターで作 成したペンタグラフェンの模型を示す。

ペンタグラフェンは特徴的な興味ある物性を示 す。その一つが負のポアソン比である。通常の物質 のポアソン比は正で、ある方向に引っ張れば、体積 保存のため、それに直交する2方向は縮む。ペンタ グラフェンでは、五角形という幾何学が優先し、2 次元面内の一方向に伸び縮みさせると、その垂直方 向も同様に伸び縮みする。もちろん、3次元的には



図4.3D プリンターで作成したペンタグラフェン の模型。金属の質感があり、「実物」を手に取って みると五角形構造がよく分かる。

厚さが減ったり増えたりして補填している。

我々が第一原理計算によって提案する実験的に は見つかっていない物質が存在するはずである、と 言い張れる理由は、エネルギー的、動的、熱的な安 定性をシミュレーション計算で確認できるからで ある。特に、物質の動的安定性を格子振動計算で確 認する方法は、我々の定式化と最初の論文で示され、 その後、一般化した。(7)実験結果がある場合には、 その説明、解析という立場であるが、第一原理計算 には予言能力があり、今回の様な新規構造体を実験 家に提案することが出来る。(さらに厳密には、ク ーロン力で相互作用する粒子からなる多体系の必 要条件であるビリアル定理及びカスプ条件も確認 する。)現在、数グループで実験的な合成が試みら れている。筆者は原子核・素粒子理論で博士課程を 修了したが、そこでは明らかに理論先行で、実験は 理論家の予言の確認に当たる。それに比べ、物性物 理、量子化学、バイオ系では、理論は実験の説明と いう立場が通常であり、何とか抜本的なパラダイム シフトを実現したい。

ペンタグラフェンは完全に 2 次元ではなく、1.3 Åの「厚み」を持つ「薄膜」である。タイルの敷き 詰め問題では三角、四角、六角形のみが可能で、正 五角形では隙間が出来てしまう。それがちょっと厚 みを持たせれば敷き詰め可能になる、というのは幾 何学的にも興味を持たれ、さらには建築やデザイン でもペンタグラフェン (構造) が注目される様になった。

# 5. 処理効率

我々が研究対象としている問題に対して、SX-ACE の処理効率をノード数の関数として、第一原理シミ ュレーション計算で標準的に用いられている VASP(Viena *Ab Initio* Simulation Package)コード<sup>(8)</sup> を用いて確認した。

1-Butyl-3-methylimidazolium bis (trifluoromethylsulfonyl) amide ([BMIM]<sup>+</sup> [NTF<sub>2</sub>]<sup>-</sup>)イオン液体 を具体的対象とした。[BMIM]<sup>+</sup> [NTF<sub>2</sub>]の 10 単位を 含む単位胞内で原子構造を最適化した。それには 25 回の原子位置移動のサイクルが必要となった。 計算対象の全原子数は 400 個(水素=150,炭素=100, 窒素=30,酸素=40,フッ素=60,硫黄=20)であり、DFT 計算としては大規模系に分類される。原子数が多い ので Γ 点のみで計算し、標準的なパラメータ設定と して電子の交換相関相互作用に PBEの GGA 近似を 用いた。電子系の収束には共役勾配(CG=Conjugate Gradient)法を用いた。ノード内の全4コアを用いて、 同一問題に対して、1ノードから128ノードまで計 算を実行した。25 回で原子の最適構造を得るまで の時間をノード数(コア数=ノード数×4)の関数 として図5に示す。

SX-ACE 用にチューニングしたコードであるが、 DFT 計算の特性から最適な並列度は16ノードに留 まる。特に問題にすべきはターンアラウンド時間が 16ノード以上では短縮せず、128ノードを使った場 合には数倍に跳ね上がる。これはノード間通信が増 大するからであり、明らかに資源の無駄使いとなる。 この例では、16ノードを使うのが最適ということ になる。

図6に、図5に示した計算のターンアラウンド時間を示す。ウォールクロックから算定したので利用 状況によるが、およそ図1の4分の1になっており、 ノード内でコアごとの均一処理がなされたことが 分かる。



図5.ノード数の関数として同一計算を実行した場 合のノードごとの計算時間を示す。1 ノードに比 べ、16ノードでは各ノードが約 10 分の 1 の計算時 間になり、並列化が有効に効いている。400 原子を 含むこの系では 16 ノードが最適ということにな る。



図6.ノード数の関数として、ターンアラウンド時間を示す。4コア構成の1ノードなので理想的には 図5の4分の1の時間になるはずである。待ち時間 の意味でも16ノードが最適であり、それ以上は資源の無駄使いと言える。他の利用者にも多大の迷惑 をかけるので、自分のジョブの最適な実行を確認し ながら計算すべきである。

図7に、1から128ノードを使った計算におけるノードごとに使った最大メモリーサイズを示す。 1ノードの場合の約6.5GBが、4ノードでは各ノー ドで半減する。ただし、全体としては倍増している。 それ以上のノードを使う計算を実行するとノード



図7.ノードごとに使った最大メモリーサイズを示 す。1ノードで実行した場合の約6.5GBが、4ノー ドでは各ノードで半減(全体としては倍増)するが、 それ以上のノードを使うとノードごとのメモリー サイズが増え始め、128ノードでは20GBを超える (全体では3TBに近い)。SX-ACEでは最大使っ ても1ノードで64GBなので、これ以上は物理的に もメモリー不足になって実行できなくなる。

ごとのメモリーサイズが増え始め、128ノードでは 20GBを超える。これは全体では3TBに近い単一ノ ードの500倍のメモリー量を使ったことになる。並 列処理の問題として、このように膨大な(分散処理 するための)メモリー量の発生がある。メモリーが 低価格したと言ってもこのレベルの量になるとや はり高価であり、ネットワーク系も含め、計算実行 に当たっては資源の無駄遣いにならないことを意 識すべきである。他の問題として、SX-ACEの1ノ ードのメモリーは64GBなので、これ以上のメモリ ー量が必要になると、物理的にもメモリー不足にな って計算が実行できなくなる(システムが数GB使 うので実際はもっと少ない)。これは深刻な問題で、 高精度のDFT 計算が扱える原子数は限定されてし まう。

DFTの計算時間はO(n<sup>3</sup>, n=電子数)で増えるので、 1ノードのメモリー64GBを最大限に使う計算は(手 法で異なるが、必要メモリー量をO(n<sup>2</sup>)とすると、 この例題から算定して、3 倍の原子数(1200 個)が 可能であるが、ターンアラウンド時間は 10 日程に なる。もちろん並列化効率が上がるので、より多く



図8.全 CPU 時間をノード数の関数として示す。1 ノードで約43時間で終了したジョブが、256ノー ドでは総計では2,000倍近くの CPU 時間を消費す る。高価なスパコンを活用する限り、このような無 駄使いは慎むべきである。(すみませんが、このテ スト計算は許して下さい。)

のノードを効率良く使えるようになる。とは言って もそんなには変わらない。

図8は総資源利用量である。1利用者としてはタ ーンアラウンド時間が短ければ嬉しい。その意味で、 この問題では16ノードが最適である。しかし、高 価なスパコンは他人数でシェアして活用するのが 基本である。この図の示すことは、多数の利用者が 待ち状態にある場合には1ノードによる実行が全 体としては最も好ましいことになる。極論すれば、 ノードをバラバラに使う、となると高価なノード間 接続が不要になり、スパコンのコストは大幅に削減 出来る。

# 6. まとめと今後の課題

大規模数値計算の 2 つの代表と言われるのは第 一原理計算と流体計算である。スパコンの進展によ り流体計算はメッシュ数が膨大に取れるようにな り、計算精度は上がったがメッシュ作成が大問題に なっているという程の長い歴史を有する「枯れた」 手法である。一方、第一原理計算は名前に反して現 象論に走っている。実験値の説明は可能でも、未知 の材料・物質の設計には問題がある。さらに、クー ロン相互作用の特徴として要素ごとの切り分けが 出来ず、多数のノード・コアを使っても効率向上が 難しい。細線化とコア数増大によるカタログ性能向 上のみでは、実験家が興味を持つ対象を扱う「有用 な」計算を行おうとすると、今後とも第一原理計算 は現象論に走らざるを得なくなる。Power6 で達成 した 5GHzの上を行く高速クロックの計算機の開 発により、第一原理計算の抜本的進展可能性を期待 する、しかし、科学技術専用機の開発は経費上無理 で結局、金融関係に適した計算機を使わざるを得な い。原理的に高精度計算が可能で、しかも並列計算 効率の良い第一原理計算手法の開発を継続しなけ ればならない。

# 謝辞

HPCI での大阪大学サイバーメディアセンターの 利用により、参考文献(4)及び(5)等に発表した成果 を得た。計算実施に当たり、種々のご支援をいただ いたことに感謝する。

#### 参考文献

Computational Materials Science, K. Ohno, K. Esfarjani, and Y. Kawazoe, Springer Series in Solid-State Sciences 129 (1999).

(2) Unified Interpretation of Hund's First and Second Rules for 2*p* and 3*p* Atoms, Takayuki Oyamada, Kenta Hongo, Yoshiyuki Kawazoe and Hiroshi Yasuhara, J. Chem. Phys., Vol. 133 (2010) pp.16411301-16411319

(3) Diffusion Monte Carlo Study of Correlation in the Hydrogen Molecule, Kenta Hongo, Yoshiyuki Kawazoe and Hiroshi Yasuhara, Int. J. Quantum Chem., Vol. 107 (2007) pp.1459-1467;磁性の根源-85年も続いた誤解-、川添良幸、金属 Vol. 84 (2014) 690-702.

(4) TOMBO: All-electron Mixed-basis Approach to Condensed Matter Physics, Shota Ono, Riichi Kuwahara, Yoshihumi Noguchi, Ryoji Sahara, Yoshiyuki Kawazoe and Kaoru Ohno, Computer Physics Communications, Vol. 189 (2015) pp. 20-30.

(5) Solvation Mechanism of Task-Specific Ionic Liquids in Water: A Combined Investigation Using Classical Molecular Dynamics and Density Functional Theory, Yuvaraj, Surya V. J.; Zhdanov, Ravil K.; Belosludov, Rodion V.; Belosludov, Vladimir R.; Subbotin, Oleg S.; Kanie, Kiyoshi; Funaki, Kenji; Muramatsu, Atsushi; Nakamura, Takashi; Kawazoe, Yoshiyuki *JOURNAL OF PHYSICAL CHEMISTRY B*, Vol. 119 (2015) pp. 12894-12904.

(6) Penta-graphene: A new carbon allotrope, S. H. Zhang, J. Zhou, Q. Wang, X. H. Chen, Y. Kawazoe, and P. Jena, *Proc. Natl. Acad. Sci.* (IP=9.674) Vol. 112 (2015) pp. 2372-2377.

(7) First-Principles Determination of the Soft Mode in Cubic ZrO<sub>2</sub>, K. Parlinski, Z. Q. Li and Y. Kawazoe, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 78(1997) pp.4063-4066.

(8) G. Kresse and J. Hafner, "*Ab initio* molecular dynamics for liquidmetals," *Phys. Rev. B* 47(1993) pp. 558–561; G. Kresse and J. Furthmuller, "Efficient iterative schemes for *ab initio* total-energy calculations using a plane-wave basis set," *Phys. Rev. B* Vol. 54 (1996) pp. 11169–11186.

# 資料1

図1から4までのグラフの元データ

No. of Nodes	No. of Cores	Total CPU time (sec)	CPU time per node (sec)
1	4	155655	155655
4	16	167308	41827
16	64	252329	15770
32	128	587922	18372
64	256	1800429	28131
128	512	16108900	125850
256	1024	294096428	1148814

No. of Nodes	No. of Cores	Total available Memory (GB)	Total Used Memory (GB)	Memory size per node (GB)
1	4	60	6.25	6.25
4	16	240	13.25	3. 31
16	64	960	67.50	4.21
32	128	1920	210.00	6. 56
64	256	3840	724.00	11.31
128	512	7680	2760.07	21.56
256	1024	15360	11408.03	44.56