平成 30 年度

九州大学情報基盤研究開発センター

民間利用成果報告書

提出日：平成　31 年　4 月　16　日

利用課題名		大規模量子化学計算とモンテカルロ法を用いたマルチスケール計算方法の開発				
課題責任者	企業名	京セラ株式会社 印				
	フリガナ 氏名	ナカタ　ヒロヤ 中田　浩弥 印	部署名	基盤技術研究部	職位	研究員
	連絡先	住　所：〒899-4396 鹿児島県霧島市国分山下町 1-1 E-mail：hiroya.nakata.gt@kyocera.jp		TEL　0995-46-1100 FAX		
利用期間		平成　30　年　5 月　1 日　～　平成　31　年　3 月　31 日				
利用成果公開延期希望の有無		■　即時公開　・　□　公開延期（成果公開予定：　平成　　年　　月）				

※利用成果報告書は原則公開ですが、課題終了後最大 2 年間公開を延期することが可能です。

- 本様式の変更はできません。
- 補足資料を付加することは可能です。

受付番号	2	受付日 平成 30 年 4 月 26 日	受付印

■利用計画全体の概略（申込書と同じ内容を記述してください）

1）利用目的

有機・無機材料シミュレーションを企業で実用化するための最大の課題はモデルサイズの制限である。従来の計算方法ではモデルサイズが限られるため、単純なモデルに置き換えて計算を実施していた。しかし、複雑なセラミック材料の単純なモデルへの置き換えはしばしば困難な場合があるため、モデルサイズの制限が材料計算を展開していく際の課題になっている。

本研究課題では、こうした材料シミュレーションにおけるモデルサイズの制限を改善するために、新しい計算ソフトの開発と応用展開を行うために九州大学の計算機を利用した。有機材料、無機材料計算のために2種類の異なる計算方法を開発した：

(a) 量子化学計算ソフト: GAMESS を用いた分光スペクトルの開発

有機材料の量子化学計算を複雑なポリマー材料で実施するために、一万原子程度の量子化学計算を実行できる新しい計算方法を開発している。従来の量子化学計算方法は計算コストが計算サイズの4乗に比例するため、1万原子の量子化学計算の実行は難しかった。そこで計算コストが計算サイズに比例する分子分割軌道法(FMO 法)に我々は注目して、IR、Raman、可視吸収、XPS、およびX線吸収分光を予測する新しい計算方法を開発と応用展開を目指す。

(b) モンテカルロ法の開発

製品として利用されるセラミック材料には微量の添加物が(0.1%程度)含まれている。したがって計算モデルのサイズnm～μmの規模について、μsオーダーの計算を実施できることが理想的である。これまで、μmかつμsオーダーのセラミック材料の計算はあまり実施されておらず、汎用的な計算ソフトが存在しない。そこで、我々は第一原理計算を基にしたモンテカルロ法によるメゾスケールの材料計算方法を作る。

2）利用意義

有機材料計算や無機材料のシミュレーションについて、第一原理計算を土台に、実用的なスケールの計算が可能な新しい方法を作ることは、企業の材料開発で戦力になる活きた材料計算方法を確立するために必要不可欠になっている。メゾスケールシミュレーション方法を確立して、実施例を公開することは、産業界に材料シミュレーションの大きな可能性を示すことができるため、高い意義を持つ。

3)必要性

有機材料・無機材料について新しい計算方法を開発して、その計算精度のテストを実施する。そして計 算方法の精度検証、エラー処理、並列化効率の評価をして、計算方法の公開するために、結果を論文にまとめる。論文執筆に関わる一連の作業を実施するためには一つのテーマ辺り、8~16台の計算機で一日程度かかる計算をプログラムデバックのために毎日試していかなくてはいけない。そのため大規模計算機の積極的な利用が必要になっている。

■成果の概要

1) 本課題で得られた具体的な成果

(a) 量子化学計算ソフト：GAMESS を用いた分光スペクトル計算方法の開発

大規模生体分子やポリマー材料の IR および Raman 散乱を計算するために分子分割軌道法(FMO 法)を用いた基準振動解析方法(NMA)を我々は開発している。今までの FMO NMA は真空中の計算のみ利用できた。そのため溶媒効果を考慮する場合は、溶媒分子を直接計算モデルに組み込まなくてはいけないため、真空中と比較して大きな計算コストがかかってしまう。本研究では新しく連続誘電体モデル(PCM)を利用して溶媒効果を考慮する FMO PCM NMA の開発して、計算精度と計算コストを検証して、生体分子やポリマーへの適用可能性を調査した。

(a)クランビンタンパク質の計算モデル　　(b)クランビンタンパク質の振動分光計算

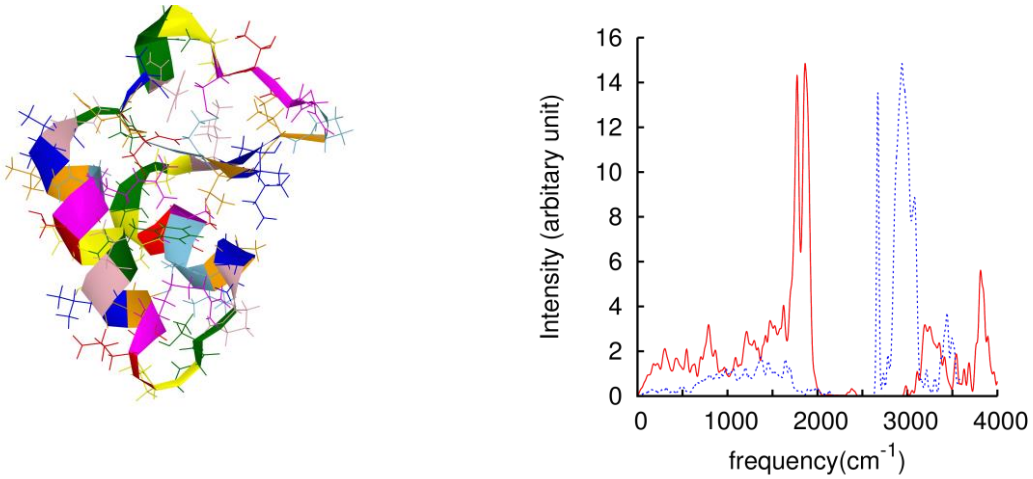

図 1) クランビンタンパク質の FMO-CM Hessian の計算結果
(a) クランビンタンパク質の計算モデル
(b) 振動スペクトル計算結果(赤： 赤外吸収、青:ラマン散乱)

図 1 に示す通り、開発した FMO PCM Hessian を用いる事でクランビンタンパク質など小規模タンパク質やポリマー材料について、量子化学計算を用いた基準振動解析が手軽に利用可能になった。FMO PCM Hessian の適用可能性をさらに調査するために、計算コストを検証した。アラニンポリマー10 量体、20 量体、および 40 量体について計算時間および必要な計算メモリーを図 2 に示す。

(a)アミノ酸の計算時間の検証　　(b)アミノ酸の必要メモリー

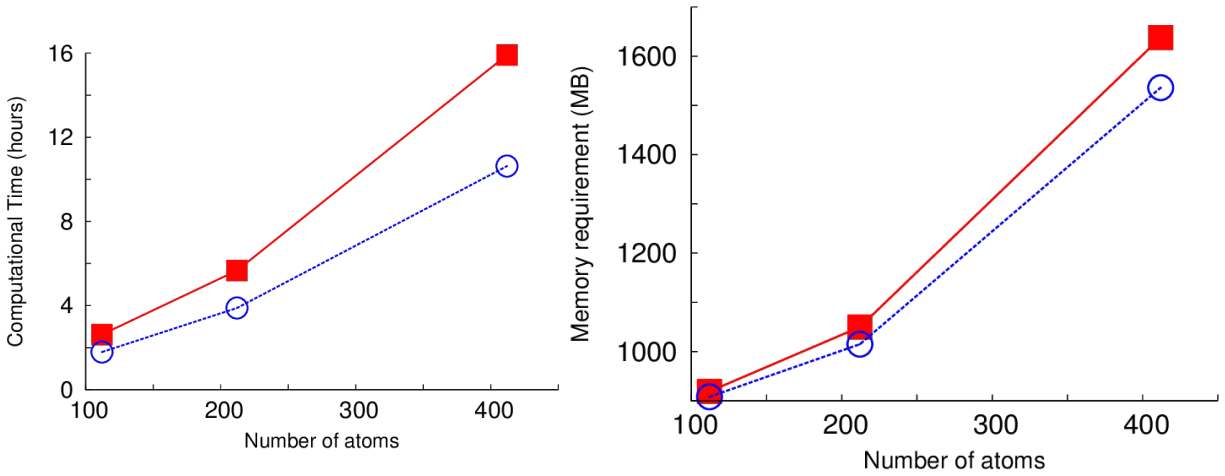

図 2)FMO-PCM Hessian 計算コストの検証 ： 赤■は FMO-PCM Hessian で青○は FMO Hessian の計算結果
(a) アミノ酸の計算時間 (b) アミノ酸の計算に必要な計算メモリー

真空中の FMO Hessian 計算と比較して、FMO-PCM Hessian は計算時間および計算メモリーが少し増加するものの、計算時間増加の傾向は変化しない事がわかり、中規模程度の計算モデルに十分利用可能なことが本計算機利用によって確かめられた。

(b) モンテカルロ法の開発

コンデンサの材料に利用されるチタン酸バリウム中の酸素空孔拡散は製品の信頼性に関わる重要な性能のため、第一原理計算による解析が報告されている。本研究では、モンテカルロ法で自由エネルギー曲面を記述して、酸素空孔拡散の活性化エネルギーを見積もることを目指す。モンテカルロ法は数100万回の繰り返し計算をする必要があり、第一原理では計算コストがかかりすぎてしまう。そこで本研究では反応力場(ReaxFF)を用いてポテンンシャルエネルギーを見積もり、モンテカルロ法によって自由エネルギーを検証した。

ReaxFFは汎用的な力場が無い場合が多いため、自分で力場パラメータを目的に合わせて再調整しなくてはいけない。そこで、我々は機械学習を用いた力場調整プログラムを作成して、BaTiO3中の酸素空孔拡散の自由エネルギーバリアを計算した。(図3)

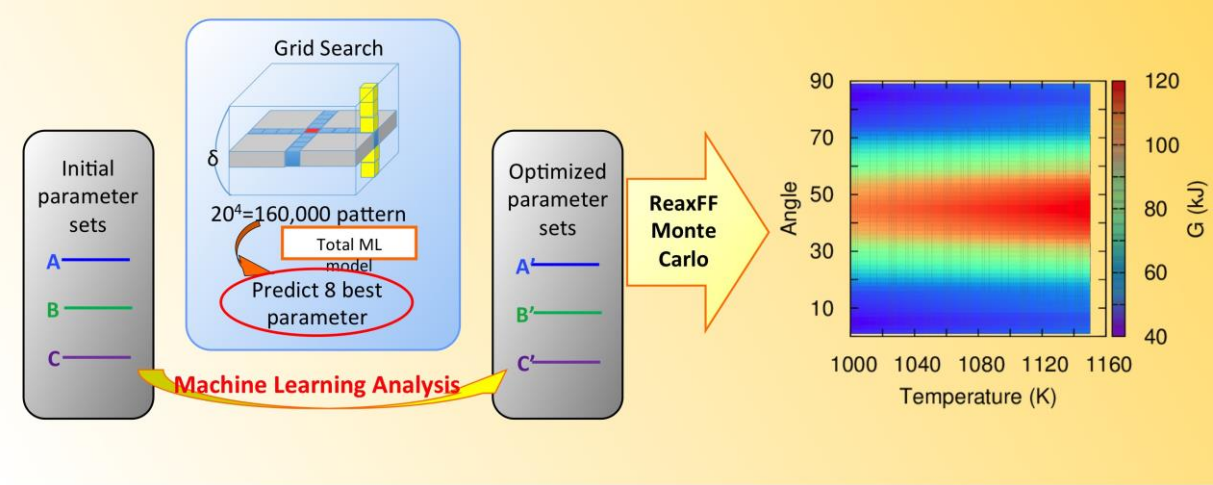

図3) 機械学習を用いた力場パラメータ調整と自由エネルギー計算結果

図3で計算したReaxFFによる酸素空孔拡散障壁は0.635 eVとなり、実験で得られた0.67 eVとよく似た値になったことから、本アプローチの有効性を確かめられて、今後多くのセラミック材料へReaxFFを応用展開していく基礎技術が本研究によって確立された。

2) 社会・経済への波及効果の見通し

本研究で利用した有機材料や生体材料の基準振動解析を実行するFMO計算のプログラムはGAMESSに実装されており全ての研究者が無償で利用できるように公開されている。FMO Hessianによる分光スペクトルの理解は、材料の構造や組成など基礎的な物性の理解につながるため、学術界から産業界まで広い分野において、材料開発に有効活用できると考えられる。またReaxFFを用いた分子動力学は普及してきている分野であり、機械学習を用いた力場自動調整プログラムの作成は今回初の試みである。力場自動調整の方法については別途
Journal of Computational Chemistry (https://arxiv.org/abs/1812.03256)
に公開される論文を参考にして欲しい。FMO Hessianや機械学習による力場調整方法は、材料開発を行う上でのツールであり、それらツールを実際の材料開発へ有効活用していくことが今後の課題である。こうしたツールを一つ一つ地道に作っていくことが材料計算の応用展開への近道だと考えて、今後も開発を継続していく予定である。

3) その他

本成果公開に関わる内容について、詳細は下記の学術論本として公開予定なので、参考のために列挙する。

1. Journal of computational chemistry 39 (25), 2039-2050, Analytic second derivatives for the efficient electrostatic embedding in the fragment molecular orbital method
2. Development of a New Parameter Optimization Scheme for a Reactive Force Field (ReaxFF) Based on a Machine Learning Approach (J. computatioan Chemistry, in press)
3. Simulations of infrared and Raman spectra in solution with the fragment molecular orbital method. (Submitted)

■利用アンケートにご協力ください

1) 利用に関して有益であった事項

python、intel コンパイラーなどプログラムの実行に必要な環境が整備されていて、非常に使いやすかったです。また計算機のメモリー量や、並列化数も十分で計算速度を十分発揮できていて、社内の計算クラスターと比較して著しい作業効率の向上がありました。

2) 利用に関して生じた問題点など

毎月 1 週間程度のメンテナンスが少し多いと思いました。その間計算が止まってしまうので、改善していただけたら嬉しいです。

3) ユーザーサポートとして必要と考えられることについて

4) 施設利用に係る感想・改善を希望することについて

5) 本事業で得られた成果や公表する予定の成果があれば以降に記述をお願いします

3 つの論文を投稿しており、近日公開予定です

・Development of a New Parameter Optimization Scheme for a Reactive Force Field (ReaxFF) Based on a Machine Learning Approach (J. computatioan Chemistry, in press)

・Simulations of infrared and Raman spectra in solution with the fragment molecular orbital method. (Submitted)

・Effcient implementations of analytic energy gradient for mixed-reference spin-ip time-dependent density functional theory (MRSF-TDDFT) (submitted)