

機能性分子材料を創生するMultiscale/Multiphysics ：モデリングと計算手法の構築

何, 希倫

<https://doi.org/10.15017/1807058>

出版情報：九州大学, 2016, 博士（学術）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

氏 名 : 何 希 倫

論 文 名 : 機能性分子材料を創生する Multiscale/Multiphysics
モデリングと計算手法の構築

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

人と環境に優しい持続的社會への貢献を目指し、生物模倣の新機能を発現する超分子の研究が行なわれている。機能性分子の材料研究では、先端的計算科学を用いて、ナノスケールの分子構造を制御しマクロスケールの恒常機能を設計することが課題である。その解決のために、夫々のスケールに適合するモデリングや計算手法を組み合わせた解析アプローチが求められている。本論文の目的は、機能性分子材料を創生するため、多様なナノ分子構造を階層的に連結し低エネルギー状態の全分子構造を高精度、高速そして効率的に予測する Multiscale/Multiphysics(以下 MSMP と略す)解析法を構築することにある。

大規模分子の MSMP 解析法には、分子軌道法(Quantum Mechanics method, 以下 QM 法と略す)と分子動力学法(Molecular Mechanics method, 以下 MM 法と略す)を組み合わせた QM/MM 法が広く利用される。QM 法は大規模分子の局所領域を解析し、電子相関を取り入れた分子エネルギーを高精度に計算できる。また、MM 法は周辺領域を解析し、分子エネルギーがパラメータ化されて高速に計算可能である。そして、全分子エネルギー E_{tot} は、両方法の間で原子座標と力場を反復的に交換し計算された分子エネルギーの和で求められる。一方、QM/MM 法は以下の課題がある。電子相関の計算精度を上げた QM(MP2)法等の計算時間は電子の基底関数の数の 3-4 乗以上に比例する。したがって、 E_{tot} の計算時間は QM 法に律速されるため、高速化が課題である。また、 E_{tot} は MM 法の低精度の振じれエネルギー成分を含むため、高精度化が課題である。更に、大規模分子では、多数の原子自由度に起因して構造空間における分子構造数が膨大になるため、実験計測による雛形構造を持たない全分子構造を予測することが困難である。そして、構造空間における安定構造の探索では、低エネルギー状態の同一の分子構造が重複的に計算されるため、構造探索の効率化が課題である。

本論文で提案する MSMP 解析法は、①分子構造自由度の削減法、②全分子のエネルギー計算法、③低エネルギー構造の探索法で構成される。本法の概略を以下に示す。初めに、全分子構造は、構造自由度を削減した多様な小規模分子（以下分子クラスタと呼ぶ）を用いてボトムアップ方式で組み立てられる。次に、全分子エネルギー E_{tot} は、分子クラスタ内と分子クラスタ間のエネルギーを用いて高精度そして高速に計算される。そして、生物模倣の観点で核構造を導入した階層的構造探索により、低エネルギー構造が効率的に予測される。本法を分子クラスタアセンブリ法(Molecular-Cluster-Assembly method, 以下 MoCA 法と略す)と呼ぶ。以下では、フェノール系とアクリル酸系の機能性分子材料を解析対象に、上記三つの計算法の成果を纏める。

第一は、構造空間の分子構造数を低減するため、分子構造自由度の削減法を提案した。本法では、小規模分子の極小エネルギー構造及びその振じれ構造で生成される分子クラスタをブロック単位に、全分子構造をボトムアップ方式で組み立て低エネルギー構造を予測する。離散的構造空間の全分子

構造数は $[2N_\lambda \times N_d^{N_\lambda}]^{N_p}$ であり、従来の全原子自由度を取り入れた構造空間の分子構造数 $N_d^{3N_m N_p}$ に比較して大幅に削減される。ここで、 N_λ は極小エネルギー構造の数、 N_d は捩じれ角の離散点数、 N_λ は捩じれ角の種類、 N_p は分子鎖数、 N_m は分子クラスタ内の原子数である。そして、MoCA 法を用いて、フェノール系の規則的螺旋状、及び、アクリル酸系のくびれ型チャンネル状の低エネルギー構造が予測された。これら予測構造は、QM 法による全原子自由度を取り入れた構造最適化に対して安定であることが実証された。

第二は、全分子エネルギー E_{tot} の高精度そして高速な計算法を提案した。本法では、 E_{tot} は QM 法を用いた分子クラスタ内エネルギーと MM 法を用いた遠隔の分子クラスタ間エネルギーで構成される。QM 法の計算は、小規模分子の極小エネルギー構造と捩じれ構造に限定されるため、計算量が削減され事前にデータ並列的に計算可能である。したがって、 E_{tot} は、前処理で計算された分子クラスタ内エネルギーを用いて計算されるため、QM 法の計算負荷に影響されずに MM 法と同等に高速計算が可能である。また、 E_{tot} は、MM 法の低精度の捩じれエネルギーを使用せずに、QM 法の捩じれた分子クラスタ内エネルギーが用いられるため、高精度計算が可能である。

予測された全分子構造に対して、MoCA 法と QM(MP2)法の全エネルギー E_{tot} を比較した。両エネルギーの回帰直線の傾きは 0.97-1.10、相関係数は 0.96-1.00 が得られ、両エネルギーは極めて良い一致を示した。したがって、MoCA 法は E_{tot} を QM(MP2)法相当の高精度に計算できる。また、16 連鎖の螺旋状構造に対して、MoCA 法の計算時間は PC クラスタ 1PE 上で 1 秒未満である。一方、QM 法は、標準ソフト Gaussian を利用し SR16000 の 1 ノード 32PE 上で約 60 時間以上を要した。QM(MP2)法の計算時間は基底関数の数の 3-4 乗に比例し増大する。また、基底関数の空間積分値を格納するメモリ容量 210GB とファイル容量 1TB が必要であったため、ファイルアクセスに時間を要した。したがって、MoCA 法を用いて E_{tot} の高精度そして高速な計算が実現された。

第三は、低エネルギー構造の効率的な探索法を提案した。本法では、分子クラスタの連結時のエネルギー閾値を制御パラメータに、大域的に探索される分子構造数が削減される。また、鎖長 N_h の分子クラスタで構成される核構造をブロック単位に全分子構造を組み立てる方式により、階層的に探索される分子構造数が削減される。結果的に、離散的構造空間において探索される鎖長 $(k+1) N_h$ の分子構造数が $N_{seq,kN_h} \times N_{fg}^{N_h}$ に大幅に削減される。ここで、 k は整数、 $N_{fg}^{N_h}$ は核構造の候補数、 N_{seq,kN_h} は鎖長 kN_h の分子構造の候補数である。この構造探索では、同一分子構造の計算を全く重複せずに、全分子構造のエネルギー状態密度が計算され、自発的に形成される低エネルギー構造が効率的に予測可能である。MoCA 法を用いて、フェノール系の分子構造に対してマクロな溶解速度の低減機能を設計した。溶解機能に貢献しない分子構造を排除する最適化戦略では規則的螺旋状構造の長鎖が適合し、溶解機能を維持するあらゆる分子構造を残存させる両賭け戦略では開環状、S 字状や螺旋状の多様な分子構造で構成される短鎖が適合した。したがって、ナノ分子構造の鎖長を制御しマクロな溶解機能が設計されることが示された。

以上、本論文は、分子構造自由度の削減法、全分子のエネルギー計算法と低エネルギー構造の探索法で構成される MSMP 解析法を提案した。そして、生物が永年の進化の末に獲得した超越的なマクロの恒常機能を発現するナノ分子構造の高精度、高速、そして効率的な予測法を構築したものである。