JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	北陸先端科学技術大学院大学　共有計算サーバ使用成果報告2018
Author(s)	本郷, 研太; 辻, 誠樹; 宮下, 夏苗; 井口, 寧
Citation	Technical memorandum (School of Information Science, Graduate School of Advanced Science and Technology, Japan Advanced Institute of Science and Technology), IS-TM-2019-001: 1-44
Issue Date	2019-08-07
Type	Others
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/16002
Rights	
Description	テクニカルメモランダム（北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科情報科学系）

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

北陸先端科学技術大学院大学
共有計算サーバ使用成果報告 2018

本郷 研太, 辻 誠樹, 宮下 夏苗, 井口 寧　編

2019 年 8 月 7 日
IS-TM-2019-001

北陸先端科学技術大学院大学
情報社会基盤研究センター
〒923-1292 石川県能美市旭台 1-1

要旨

本報告は北陸先端科学技術大学院大学において，学内で共同利用されている計算サーバや並列計算機を用いて，2018 年度に行われた先端的諸研究の概要および発表論文について，各利用者の協力に基づいて報告を頂き，一編の報告書として取りまとめたものである.

目次

1. JAIST における共有計算サーバー環境 1

2. 情報科学分野の計算サーバー利用研究 6

第一原理計算による物質化学シミュレーション
本郷 研太

A new *ab initio* modeling scheme for ion self-diffusion coefficient applied to ε -Cu_3Sn phase of Cu-Sn alloy
Tom Ichibha, Genki Prayogo, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Making the most of data: quantum Monte Carlo post-analysis revisited
Tom Ichibha, Kenta Hongo, Ryo Maezono, Alex J.W. Thom

A DMC study on the mechanism of the point defects diffusion in the rutile TiO_2 bulk
Tom Ichibha, Anouar Benali, Kenta Hongo, Ryo Maezono

A new candidate structure high pressure solid hydrogen discovered with calypso algorithm
Tom Ichibha, Anouar Benali, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Importance of vdW and long-range exchange interactions to DFT- predicted docking energies between plumbagin and cyclodextrins
Tom Ichibha, Ornin Srihakulung, Guo Chao, Adie Tri Hanindriyo, Luckhana Lawtrakul, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Valence band engineering of layered bismuth oxyhalides toward stable visible-light water splitting
Daichi Kato, Ryo Maezono, Kenta Hongo, Hiroshi Kageyama

全電子第一原理量子モンテカルロ法の Na 二量体への適用
前園 涼

Ibi 伝搬路における条件付き 11 正規化チャネル推定法
高野 泰洋, 松本 正

Wised-StagedLSH: A new locality sensitive hashing algorithm for parallel processing on GPGPU
Nguyen Mau Toan

Electrical contacts to phosphorene - a DFT study
Nihar Ranjan Mohapatra

等式論理を核とする自動定理証明
大井 悠輔，廣川 直

Inconsistencies in ab initio evaluations of non-additive contributions of DNA stacking energies
Qin Ken, Ryo Maezono, Kenta Hongo

格子暗号に対する SVP 求解アルゴリズムの研究
関口 智広

Oxygen release mechanism of positive electrode active material
Takahiro Toma

3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバー利用研究 22

Ab initio thermodynamic properties of certain compounds in Nd-Fe-B system
Adie Tri Hanindriyo, Soumya Sridar, K.C. Hari Kumar, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Diffusion Monte Carlo evaluation of disiloxane
Adie Tri Hanindriyo, Guo Chao, Tom Ichibha, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Specific heat of $BaFe_2S_3$ and $BaFe_2Se_3$
Adie Tri Hanindriyo, Kenta Hongo, Ryo Maezono

Investigation of twisted bilayers in $MoSe_2$
Adie Tri Hanindriyo, Poonam Kumari, Priya Mahadevan,Ryo Maezono

Diffusion Monte Carlo study of hydrogen adsorption on silicon carbide nanotube
Genki Imam Prayogo, Ryo Maezono

Diffusion Monte Carlo study of boron nitride systems
Genki Imam Prayogo, Ryo Maezono

Critical temperature calculation of $ThCr_2Si_2$-type structure using density functional theory approach
Gewinner Senderanto Sinaga

混合脂質膜における脂質分子の膜透過・離脱に関する自由エネルギー曲線
齋藤大明，水上卓

InSb 及び Sb_2Te_3 の電子状態および光学誘電率の第一原理計算

佐野陽之，水谷五郎

Lyotropic ordering for high proton conductivity in sulfonated semialiphatic polyimide thin films
Kensaku Takakura, Yuki Nagao

自発的な分子集合体の形成とその外場応答
下川 直史，樋口 祐次，伊藤 弘明

Single-molecule imaging of a polymer and simulations by all-atom MD and DFT
井改知幸，篠原健一

有機化合物のハマカー定数の新規算出法の開発
高岸秀行

機械学習を利用した $TiCl_4$ 終端 $MgCl_2$ ナノ粒子の構造決定
高棹玄徳，谷池俊明

Adhesion of the electrodes on black phosphorus device surfaces
Nobuya Watanabe

大規模分子シミュレーションを活用した糖鎖コンフォメーションの解析と制御
山口拓実

表面増強ラマン散乱に関する研究
山本裕子

4. 謝辞 **44**

1. JAIST における共有計算サーバ環境

1.1 概要

北陸先端科学技術大学院大学（JAIST）では，全学で共有利用可能な計算サーバは，その利用者が参加する MPC グループを中心として MPC グループの取りまとめを行う MPC 管理グループと計算機の実務的な運用を担当する情報社会基盤研究センター（以下情報センター）とが親密な連携をとりながら運用されている．MPC グループは共有計算サーバの利用者から構成されるグループであり，MPC 管理グループは MPC グループのユーザーからの声を吸い上げキュークラスの設定の調整として反映することや mpc メーリングリストにおける利用者間の利用の調停を行っている．情報センターと MPC グループ・MPC 管理グループの関係は参考文献[9]や[10]を参照願いたい．

1.2 2018 年度の活動

2018 年度の JAIST における MPC グループおよび MPC 管理グループの主だった活動について述べる．例年，各種計算機の新規利用者開拓(オリエンテーション)，各種計算機利用者の技術レベルの向上，理解の促進を目的とし，各システム，ソフトウェアに関する利用者講習会(各種初級者講習会)を企画している．今年度に開催した講習会の一覧を表 1 に示す． オリエンテーションでは，新入生や新規利用者を対象として，本学共有計算機の構成や初歩的な利用方法を解説した後に，ハンズオントレーニングを実施している．システム毎の講習会では，例年通り，MPI や OpenMP などの並列プログラミングを主テーマとしているが，今年度は新たな試みとして，深層学習フレームワークの利用方法，及び，conda を利用した計算環境構築方法を扱った．特に後者は，共用計算機において利用者が管理者権限を取得できず，計算環境の構築に手間と技量が必要になるという問題を解決する上で役立つ内容である．今後も，利用状況と利便性の向上に向けた各種講習会を企画することで，新規利用者の拡大と効率的利用に取り組んでいく．

表 1. 2018 年度に開催した講習会

開催月	講習会
2018 年 6 月 8 日	Cray XC40/MPI 並列プログラミング 初級者講習会
2018 年 6 月 12 日	並列計算機利用者オリエンテーション
2018 年 6 月 20 日	SGI UV3000 / Parallel Programming 初級者講習会
2018 年 6 月 25 日	大規模計算機初級者講習会 - PC クラスタを使ってみよう
2018 年 10 月 31 日	SGI UV3000 / Parallel Programming 初級者講習会
2018 年 11 月 1 日	Cray XC40/MPI 並列プログラミング 初級者講習会
2018 年 11 月 5 日	大規模計算機初級者講習会 - PC クラスタを使ってみよう

1.3 新規導入・更新システム

2018 年度に稼働した計算サーバの概要を表 2 に示す．ハードウェアの更新としては，PC クラスタにおいて，既設 GPU，NVIDIA Tesla K40 に加え，新たに NVIDIA Tesla P100 が搭載された．近年，機械学習ツールの GPU 対応など GPU を活用した研究も増えており，研究環境構築の高速化，効率化が期待されている．このような背景から，近年，コンテナを利用した仮想環境技術の利用が急増している．本学計算機においてもコンテナ技術の導入を検討し，2018 年 3 月に稼働を開始したコンテナ対応型 PC クラスタでは Docker コンテナをサポートしている．現在，PC クラスタ上では，コンテナを起動して，その仮想環境内で計算を実行することが可能となった．今後は，外部 Dockerhub への対応，学内レジストリ連携など，外部連携を実現していくことを計画している．こうして，スクラッチから計算環境を構築せずに，用途に応じて既存環境を利活用することで，本学ユーザーの計算環境設定を劇的に簡易化できる可能性がある．

表 2. JAIST で利用可能な計算サーバ(2018)

機種名	主な仕様
Cray XC40	分散メモリ, スカラー型システム 全 548 ノード（1096CPU, 19728Core） 総理論演算性能: 662.8TFLOPS 作業用データ領域: 200TB (Lustre) ノード構成 CPU: Intel Xeon E5-2695v4 2.1GHz 18Core x2 Memory: 128GB (16GB DDR4-2133 ECC x8) 開発環境(Fortran/C/C++/Python) GNU/PGI/Cray Complier, Intel Parallel Studio XE, Anaconda Python
SGI UV3000	共有メモリ型(ccNUMA 方式)システム 128 nodes, 1536 CPU cores, 32TB memory が ccNUMA 方式により結合され、 単一メモリ空間を持つ ノード構成 CPU：Intel Xeon Processor E5-4655v3 x 2 メモリ：256GB (DDR4-2134MHz x 8) NUMA-link6 によりノードを結合 ディスク装置 51TB 開発環境(Fortran/C/C++/Python) GNU/PGI Complier, Intel Parallel Studio XE, Anaconda Python
PC クラスタ	システム Fujitsu Primergy CX2560 M2 全 48nodes, 64CPU, 1536 CPU cores CPU: Intel Xeon Gold 6130 2.10GHz (16Core) x2 Memory: 64GB 開発環境(Fortran/C/C++/Python) GNU/PGI Complier, Intel Parallel Studio XE, Anaconda Python
GPU ノード	GPU Tesla P100 ノード: 8 nodes, 16CPU, 256Core, 16GPU GPU Tesla K40 ノード： 4 nodes, 8CPU, 80Core, 8GPU 開発環境(Fortran/C/C++/Python) GNU/PGI Complier, Intel Parallel Studio XE, CUDA, Anaconda Python

1.4 アプリケーションソフトウェア

上記プラットフォームに対して，利用可能なアプリケーションソフトウェアを表 3 に示す．マテリアルサイエンス系の科学技術計算ソフトウェアとしては, Gaussian16/GaussView、及び Materials Studio が利用可能である．なお，Gaussian16 から GPU 計算に対応可能となったため，本センターでも今後の導入を検討している．データ科学や機械学習などのソフトウェアとして，MATLAB が利用可能である．特に今年度から，コンテナ上で，TensorFlow/Caffe/Chainer などの代表的な機械学習・深層学習フレームが利用可能となった．

表 3. 各種コンパイラ・ソフトウェアとプラットフォームの対応表（2018）

ソフトウェア	概略	XC40	UV3000	PC クラスタ	GPU ノード
Gaussian 16	Gaussian 社製の 量子化学計算パッケージ	−	○	○	−
GaussView	Gaussian 社製の Gaussian 専用可視化ソフト	−	○	○	−
Materials Studio	BIOVIA 社製の材料開発統合 シミュレーションソフトウェア	−	−	○	−
MATLAB	MathWorks 社製の 数値解析ソフトウェア	−	−	○	○
Tensorflow (コンテナ環境)	Google 社製の機械学習 ソフトウェアライブラリ	○	−	○	○
Caffe (コンテナ環境)	UCB 開発の 深層学習フレームワーク	−	−	○	○
Chainer (コンテナ環境)	Preferred Networks 開発の 深層学習フレームワーク	−	−	○	○

1.5 まとめ

本報告「北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2018」は 2018 年度に情報センター提供の共有計算サーバを利用した研究の概要とその成果を報告している．mpc メーリングリストを通じて，MPC 管理グループと情報センターから本報告への寄稿依頼を行い，各著者のご厚意により，情報科学分野から 10 件，材料科学分野から 13 件，と多彩な報告書を提出いただいた．ここに深く感謝申し上げる．

現在，これまで計算機とあまり縁のなかった研究分野でも計算機実験が容易に実施できるようになり，最先端の教育研究活動を開拓，実施，展開していく上での強力な研究基盤として，計算機の重要性は激増している．システム利用状況の把握は，これまで実績のある研究分野に対するサポート強化だけではなく，新規利用実績のある研究分野を見出すことで，本学における新しい教育研究展開の潮流を知ることができる．こうした教育研究展開の把握は，将来的には，次期計算サーバ導入時の重要な策定指針となり，より充実した計算機環境の構築に繋がるものと期待される．寄稿報告を俯瞰すれば，共有計算サーバは本学の教育研究インフラとして幅広い研究

分野で利活用されている様子が見て取れる．共有計算サーバは，本学の先端的な教育研究活動をこれまで以上に躍進させる必須の教育研究基盤として，今後益々，その重要性が増していくものと期待される．

参考文献

[1] 佐藤 理史(編),"JAIST における超並列関連研究：1992 年度-1993 年度", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-94-0001, (1994).

[2] 佐藤 理史(編),"JAIST における超並列関連研究：1994 年度-1996 年度", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-97-3, (1997).

[3] 佐藤 理史(編),"JAIST における超並列関連研究(1997 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-98-1, (1998).

[4] 林　亮子(編),"JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(1998 年度-2000 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-2002-003, (2002).

[5] 林　亮子(編),"JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2001 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-2002-004, (2002).

[6] 林　亮子(編),"JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2002 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-2003-001, (2003).

[7] 林　亮子(編),"JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2003 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-2004-002, (2004).

[8] 林　亮子(編),"JAIST における並列計算機および計算サーバ利用研究(2004 年度)", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム,IS-TM-2005-001, (2005).

[9] 太田理，尾崎 泰助，佐藤 幸紀(編)，"北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2007", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2008-002, (2008).

[10] 太田理，尾崎 泰助，佐藤 幸紀(編)，"北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2008", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2009-001, (2009).

[11] 太田理，尾崎 泰助，佐藤 幸紀(編)，"北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2009", 北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム, IS-TM-2010-001, (2010).

[12] 尾崎 泰助，佐藤 幸紀(編)，"北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告

2010”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム，IS-TM-2011-001, (2011).
[13] 佐藤 幸紀, 尾崎 泰助 (編)，”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2011”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム，IS-TM-2012-001, (2012).
[14] 佐藤 幸紀， 尾崎 泰助 (編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2012”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム，IS-TM-2013-001，(2013).
[15] 佐藤 幸紀， 宮下 夏苗, 尾崎 泰助 (編), ”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2013”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム，IS-TM-2014-001，(2013).
[16] 宮下 夏苗, 井口 寧 (編)，”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2014”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科テクニカルメモランダム，IS-TM-2015-001，(2014).
[17] 井口 寧, 本郷研太，宮下 夏苗 (編)，”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2015-2016”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科・情報科学系　テクニカルメモランダム，IS-TM-2018-001，(2018).
[18] 井口 寧, 本郷研太，宮下 夏苗 (編)，”北陸先端科学技術大学院大学 共有計算サーバ使用成果報告 2017”，北陸先端科学技術大学院大学　情報科学研究科・情報科学系　テクニカルメモランダム，IS-TM-2018-002，(2018).

2. 情報科学分野の計算サーバ利用研究

第一原理計算による物質科学シミュレーション

所属・氏名　情報社会基盤研究センター　本郷研太

使用計算機: vpcc、XC40

今年度は、新学術領域「複合アニオンの創製」に関する共同研究プロジェクトで、８件の原著論文を報告している。光触媒機能を持つ層状ペロブスカイト構造や蛍光体材料を対象とした第一原理電子状態計算、及び、第一原理フォノン計算を実施し、当該物質系の機能発現機構を計算科学の観点から解明した。当該計算では、主として、vpcc にインストールされいている CASTEP、及び、XC40 上にインストールされている VASP/Quantum Espresso を利用した。

研究業績(原著論文・査読あり)

1) Asami, K.; Shiraiwa, M.; Ueda, J.; Fujii, K.; Hongo, K.; Maezono, R.; Brik, M.G.; Yashima, M.; Tanabe, S. "Crystal structure analysis and evidence of mixedanion coordination at the Ce3+ site in Y Al (Al,Si) (O,N) oxynitride garnet phosphor", *J. Mater. Chem. C*, **2019**, *7*, 1330-1336.
2) Ichibha, T.; Prayogo, G.; Hongo, K.; Maezono, R. "A new ab initio modeling scheme for ion self-diffusion coefficient applied for ε-Cu3Sn phase of Cu-Sn alloy", *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2019**, *21*, 5158-5164.
3) Matsumoto, Y.; Yamamoto, T.; Nakano, K.; Takatsu, H.; Murakami, T.; Hongo, K.; Maezono, R.; Ogino, H.; Donjgoon, S.; Brown, C.M.; Tassel, C.; Kageyama, H. "High pressure synthesis of A2NiO2Ag2Se2 (A = Sr, Ba) with a high spin Ni2+ in square planar coordination", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 756-759.
4) Wakayama, H.; Utimula, K.; Ichibha, T.; Kuriki, R.; Hongo, K.; Maezono, R.; Oka, K.; Maeda, K. "Light Absorption Properties and Electronic Band Structures of Lead Titanium Oxyfluoride Photocatalysts $Pb_2Ti_4O_9F_2$ and $Pb_2Ti_2O_{5.4}F_{1.2}$", *J. Phys. Chem. C*, **2018**, *122*, 26506–26511.
5) Asami, K.; Ueda, J.; Yasuda, K.; Hongo, K.; Maezono, R.; Brik, M.G.; Tanabea, S. "Development of persistent phosphor of Eu^{2+} doped Ba_2SiO_4 by Er^{3+} codoping based on vacuum referred binding energy diagram", *Opt. Mater.* **2018**, *84*, 436-441.
6) Kuriki, R.; Ichibha, T.; Hongo, K.; Lu, D.; Maezono, R.; Kageyama, H.; Ishitani, O.; Oka, K.; Maeda, K. "A Stable, Narrow-Gap Oxyfluoride Photocatalyst for Visible-Light Hydrogen Evolution and Carbon Dioxide Reduction", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 6648−6655.
7) Oshima, T.; Ichibha, T.; Qin, K.S.; Muraoka, K.; Vequizo, J.J.M.; Hibino, K.; Kuriki, R.; Yamashita, S.; Hongo, K.; Uchiyama, T.; Kotaro Fujii, K.; Lu, D.; Maezono, R.; Yamakata, A.; Kato, K.; Kimoto, K.; Yashima, M.; Uchimoto, Y.; Kakihana, M.; Ishitani, O.; Kageyama, H.; Maeda, K. "Undoped Layered Perovskite Oxynitride $Li_2LaTa_2O_6N$ for Photocatalytic CO_2 Reduction with Visible Light", *Angew. Chem. Int. Ed.*, **57**, 8154–8158.
8) Hongo, K.; Kurata, S.; Jomphoak, A.; Inada, M.; Hayashi, K.; Maezono, R. "Stabilization Mechanism of the Tetragonal Structure in a Hydrothermally Synthesized BaTiO3 Nanocrystal", *Inorg. Chem.*, **2018**, *57*, 5413–5419.

研究費獲得実績

1) 平成 29 年度科研費・若手研究（B)、「界面局所構造のナノモデリングに基づく濡れ性接触角の第一原理電子状態計算評価（研究代表/17K17762)」、H30 年度 1,700 千円（H29 年 4 月～H31 年 3 月).
2) 平成 28 年度新学術領域（研究領域提案型)、「複合アニオン化合物の創製：物質合成と設計指針の確立（研究分担/研究代表者：荻野拓/16H06439)」、H30 年度 2,700 千円（H28 年 8 月～H33 年 3 月).
3) 平成 27 年度科研費・基盤研究(B)、「ベイズ統計と量子化学を基盤とする新薬候補分子の探索（研究分担/研究代表者：吉田亮/15H02672)」、H30 年度 200 千円（H27 年 4 月～H31 年 3 月).
4) 平成 28 年度戦略的創研究推進事業さきがけ(個人型研究)、「ベイズ事後分布を探索重みに活用した物質構探索の予測性向上（研究代表/ JPMJPR16NA)」、H29 年度 10,500 千円（H28 年 10 月～H32 年 3 月).

ACTIVITY REPORT OF FY2018

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Tomohiro Ichiba

AFFILIATION: Ryo Maezono Laboratory, JAIST, Nomi, Ishikawa, Japan.

ADDRESS: 8-311 Dormitory, 1-8 Asahidai, Nomi, Ishikawa, 9231211 Japan.

PHONE: +81-5058065389

EMAIL: ichibha@icloud.com

WEBPAGE: N/A

A NEW AB INITIO MODELING SCHEME FOR ION SELF-DIFFUSION COEFFICIENT APPLIED TO EPSILON-Cu_3Sn PHASE OF CU-SN ALLOY

Tom Ichibha, Genki Prayogo, Kenta Hongo, and Ryo Maezono

We present a new scheme for modeling of ion self-diffusion coefficient. Our scheme broadens the applicable scope of '*ab initio* + modeling' approach, which combines modeling for self-diffusion coefficient with *ab initio* predictions. Essential concepts in our scheme are 'domain division' and 'coarse-graining' of the diffusion network, according to calculated barrier energies. With the former concept, the diffusion network is divided into a few types of simple disjunct domains. Their networks are further simplified with the latter idea that groups some ion sites and regards it as just a single site. We applied this scheme to Cu diffusion in ε- Cu_3Sn phase of Cu-Sn alloy and succeeded to reproduce experimental diffusion coefficients in a wide range of temperature.

XC40 is used for density functional theory, and especially for Nudged Elastic Band calculations.

MAKING THE MOST OF DATA: QUANTUM MONTE CARLO POST-ANALYSIS REVISITED

Tom Ichibha, Kenta Hongo, Ryo Maezono, and Alex J.W. Thom

In quantum Monte Carlo (QMC) methods, energy estimators are calculated as the statistical average of the Markov chain sampling of energy estimator along with an associated statistical error. This error estimation is not straightforward and there are several choices of the error estimation methods. We evaluate the performance of three methods, Straatsma, an autoregressive model, and a blocking analysis based on von Neumann's ratio test for randomness, for the energy time-series given by Diffusion Monte Carlo, Full Configuration Interaction Quantum Monte Carlo and Coupled Cluster Monte Carlo methods. From these analyses we describe a hybrid analysis method which provides reliable error estimates for series of all lengths. Equally important is the estimation of the appropriate start point of the equilibrated phase, and two heuristic schemes are tested, establishing that MSER minimization gives reasonable and constant estimations independent of the length of time-series.

XC40 is used for QMC calculations. VPCC is used for post-analysis by Python script.

A DMC Study on the Mechanism of the Point Defects Diffusion in the Rutile TiO2 Bulk

Tom Ichibha, Anouar Benali, Kenta Hongo, and Ryo Maezono

The mechanism of the point defects (O vacancies, Ti interstitials) diffusion in rutile TiO_2 has been studied using DFT (density functional theory), but this method would not be reliable enough for transition metal oxides. We applied DMC (diffusion Monte Carlo) method to predict the barrier energies of the diffusion routes and re-considered the diffusion mechanism. We mainly discussed these primary issues under controversy: "Which of O vacancy and Ti interstitial diffuses faster perpendicularly to *c*-direction, when they are positively charged?", "In which direction parallel or perpendicular to c- direction does Ti interstitial diffuse faster?". Our DMC predicted utmost ∼2 eV different barrier energies from the DFT values and qualitatively disagreed the DFT conclusion for the first issue. We discussed our DMC results based on Bader charge analysis as well as the saddle state structures obtained by climbing nudged elastic band method.

XC40 is used for DFT and DMC calculations.

A New Candidate Structure High Pressure Solid Hydrogen Discovered with CALYPSO Algorithm

Tom Ichibha, Anouar Benali, Kenta Hongo, and Ryo Maezono

Solid hydrogen phases under high pressures are studied by using CALYPSO/swarm structure searching algorithm, diffusion Monte Carlo methods, and DFT-phonon evaluations. A new phase with *Pbam* translational symmetry is found to be appeared in the range between 475GPa-490GPa, which is a stacking of the layers that each hydrogen molecule is accommodated within each honeycomb cell sandwiched between neighboring honeycomb layers. The appearance of the phase is consistent with preceding experiments reporting the metal- insulator transition around the pressure region.

Altix is used for DFT, and XC40 is used for DMC, respectively.

Importance of vdW and long-range exchange interactions to DFT-predicted docking energies between plumbagin and cyclodextrins

Tom Ichibha, Ornin Srihakulung, Guo Chao, Adie Tri Hanindriyo, Luckhana Lawtrakul, Kenta Hongo, and Ryo Maezono

We calculated the docking energies between plumbagin and cyclodextrins, using density functional theory (DFT) with several functionals and some semi-empirical methods. Our DFT results revealed that GD3 dispersion force correction significantly improves the reliability of prediction. Also sufficient amount of long-range exchange is important to make it reliable further, agreeing with the previous work on argon dimer. In the semi-empirical methods, PM6 and PM7 qualitatively reproduce the stabilization by docking, yet under- and over-estimating the docking energies by ∼10 kcal/mol, respectively.

Vpcc and Altix is used for DFT calculations with Gaussian09/16.

PUBLICATION LIST (ARXIV PAPER IS [TO BE] SUBMITTED TO JOURNAL)

1. T. Ichibha, G. Prayogo, K. Hongo, and R. Maezono, "A new *ab initio* modeling scheme for ion self-diffusion coefficient applied to ε-Cu3Sn phase of Cu-Sn alloy", Phys. Chem. Chem. Phys., Royal Society of Chemistry, vol.21, 5158 (2019). [査読有/IF=3.906]
2. T. Ichibha, O. Srihakulung, G. Chao, A.T. Hanindriyo, L. Lawtrakul, K. Hongo, and R. Maezono," Importance of vdW and long-range exchange interactions to DFT-predicted docking energies between plumbagin and cyclodextrins", arXiv:1904.02503 (2019). [査読無]
3. T. Ichibha, K. Hongo, R. Maezono, A.J.W. Thom, "Making the most of data: Quantum Monte Carlo Post-Analysis Revisited", arXiv (2019). [査読無] (Submitted to Phys. Rev. E)
4. R. Kuriki, T. Ichibha, K. Hongo, D. Lu, R. Maezono, H. Kageyama, O. Ishitani, K. Oka, and K. Maeda, "A Stable, Narrow-Gap Oxyfluoride Photocatalyst for Visible-Light Hydrogen Evolution and Carbon Dioxide Reduction", J. Am. Chem. Soc., ACS Publications, vol.140, 6648 (2018). [査読有/IF=14.357]
5. T. Oshima, T. Ichibha et al., "Undoped Layered Perovskite Oxynitride Li2LaTa2O6N for Photocatalytic CO_2 Reduction with Visible Light", Angew. Chem. Int., ACS Publications, vol.57, 8154 (2018). [査読有/IF=11.994]
6. H. Wakayama, K. Utimula, T. Ichibha et al., "Light Absorption Properties and Electronic Band Structures of Lead Titanium Oxyfluoride Photocatalysts $Pb_2Ti_4O_9F_2$ and $Pb_2Ti_2O_{5.4}F_{1.2}$", J. Phys. Chem. C, ACS Publications, vol.122, 26506 (2018). [査読有/IF=4.484]
7. K. Utimula, T. Ichibha, R. Maezono, and K. Hongo, "*Ab initio* search of polymer crystals with high thermal conductivity", arXiv:1811.06807,(2018). [査読無]
8. Q.S. Ken, T. Ichibha, K. Hongo, and R. Maezono, "Difficulty to capture non-additive enhancement of stacking energy by conventional *ab initio* methods", arXiv:1807.04168 (2018). [査読無]

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

1. Tom Ichibha, Anouar Benali, Kenta Hongo, and Ryo Maezono,, "A DMC Study on the Mechanism of the Point Defects Diffusion in the Rutile TiO2 Bulk".
2. Tom Ichibha, Yunwei Zhang, Kenta Hongo, Ryo Maezono, and Yanming Ma, "A New Candidate Structure High Pressure Solid Hydrogen Discovered with CALYPSO Algorithm".

ACHIEVEMENTS

1. Scholarship: Research Fellowships for Young Scientists (Japan Society for the Promotion of Science), Apr 2018-Apr 2020. [200,000 JPY / month]
2. Grant: Grant-in-Aid for JSPS Research Fellow (18J12653) (Japan Society for the Promotion of Science), Apr 2018-Apr 2020. [1700,000 JPY]
3. Grant: Grant for fundamental research (Japan Advanced Institute of Science and Technology), Apr 2018-Mar 2019.

Valence Band Engineering of Layered Bismuth Oxyhalides toward Stable Visible-Light Water Splitting

Daichi Kato/Kyoto University, Ryo Maezono/School of Information Science, Kenta Hongo/RCACI, Hiroshi Kageyama/Kyoto University

PROJECT DESCRIPTION:

A layered oxychloride Bi_4NbO_8Cl is a visible-light responsive catalyst for water splitting, with its remarkable stability ascribed to the highly dispersive O-2p orbitals in the valence band, the origin of which, however, remains unclear. In our previous project, we systematically investigate four series of layered bismuth oxyhalides, BiOX (X = Cl, Br, I), Bi_4NbO_8X (X = Cl, Br), Bi_2GdO_4X (X = Cl, Br), and $SrBiO_2X$ (X = Cl, Br, I), and their electronic structures (DOS) is obtained from DFT (Density functional theory). Combined with Madelung potential analysis, we found that Madelung site potentials of anions capture essential features of the valence band structures of these materials and its relationship with their crystal structures.

However, valence band structure is believed to be affected not only by Madelung potential but also 6s lone pair effect. This project attempts to further investigate the contribution of 6s lone pair effect on crystal structures and on band structures in various post-transition metal (i.e. Bi, Pb, etc) oxide and oxyhalides. These effect will be revealed from the analysis of COHP (Crystal Orbital Hamilton Population) and ELF (Electron Localization Function) analysis which are again based on DFT approach.

PUBLICATION LIST

[1] Kato, D.; Hongo, K.; Maezono, R.; Higashi, M.; Kunioku, H.; Yabuuchi, M.; Suzuki, H.; Okajima, H.; Zhong, C.; Nakano, K.; Abe, R.; Kageyama, H.J. Am. Chem. Soc. 2017, 139, 18725-18731.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Impact of 6s lone pair on valence band structures of post-transition metal oxides and oxyhalides; COHP analysis', [Kenta Hongo, Ryo Maezono], [journal (temporary)].

全電子第一原理量子モンテカルロ法の Na 二量体への適用

情報科学系，環境・エネルギー領域
前園 涼
使用計算機:XC40

概要

国際先端研究大学院大学 (SISSA, Italy)に所属する中野 晃佑研究員との共同研究により，全電子第一原理量子モンテカルロ法における効率的な試行波動関数作成方法を新しく開発し，それを Na 二量体へ適用した.

第一原理量子モンテカルロ法 (First-Principle Quantum Monte Carlo: QMC)は，モンテカルロ積分を利用して多体シュレーディンガー方程式を数値的に解くことで物質の電子状態を解く方法であり，現在の電子状態計算手法の内で最も厳密解に近い解が得られる手法である．QMC においても，密度汎関数理論 (DFT)に基づく第一原理計算と同様に，化学結合に関与しない内殻電子を擬ポテンシャルにより置換することがしばしば行われるが，その場合，結果が擬ポテンシャルの「質」に大きく依存してしまう．しかしながら, DFT とは異なり, QMC においては多くの制約により全電子計算が非常に難しい.

今回我々は，ハートリーポテンシャルを原子核付近で内挿により見積もることにより，計算コストを増やすことなく，全電子 QMC 用の良い試行波動関数を作成する新しい手法を考案した．さらに，本新規手法を Na 二量体に適用し，ポテンシャルエネルギー曲線 (Potential Energy Surface: PES)を格子離散化拡散モンテカルロ法 (Lattice regulated Diffusion Monte Carlo: LRDMC)により計算した(図 1(a))．図 1(b)が示すように, LRDMC で得られた PES は，実験結果と非常に良い一致を示し，また得られた結合エネルギーは，報告されている全電子 DMC の結果よりも良い値であった．全電子 DMC 計算によって Na 二量体の PES が計算された例はこれまでになく，本研究が初の事例である.

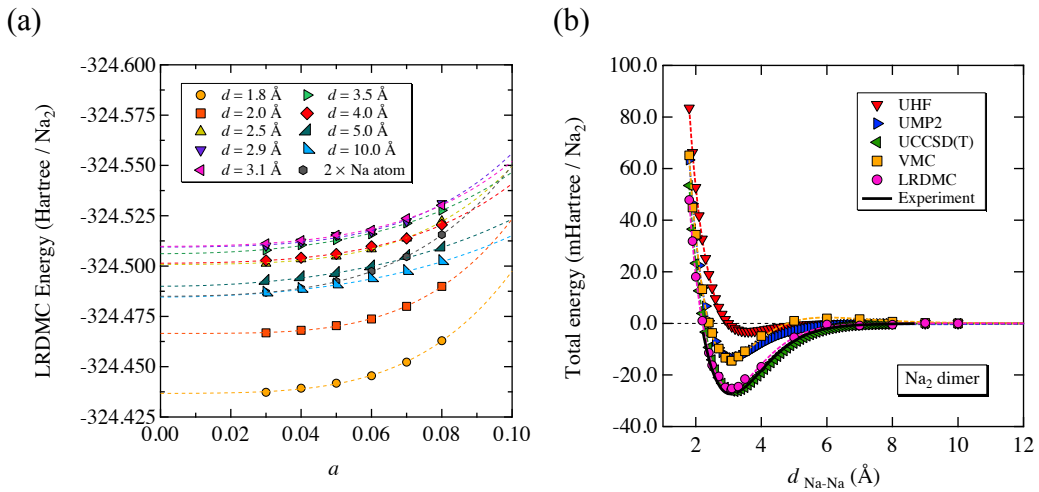


図 1 (a) 離散化定数 a に対する Na 二量体の LRDMC 全エネルギー (b) 計算された Na 二量体の PES

発表論文

1) Kousuke Nakano, Ryo Maezono, and Sandro Sorella, submitted to *J. Chem. Theory Comput.* (2019).

IBI 伝搬路における条件付き$\ell 1$ 正規化チャネル推定法

神戸大学　高野泰洋

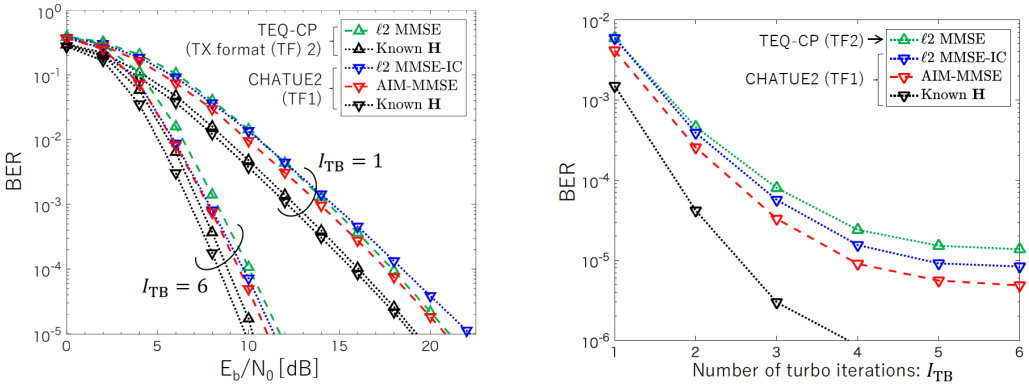
北陸先端科学技術大学院大学　松本正

使用計算機 PC cluster

研究概要

モバイル IoT ネットワークの端末は限られたバッテリで長期間動作することが期待されている．無線通信では Training sequence (TS), Cyclic prefix (CP), Guard interval (GI)等の制御信号も送信されるが，これらはデータ伝送に対してオーバーヘッドである．基地局でターボ受信を想定すると，制御信号を短縮して端末の送信電力を削減することができる．しかし，これは，受信時にチャネル推定精度劣化の要因の一つである Inter-block interference (IBI) 問題を招くことがある．IBI 問題は受信した TS 信号の干渉区間を回避することで解決できるが，短い TS に対して，このアプローチは必ずしも実施できるとは限らない．あるいは，ターボチャネル推定を拡張した Chained turbo channel estimation (CHATES) アルゴリズムにより IBI 干渉をキャンセルできるが，繰り返し処理の初回は復号器からのフィードバックがないため，当該アルゴリズムを実行できない．

そこで本研究は，IBI 回避/キャンセルと部分空間法を同時に利用した条件付き$\ell 1$ 正規化チャネル推定を提案した．提案アルゴリズムは，IBI に起因する MSE floor 問題を解決し，これにより，ターボ繰り返し回数に対する Bit error rate (BER) 収束性能を向上させる．また，提案アルゴリズムは，制御信号の短縮を通じ，上り伝送におけるスペクトラム利用効率を向上させることができる．なお，$\ell 1$ 正規化アルゴリズムの多くは貪欲法に基づくため，従来技術との比較検証に長時間のシミュレーションを要する．しかし，並列計算機を利用することで，効率的に性能評価を実施することができた．



(a) BER performance over E_b/N_0.　(b) BER performance over iterations.

Figure 1 提案法(AIM-MMSE)を用いた受信機の BER とその収束性能

研究業績

[1] Y. Takano, H.-J. Su, M. Juntti and T. Matsumoto, "A Conditional ℓ1 Regularized MMSE Channel Estimation Technique for IBI Channels," IEEE Trans. on Wireless Commun., vol. 17, no. 10, pp. 6720-6734, Oct. 2018.

Wised-StagedLSH: A new locality sensitive hashing algorithm for parallel processing on GPGPU

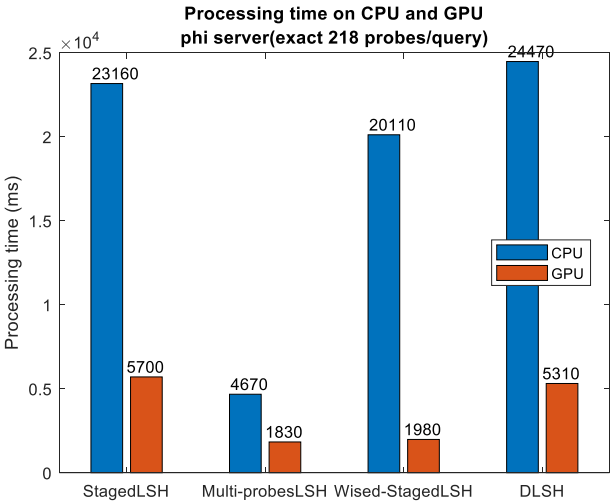
School of Information Science, Ino-Lab, Nguyen Mau Toan

Machine: pcc

The development of digital content makes the data become bigger and bigger every day. Many high dimensional datasets have constantly updated such as audio fingerprints, photos or text dataset, which needs a suitable dynamic structure to manage. Hash-table of LSH is the mapping table that indexes the hash-value(key) to the list of data/items on the database. People tend to use a static hash-table to increase the speed of searching. However, when the requirements are changed from static dataset to dynamic dataset, we have to use a different structure of LSH hash-table to adapt to the constantly updated dataset.

While StagedLSH of Yang has significant accuracy for structured high dimensional dataset, it still has problems of high memory space requires and incompatible for parallel processing. To tackle these problems, we proposed Wised-StagedLSH to enhance the parallel processing performance and optimize the required memory space.

Firstly, Divergent branch is the critical problem for almost all GPGPU devices, that makes all threads stall when selecting branch to jump. In StagedLSH algorithm, when comparing the distance of corresponding frames of the query and current data item. Which generates stall due to divergent branch after select the similarity frames. We do remove the frames comparison in Wised-StagedLSH for eliminating the divergent branch and increasing the accuracy of KNN search. However, skipping frames comparing can cause slow down the search processing by taking more vector comparing that need more clock circles than the frame comparison. An additional advantage of removing frame comparison is the search process be simply parallel in frame level. Each flow of each frame can works independently with each other.



With only 10K throughput KNN queries, our proposed method achieved around 75¥% capacity of P100 GPGPU and having higher speed-up ration than other methods. By the wised selecting the grid size, Wised-StagedLSH can easily full fill the active warps by increasing the number of throughput queries. Follow this result, we recommend to process 10K or more throughput queries for P100 GPGPGU with 1M denseSIFT database. Not only the recall of Wised-StagedLSH is increased, but also the parallel performance is boosted for maximizing the capacity of GPGPU.

ACTIVITY REPORT OF FY2018

1. PROJECT TITLE:

ELECTRICAL CONTACTS TO PHOSPHORENE – A DFT STUDY

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Dr. Nihar Ranjan Mohapatra
AFFILIATION: Associate Professor
ADDRESS: Ab4-321, IIT Gandhinagar, Palaj, 382355, Gandhinagar
PHONE: +91 79 2395 2420
EMAIL: nihar@iitgn.ac.in
WEBPAGE: http://people.iitgn.ac.in/~nihar/
MACHINE USED: (XC40/Altix/hster/Linux cluster)

2. PROJECT DESCRIPTION:

Two-dimensional (2D) van der Waals materials such as Phosphorene possess a wide range of remarkable properties that makes them attractive for a number of applications, including sub-5 nm VLSI. One of the biggest challenges in realizing high performance and energy efficient transistors is the Phosphorene-metal interface. Despite good intrinsic properties of the material, a bad contact can be the limiting factor in achieving a good overall performance. Often metal interfaces experience formation of Schottky barriers which reduces the carrier injection efficiency thus leading to decrease in the device's performance. Therefore, a proper choice of metal which can form an Ohmic contact is crucial. In addition, a strong adhesion of the metal with the 2D semiconductor parent surface is important. In this project, we are studying the metal to Phosphorene (single to multi-layer) interface using ab-initio calculations. We are also investigating the properties of metal contact on functionalized Phosphorene layer. This going work will help us in finding out a suitable metal which can be used as a contact for Phosphorene based 2D devices.

3. NAME OF CO-AUTHORS IN JAIST

3.1 LIST OF CO-AUTHORS

- Prof. Ryo Maezono/School of Information Science
- Dr. Kenta Hongo/ School of Information Science

A/How many co-authored publications with JAIST faculties so far - NIL
B/How many co-authored publications with JAIST faculties planed in future – minimum 2 this year

4. PUBLICATION LIST DURING FY2018 USING JAIST FACILITIES

There were no publications in FY2018.

5. CO-AUTHORING PROJECTS FOR FY2019 USING JAIST FACILITIES

1. Electrical contacts to Phosphorene – A DFT study (This project will be continued in FY2019. We have achieved some results. This project will be finished with some more work.)

2. The electronic properties of Phosphorene/Gallenene heterostructures (Gallenene is found to be a promising 2D Metal. In this work we will study the Phosphorene-Gallenene interface.)

5.1 LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

It is planned to have two publications from project 1 and one publication from project 2. Project 1 and 2 are listed above.

等式論理を核とする自動定理証明

氏名・所属：大井　悠輔（先端科学技術研究科）、廣川　直（情報科学研究科）
使用計算機：PC クラスタシステム（vpcc）

自動定理証明は、論理式で記述された仮定と予想を受け取り、仮定の成立が予想の成立を導くかどうかを自動で判定する。これまで様々な自動定理証明ツールが開発されてきたが、例えば次のような反証すべき問題、即ち仮定の成立が必ずしも予想の成立を導かないと判定すべき問題に対しては、単純な問題であっても解答できないことが多い：

$$\text{仮定：}\quad \left\{ \begin{array}{ll} \forall x. & x - \mathsf{0} = x, \\ \forall x. & \mathsf{0} - x = \mathsf{0}, \\ \forall x, y. & \mathsf{s}(x) - \mathsf{s}(y) = x - y \end{array} \right\}, \quad \text{予想：} \quad \exists x. \quad x - x = \mathsf{s}(x).$$

これまでの等式論理に基づく自動定理証明は、まず与えられた問題を仮定も予想も等式で表される問題に変形し、次に仮定の等式系に対して同値変形と向き付けを行うことで、予想の成立または不成立を判定できる項書換え系を探索する。しかし上記の例のような問題に対しては項書換え系の探索が終了せず、反証に失敗する。

ところが実際には反証すべき問題において仮定に対する操作が同値変形である必要はなく、変形前の仮定の下で成立する等式が変形後の仮定の下でも成立することを保証できれば十分である。従って項書換え系の探索が成功しやすくなることを目的とした変形を施すことが可能であり、このアプローチにより上記の例の問題に対して反証に成功する。

当研究ではこのアプローチを採用した自動定理証明ツール Moc を開発している。実験には本分野標準の定理証明問題集 TPTP [1] および合流性問題集 [2] を用いている。3534 問の問題に対して 1 問 60 秒のタイムアウトで実験を実施しており、この実験の計算資源として本学の PC クラスタシステムを使用している。Moc は次回の合流性の競技会 CoCo [3] および自動定理証明の競技会 CASC [4] へ参加する予定である。

参考文献

[1] **The TPTP Problem Library for Automated Theorem Proving.** http://www.tptp.org/

[2] T. Sternagel. **Reliable Confluence Analysis of Conditional Term Rewrite Systems.** PhD thesis, University of Innsbruck, 2017.

[3] **Confluence Competition.** http://project-coco.uibk.ac.at/

[4] **The CADE ATP System Competition.** http://tptp.cs.miami.edu/~tptp/CASC/

INCONSISTENCIES IN *AB INITIO* EVALUATIONS OF NON-ADDITIVE CONTRIBUTIONS OF DNA STACKING ENERGIES

Qin Ken, Prof. Ryo Maezono/School of Information science, Prof. Kenta Hongo/ RCACI.

PROJECT DESCRIPTION:

The non-additivity in interactions is obviously expected in intermolecular bindings due to the induced polarizations caused by the quantum fluctuations, such as vdW (van der Waals) forces. We evaluated the non-additive contributions of the intermolecular interactions in B-DNA stacking by using diffusion Monte Carlo methods with fixed node approximations (FNDMC). We found that FNDMC gives qualitatively different estimations of the non-additivity from those obtained using any other ab initio method shown as Figure 2. Given that the estimations of the stacking energies themselves exhibit no obvious differences, the error cancellation of the fixed-node error may not work well when we divide a system into sub-systems that are connected to each other by hydrogen bonds. The target systems are 10 kinds of the Watson-Crick base pairs in B-DNA, the example of geometry for 'AA:TT' pair is shown as Figure 1. The geometries for all ten pairs are provided by S˘poner J. et al.'s work, and we take them to be fixed. The specific difference observed only for FNDMC in Figure 2 may be because of the poor cancellation of the quantities including the evaluations of the sub-systems connected to each other by the horizontal hydrogen bonding shown in Figure 1.

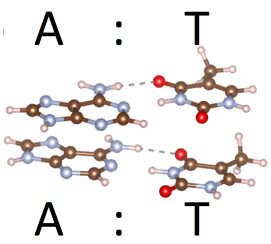


Figure 1. The example of geometry for 'AA:TT' pair. There are two layers in this system and each layers are composed by one base pair. In 'AA:TT' structure, A:T means the adenine-thymine base pair.

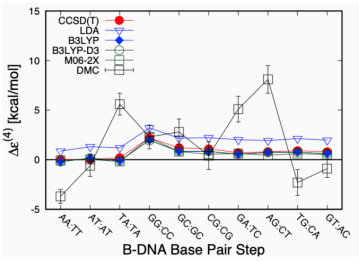


Figure 2. Non-additive contribution, evaluated by various methods. The specific difference observed only for FNDMC results. For CCSD(T), the data is taken from the preceding work.

PUBLICATION LIST

[1] T. Oshima, T. Ichibha, K.S. Qin, K. Muraoka, J.J.M. Vequizo, K. Hibino, R. Kuriki, S. Yamashita, K. Hongo, T. Uchiyama, K. Fujii, D. Lu, R. Maezono, A. Yamakata, H Kato, K. Kimoto, M. Yashima, Y. Uchimoto, M. Kakihana, O. Ishitani, H. Kageyama and K. Maeda, "Undoped Layered Perovskite Oxynitride Li2LaTa2O6N for Photocatalytic CO2 Reduction with Visible-Light" Angew. Chem. Int. Ed. 130(27), 8286-8290, 2018

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Inconsistencies in *ab initio* evaluations of non-additive contributions of DNA stacking energies', **K. Qin**, K. Hongo, R. Maezono, Int. J. Quantum Chem.

格子暗号に対する SVP 求解アルゴリズムの研究

所属・氏名 藤崎研究室 関口 智広

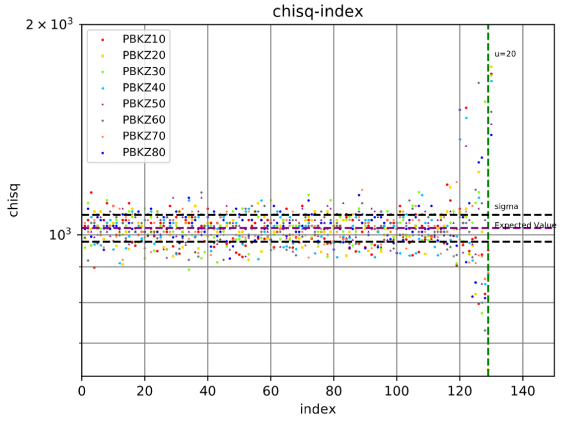
使用計算機: SGI UV300

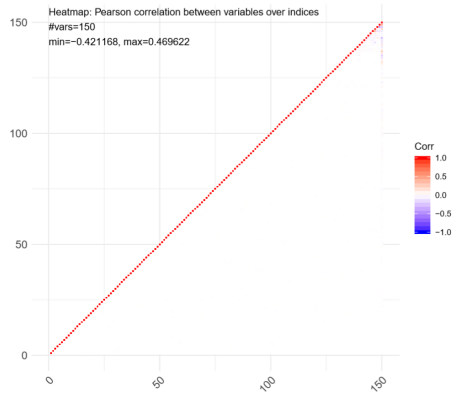
PC クラスタシステム(VPCC)

概要

量子コンピュータが実用化されると Shor のアルゴリズムによって既存の公開鍵暗号システム（RSA 暗号、DH 鍵交換等）は安全ではなくなる。そこで耐量子コンピュータアルゴリズム暗号である格子暗号が注目されている。格子暗号は最短ベクトル問題(SVP)が簡単に解かれると安全性を保証できない。そこで、本研究ではより高次元格子に対する SVP 求解アルゴリズムである Sampling Reduction、SubSieve+アルゴリズムに着目した。

PC クラスタシステム(VPCC)を使用して、これらアルゴリズムからの出力ベクトルに対する線形結合係数の調査を行った。「結合係数はランダム、独立である」と仮定すると計算量の見積もりが容易である。格子の次元数 n とすると、Sampling Reduction の場合は$n * 2^{20}$個、SubSieve+の場合は結合係数$n * 2^{n-d}$ <2^{19}個の結合係数を出力し、「ランダム、独立であるか」の統計量調査を行った。格子の基底はダルムシュタット工科大学のコンテスト問題（SVP、IDEAL、LWE）および NTRU チャレンジ格子を用いて調査を行った





また、SubSieve+アルゴリズムの改良アルゴリズムを提案し、既存手法との比較するための解読実験を行った。100 次元の SVP チャレンジ格子に対して既存の手法より比較的早く解読できることを確認した

さらに、SVP 求解アルゴリズムはメモリを多く使用するため SGI　UV3000 を使用して、ダルムシュタット工科大学のコンテスト問題（IDEAL)への解読実験を行った。それにより、未解読問題の次元数 132、134、138、140 の解読に成功した

計算機を使用した本研究は、修士論文の執筆に帰依した。また、本研究の一部を暗号の国内研究会 SCIS2019 に投稿し口頭発表を行った

関連発表論文

1) 関口智広、藤崎英一郎、 照屋唯紀、「Randomness Assumption の考察」、 SCIS2019　4B1-4 [口頭発表/査読無]

2) 関口智広、藤崎英一郎、 照屋唯紀、[/投稿先未定]

ACTIVITY REPORT OF FY2018

OXYGEN RELEASE MECHANISM OF POSITIVE ELECTRODE ACTIVE MATERIAL

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Takahiro Toma

AFFILIATION: Hongo Lab., JAIST, Nomi, Ishikawa, Japan

EMAIL: mwktmt1803@icloud.com

PROJECT DESCRIPTION:

近年、電気自動車用途を始めとしたリチウムイオン二次電池の需要が増加基調にある。リチウムイオン二次電池用正極活物質には、層状岩塩型結晶構造を有する LiMe(Me=Ni, Co, Mn)O_2 が広く適用されており、その電気化学反応は(1)式で表す通り MeO2 に Li が挿入脱離するホスト-ゲスト反応である。

$$Li_{1-x}MeO_2 + xLi^+ + xe^- = LiMeO_2$$

電気自動車用途では、限られた電池搭載スペースで走行航続距離を長くすることが求められるため、高いエネルギー密度が要求される。電池のエネルギー密度を増加させる代表的な方法として、材料の重量あたりの充放電容量(比容量)を向上させる手法があり、LiNiO2 に代表されるような、Ni 比率の高い正極活物質が高い比容量を示すことが知られている。これは、Ni 比率の増加に伴い Li 挿入脱離の酸化還元反応電位が低くなるため、同じ充電電圧で脱離可能な Li 量が増加するためである。一方で、$LiMeO_2$ から Li の脱離が進行すると、MeO_2 の生成が進行する。この MeO_2 は構造が不安定なことが知られており、温度上昇により容易に酸素の放出を伴った分解反応を引き起こす。この際発生した O_2 と電池の有機電解液とが反応し、発熱、発火反応を引き起こすという課題が知られている。しかしながら、酸素放出のメカニズムについての報告例は多くない。そこで本研究では、第一原理計算を用いて正極活物質の Li 脱離に伴う酸素結合エネルギーの変化を調査した。充電時に酸素放出した活物質粒子を球面収差補正機能付き走査型透過電子顕微鏡(Cs-STEM)で観察した結果、粒子表面が初期構造の六方晶構造(R3-m)から単斜晶構造(C2/m) へ相転移していることが明らかとなった。そこで、R3-m および C2/m 構造の MeO2 についてそれぞれ第一原理計算を行った所、C2/m 構造の酸素結合エネルギーが R3-m 構造より小さいことが確認され、実験結果を裏付ける結果が得られた。本結果から、酸素放出を抑制する材料設計のアプローチとして、正極活物質の C2/m 構造への相転移を抑制することが有用であるという指針が得られた。

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] ' Relationship between crystal structure and oxygen release behavior of LNO', K. Hongo, R. Maezono, J.Power.Sorces

...

3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバ利用研究

ACTIVITY REPORT OF FY2018

AB INITIO THERMODYNAMIC PROPERTIES OF CERTAIN COMPOUNDS IN ND-FE-B SYSTEM

Adie Tri Hanindriyo/School of Material Science, Soumya Sridar, K.C. Hari Kumar, Kenta Hongo, Ryo Maezono

PROJECT DESCRIPTION:

Calculations have been performed to investigate thermodynamic properties of intermetallic compounds within the Nd-Fe-B system. Materials within the system possess intriguing magnetic properties, and one compound ($Nd_2Fe_{14}B$) in particular is of great importance as the basis of a class of powerful permanent magnets. Investigation from *ab initio* is performed to supplement existing database of thermodynamic properties in particular for the application of the CALPHAD method, which calculates the phase diagram of a system by modelling and optimizing model parameters for the free energy. These models may utilize *ab initio* results in order to "fill the gaps" where experimental measurements do not exist, especially for several lesser known or newly discovered compounds.

Two key properties are obtained from first-principles calculations, namely the enthalpy of formation and specific heat (in constant pressure or C_p). Fig 1 shows an example of the results obtained for the C_p of NdB_6 in comparison with theoretical prediction from another work.

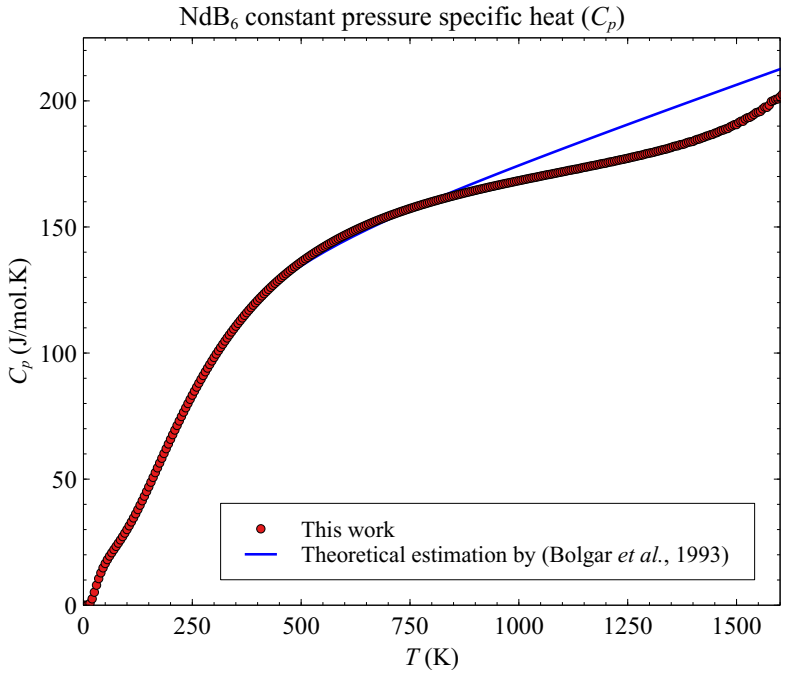


Fig 1 NdB_6 calculated C_p, in comparison with theoretical prediction

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] '*Ab initio* thermodynamic properties of certain compounds in Nd-Fe-B system', [Adie Tri Hanindriyo, Soumya Sridar, K.C. Hari Kumar, Kenta Hongo, Ryo Maezono], [journal (temporary)].

DIFFUSION MONTE CARLO EVALUATION OF DISILOXANE

Adie Tri Hanindriyo/School of Material Science, Guo Chao, Tom Ichibha, Kenta Hongo, Ryo Maezono

PROJECT DESCRIPTION:

The disiloxane molecule (Si_2H_6O) or disilyl ether is the simplest molecule which contains the Si-O-Si bond ubiquitous in many important silicate compounds. The description of the flexible Si-O-Si angle is vital to the properties of silicates and as such is very important to proper modelling. Past studies regarding this matter have produced wide-ranging results, either for the magnitude of the angle to the linearization barrier.

Using diffusion Monte Carlo (DMC), which to date is the most reliable *ab initio* method (especially with respect to electronic correlation), the nature of the Si-O-Si bond is investigated in this work. We focus on the result dependence on both the basis set used to describe the wavefunction and the exchange-correlation functional in density functional theory (DFT), which is also observed in past works in this area. Trial wavefunction for DMC is taken from a DFT run using varying basis sets and exchange-correlation functionals and with results from both DFT and CCSD(T) used as points of comparison.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Diffusion monte carlo evaluation of disiloxane', [Adie Tri Hanindriyo, Guo Chao, Tom Ichibha, Kenta Hongo, Ryo Maezono], [journal (temporary)].

SPECIFIC HEAT OF $BaFe_2S_3$ AND $BaFe_2Se_3$

Adie Tri Hanindriyo/School of Material Science, Kenta Hongo, Ryo Maezono

PROJECT DESCRIPTION:

Compounds $BaFe_2S_3$ and $BaFe_2Se_3$ have recently garnered attention due configurations present in the crystal structure which is potentially a multiferroic material. $BaFe_2Se_3$ has been predicted to possess multiferroicity due to the iron ladder structure, while traditionally interest in the material has been focused on its potential for superconductivity. A view from this new perspective may extend the search for multiferroicity to beyond this compound, to other materials possessing similar structures and configurations.

Ab initio methods may play an important part in this endeavor. In this case, the specific heat of $BaFe_2S_3$ and $BaFe_2Se_3$ is sought after using phonon calculations with DFT as the force calculator. Multiple, high-cost calculations are required especially considering the doubled unit cell necessary to reproduce the complex magnetic ordering present within both structures. Investigation into the thermodynamic properties of both compounds may present a new perspective on the ongoing endeavor to understand multiferroicity in $BaFe_2Se_3$.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Specific heat of $BaFe_2S_3$ and $BaFe_2Se_3$', [Adie Tri Hanindriyo, Kenta Hongo, Ryo Maezono], [journal (temporary)].

INVESTIGATION OF TWISTED BILAYERS IN $MoSe_2$

Adie Tri Hanindriyo/School of Material Science, Poonam Kumari, Priya Mahadevan, Ryo Maezono

PROJECT DESCRIPTION:

As a collaboration with Poonam Kumari and Prof. Priya Mahadevan, this project is a continuation of their study into bilayer structures in $MoSe_2$. It has been discovered that, contrary to expectations, twisting the xy-plane orientation of one layer with respect to the other does not change the interlayer distance between the bilayers. Varying the twisting angle is an important part in the study, and one twisting angle in particular (2.7^o) presents a challenge due to the large unit cell required to study this phenomenon (1626 atoms, ~10000 electrons). High-performance computing is a necessity in this project for the reason above.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Twisted bilayers of $MoSe_2$', [Adie Tri Hanindriyo, Poonam Kumari, Priya Mahadevan, Ryo Maezono], [journal (temporary)].

DIFFUSION MONTE CARLO STUDY OF HYDROGEN ADSORPTION ON SILICON CARBIDE NANOTUBE

Genki Imam Prayogo, Ryo Maezono/School of Information Science

PROJECT DESCRIPTION:

Silicon carbide nanotube (SiCNT) is a novel type of cylinder-shaped nanostructure that is similar to carbon nanotube (CNT) but with Si atom substituting one position. It has been theoretically and experimentally investigated for use as hydrogen storage material and chemical sensors, among others. Experimental findings suggested that even in pure form, it has better storage capacity by weight than CNT. The mode of adsorption is predicted to consist of mostly physisorption, where most interactions are from dispersion forces. Most of previous theoretical studies were based on conventional Density Functional Theory (DFT), which has known difficulties in describing such interaction. In this study, we use Diffusion Monte Carlo instead of DFT to evaluate the adsorption energetics, comparing optimized geometries derived from multiple exchange-correlation functionals at DFT level. We found that the geometry and binding energy to be highly variable depending on the choice of exchange-correlation functional at DFT level. We also found that the PBE functional was found to give the best (lowest) DMC energy and that predicted adsorption energy is much stronger than DFT predicted.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Diffusion Monte Carlo study of hydrogen adsorption on Silicon Carbide Nanotube', R. Maezono, K. Hongo, J. Chem. Phys.

DIFFUSION MONTE CARLO STUDY OF BORON NITRIDE SYSTEMS

Genki Imam Prayogo, Ryo Maezono/School of Information Science

PROJECT DESCRIPTION:

Cubic boron nitride (c-BN) is a very hard, chemically inert material that is also stable at high temperature and pressure. It is highly attractive for use as superhard coating materials and abrasives. Its fabrication requires very high temperature and pressure, in the range of 8 GPa at temperature of above 2000 K. A more recent technique adds aluminium nitride into melted phase of BN, which has been found to significantly lower the required temperature for c-BN formation. However, a reliable phase diagram for this system is currently unavailable, with previous experiments arriving at different conclusions. We aim to derive this computationally, starting with the BN polymorphs. There has been an established method for doing this, by combining computational thermodynamics with *ab initio* derived energetics. Density functional theory (DFT) is the *ab initio* method of choice for this approach, mainly due to its more accessible computational cost. It is however, unable to accurately describe van der Waals (vdW) interactions, which is unfortunately present in the hexagonal form of boron nitride (h-BN). We found that conventional gradient-corrected functional greatly overestimates interlayer distance in this phase, while supposedly vdW-corrected DFT functionals still failed to reproduce correct energetic ordering between various BN polymorphs. We expect the use of Diffusion Monte Carlo (DMC) instead of DFT will improve this considerably, as it is able to properly treat long-range correlations which give rise to the said vdW interaction.

LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1] 'Application of Diffusion Monte Carlo to the evaluation of thermodynamical properties of AlN-BN system', R. Maezono, Phys. Rev. Materials.

ACTIVITY REPORT OF FY2018

1. PROJECT TITLE:

Critical Temperature Calculation of $ThCr_2Si_2$- Type Structure using Density Functional Theory Approach

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Gewinner Senderanto Sinaga

AFFILIATION: Ryo Maezono Laboratory, JAIST, Nomi, Ishikawa, Japan.

ADDRESS: 2-116 JAIST Student Housing, 1-8 Asahidai, Nomi city, Ishikawa

EMAIL: mwkgwn1804@icloud.com

2. PROJECT DESCRIPTION:

Critical temperature is one of the most interesting phenomena in condensed matter physics for discovering the new materials which has high critical temperature. $ThCr_2Si_2$-type structures have been attracted a lot of attentions both experimental and theoretical studies since it showed a promising superconductivity capability. The general composition of the $ThCr_2Si_2$-type structure (I4/mmm) can be denoted as AB_2X_2 where [A = rare-earth or alkaline-earth metal], [B = transition metal], and [X = p-block element] as shown as figure 1. The structure consists of the stacking ordered of A-[X-B_2-X]- A. The [B_2X_2] layer is considered as a quasi-two-dimensional network. Sometimes X-X bonding are formed in the interlayer of [B_2X_2] to give a three-dimension network which is called a collapsed tetragonal ('cT'). Critical temperature (Tc) calculation of $ThCr_2Si_2$-type structures are done by performing electron-phonon calculation using Quantum Espresso package. First, we provide the optimized structure using 'vc-relax' calculation and then the optimized structure will be applied to self consistent calculation (scf). After doing scf calculation, we perform phonon calculation producing a set of dynamical matrix. From dynamical matrix, we need to calculate the corresponding set of interatomic force constant using q2r. And the last, by performing lambda.x calculation which estimate the critical temperature using via allen-dynes equation (equation 1) which generate critical temperature of the materials.

$$Tc = \frac{\omega eff}{1.2}\exp\left(\frac{-1.04(1+\lambda)}{\lambda-\mu^{*}(1+0.62\lambda)}\right)$$

(equation1)

Where, λ is the elctron-phonon coupling (EPC) constant, μ^{*} is the effective electron-electron interaction and ωeff is the effective phonon frequency.

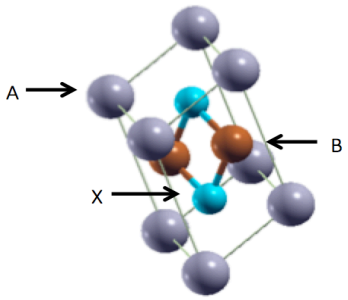


Figure 1 Unit cell of ThCr2Si2-type structure. The purple ball refer to rare-earth element, brown ball refers to transition metal, and light blue refers to p block elements

混合脂質膜における脂質分子の膜透過・離脱に関する自由エネルギー曲線

所属・氏名 理化学研究所・齋藤大明
所属・氏名 北陸先端大学院大学・水上卓
使用計算機: xc40

【序】 生体膜への分子添加は膜内の構造や運動性を大きく変化させ，分子透過等の膜機能に大きな影響を及ぼす。特に，膜へのコレステロール添加は液晶相から凝集相（liquid-ordered phase）への転移を引き起こし，分子透過特性が大きく減少することが知られている。そのような膜の凝集効果はコレステロール以外の分子（例えば，セラミド，ジアセルグリセロール，スフィンゴミエリン）を添加した場合にも生じることが知られているが，その凝集効果や分子機構は明らかではない。そこで本研究ではコレステロール，セラミド，ジアセルグリセロール，スフィンゴミエリンを含んだ POPC 混合脂質膜の分子動力学シミュレーションを実行し，これら混合脂質膜の構造・ダイナミクスの詳細を解析する。さらに，これら混合脂質膜における POPC の膜厚方向に対する自由エネルギー曲線を評価し, 脂質の flip-flop や膜からの離脱(desorption)過程における分子添加の効果について検証する。

【方法】 始めに POPC を 128 個，水分子を 8192 個用いた POPC 脂質二重層膜を作成し，これを参照系とした。混合脂質膜は POPC 分子の代わりにコレステロール(CHOL)，セラミド(CER)，ジアセルグリセロール(DAG)，スフィンゴミエリン(PSM)を添加して作成した。分子濃度は全て 20 mol%とした。MD シミュレーションは全て定温・定圧条件下(T=303K, P=1atm)で実行した。脂質の力場には CHARMM36 を用い[2]，水のモデルは TIP3 を用いた。PMF 計算はアンブレラサンプリング法と LogMFD 法により評価した[3,4]。反応座標は z 軸（膜厚方向）とし，POPC 脂質の P 原子を膜内中心方向に移動させた場合の PMF を膜透過(Flip-flop)の自由エネルギー曲線, 膜外方向に移動させた場合の PFM を POPC の膜からの離脱(desorption)エネルギー曲線と定義して計算を行った。MD・PMF 計算には GROACS5.2.1 を用いた。

【結果・考察】表 1 に MD 計算から得られた各系における膜構造パラメータ（膜面積，膜厚，オーダーパラメータ，極性基の配向）の結果を示す。全ての系において分子添加により膜面積が減少し，膜厚が増加する結果を得た。またそれに伴い POPC のアシル鎖の配向性も増加する結果が示された。これらの結果から分子添加による膜の凝集効果としては PSM < DAG < CER < CHOL であることが示された。これらの凝集効果の違いは添加分子の構造や相互作用の違い（分子の剛性，極性基の大小，水素結合数の違い）によると考えられる。

Table1. Membrane structural parameters for binary POPC bilayers

	Area per molecule [Å^2]	$d_{P\text{-}P}$ [Å]	$-S_{CD}$	PN angle [deg.]
Pure POPC	63.5 (1.3)	39.1 (0.7)	0.15	69.5
POPC/CHOL20	51.8 (1.1)	43.3 (0.7)	0.21	54.8
POPC/CER20	57.4 (1.2)	41.9 (0.7)	0.18	53.5
POPC/DAG20	60.4 (1.3)	41.2 (0.7)	0.17	53.5
POPC/PSM20	61.8 (1.1)	39.1 (0.6)	0.16	77.8

図 1 に PMF 計算により得られた各系における POPC の膜厚方向に対する自由エネルギー曲線の

結果を示す。自由エネルギー曲線の極小点は POPC の P 原子の膜内における平衡位置（およそ z = 20 Å付近）に対応する。z = 0 より少し負の領域で PMF のピークが存在し、これが Flip-flop 自由エネルギー障壁に対応する。また z = 40 Å以降は水バルク領域となり，PMF 値は POPC の膜系からの脱離 (desorption)エネルギー値に対応する。Flip-flop 自由エネルギー値の比較の結果，POPC ≈ DAG ≈ CER < PSM < CHOL となった。これは CHOL 等の分子添加により，膜内パッキングが十分に増加したことが一因と考えられる。一方，膜からの脱離エネルギーを比較した場合，CHOL ≈ PSM < CER ≈ DAG < POPC となる結果が示された。これは POPC の膜から離脱おいては CHOL や PSM はエネルギー障壁を減少させる効果があることを示している。これは POPC の脱離過程における水和による構造変化が関係していると考えられる。

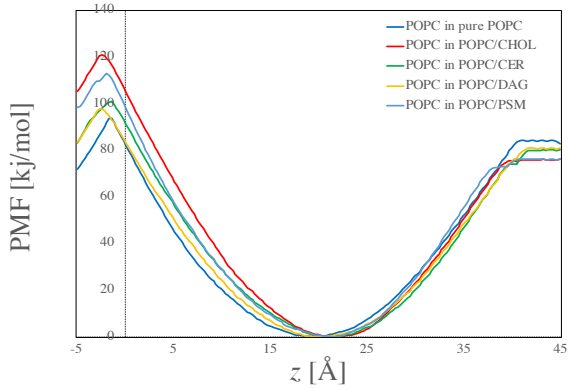


Fig 1. Free energy profiles for binary POPC mixture bilayers

【論文・学会発表】

1. Yousuke Takaoka, Mana Iwahashi, Andrea Chini, Hiroaki Saito, Yasuhiro Ishimaru, Syusuke Egoshi, Nobuki Kato, Maho Tanaka, Khurram Bashir, Motoaki Seki, Roberto Solano, Minoru Ueda, “A rationally designed JAZ subtype-selective agonist of jasmonate perception”, NATURE COMMUNICATIONS, 9(3654), 1-13 (2018). （査読あり）
2. Hiroaki Saito, Tetsuya Morishita, Taku Mizukami, Ken-ichi Nishiyama, Kazutomo Kawaguchi, and Hidemi Nagao, “Molecular dynamics study of binary POPC bilayers: molecular condensing effects on membrane structure and dynamics”, IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series, 1136, 012022, (2018). （査読あり）
3. Hiroaki Saito, Tetsuya Morishita, Taku Mizukami, Ken-ichi Nishiyama, Kazutomo Kawaguchi, and Hidemi Nagao, “Free energy profiles of lipid translocation across pure POPC and POPC/CHOL bilayer: all-atom molecular dynamics study”, IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series, in press. （査読あり）

「InSb 及び Sb_2Te_3 の電子状態および光学誘電率の第一原理計算」

石川工業高等専門学校・佐野陽之
JAIST 応用物理学領域・水谷五郎
使用計算機：SGI UV3000, Cray XC40

＜目的＞

Sb_2Te_3 や InSb のようなアンチモナイドは超解像光ディスクの機能層材料として用いられている。これらの材料はレーザー光照射によって融解すると光学特性が大きく変化し、それが超解像現象を引き起こす。Blu-ray Disc で用いられている光子エネルギー3.06 eV においては、Sb_2Te_3 は融解によって光吸収が減少し、InSb は逆に増大することが実験によって確認されている。これらの光学特性変化の起源を調べるために、InSb と Sb_2Te_3 の結晶及び液体状態の電子状態と誘電率の第一原理計算を行う。

＜内容＞

本研究の計算には VASP（Vienna ab-initio simulation package）を用いた。Sb_2Te_3 の液体状態の構造モデルは、235 個の原子からなる MD 計算によって作成した。電子状態計算は、MBJLDA 近似を用い、Spin-orbit coupling 効果を考慮した。誘電率はバンド間遷移を双極子近似で計算し、Drude 項は考慮しなかった。

結晶 Sb_2Te_3 はバンドギャップ 0.15eV の半導体的電子状態を示すが、融解によってフェルミ準位付近の電子状態密度（DOS）が増大しバンドギャップが消失することが計算によって示された。DOS の観点からは金属的な電子状態への変化が起こっているように見えるが、液体 Sb_2Te_3 の抵抗率の温度係数は負の値を示すことが知られており、液体 InSb のような単純な金属的電子状態とは異なった電子状態が形成されていると考えられる。

Sb_2Te_3 の光吸収が融解によって減少する様子が計算によって定量的に再現できた。複素誘電率・屈折率の解析から、3.06eV における光学遷移は融解によってほとんど変化せず、1.5eV 付近の光学遷移の減少が 3.06eV の光吸収の減少を引き起こしていることが分かった。また、結晶 Sb_2Te_3 は 1.5eV 付近に大きな光学遷移をもつ半導体的電子状態を示すのに対し、結晶 InSb はより高エネルギー側の 4eV 付近に大きな光学遷移を持っている。この違いが融解による光吸収変化の違いの原因と考えられる。

なお本研究は、JAIST 応用物理学領域の水谷教授との共同研究に基づいて実施した。

＜研究業績等＞　本研究に関連する発表論文等を以下に示す。

1) H. Sano, M. Kuwahara, G. Mizutani, “First principles study of the electronic and optical properties of crystalline and liquid Sb2Te3: Phase-transition-induced changes in optical properties”, Jpn. J. Appl. Phys. 57(9S1), 09SD01/1-6 (2018). (online 2018.7.27)（査読有）

＜関連取得研究費＞

1) 科研費基盤研究（C）「ナノサイズ光学窓の形成による超解像効果発現の最適条件の理論的探索
平成27年度～30年度、研究代表者：佐野陽之

Lyotropic ordering for high proton conductivity in sulfonated semialiphatic polyimide thin films

School of Materials Science
Kensaku Takakura, Yuki Nagao
Used MPC：pcc

Influence of the semi-aliphatic backbone on the molecular ordering and proton conductivity was investigated compared to the rigid aromatic backbone in highly proton-conductive organized polyimide thin films. We newly synthesized two alkyl sulfonated semi-aliphatic polyimides (ASSPIs) with different molecular weights and investigated their molecular organized structure, proton conductivity, water uptake, and dissociation state of protons from sulfonic acid groups in thin films by *in-situ* measurements for grazing incidence small-angle X-ray scattering (GISAXS), quartz crystal microbalance (QCM), Fourier transform infrared (FT-IR) spectra, and impedance spectra. Declining of planarity in the semi-aliphatic backbone reduced the aggregative character and molecular ordering in the lyotropic liquid crystalline (LC) structure. However, the higher molecular weight ASSPI exhibited the oriented lamellar structure in spite of lower planarity of the main chain. The proton conductivity of the oriented lamellar thin film displayed a more than half order of magnitude higher value of 1.5×10^{-1} S cm^{-1} than that of the non-oriented lamellar thin film (3.0×10^{-2} S cm^{-1}) at 25°C and 95% RH. Density functional theory (DFT) calculations were performed to obtain polymer unit length of the polymer backbone using the DMol3 package in Materials Studio 2017 (BIOVIA). These results indicate that, in sulfonated polyimide thin films, the lamellar orientation greatly contributes to the high proton conductivity in the ASSPI thin films.

Acknowledgment
The authors thank prof. Shusaku Nagano at Nagoya University for determining the organized structure by in situ GISAXS.

Publications (peer-reviewed)

1. K. Takakura, Y. Ono, K. Suetsugu, M. Hara, S. Nagano, T. Abe, Y. Nagao, “Lyotropic ordering for high proton conductivity in sulfonated semialiphatic polyimide thin films “, *Polymer Journal*, **51**, 31 - 39 (2018). (Selected as Cover Picture)
2. 長尾祐樹, “分子配向と組織構造を利用した高プロトン伝導性高分子薄膜の研究 (Review)”, *高分子論文集,* **75**, 576 - 587 (2018).

自発的な分子集合体の形成とその外場応答

マテリアルサイエンス系 講師　下川 直史
東京大学 物性研究所 物質設計評価施設 助教　樋口 祐次
千葉大学大学院 理学研究院 物理学研究部門 助教　伊藤 弘明
使用計算機：SGI Altix UV3000, Cray XC40

【研究背景】

高分子・液晶・コロイド・両親媒性分子・生体物質などの物質群はソフトマターと呼ばれ、熱揺らぎ程度での容易な変形、高い内部自由度、実時間で観測可能なほどの遅いダイナミクス（長い緩和時間）、階層的な秩序構造といった性質を有している。ソフトマターの平衡・非平衡での秩序形成の理解は工業的な応用だけに留まらず、生物・医学の発展にも寄与している。

ソフトマターの構成単位は巨大なマクロ分子であったり、分子集合体であったりと非常に大きい。さらに、変形や相分離といった多数の分子が共同的に動く現象がターゲットとなる。計算機シミュレーションによりこれらマクロな現象を記述することは有用であるが、全原子計算などは計算コストがかかりすぎ現実的ではない。そこで、構成分子を“粗視化”することで、計算コストを落とし、長時間で多数の分子が引き起こす現象の記述に取り組んだ。

【研究成果】

１．電場下における荷電脂質膜の相分離と変形挙動

生体膜のモデル系や薬剤送達の器として、人工脂質二重膜小胞（リポソーム）が用いられている。本研究では生体膜に荷電脂質が含まれることに注目し、粗視化分子動力学シミュレーションを用いて荷電脂質を含むリポソームの静電相互作用と構造の関係を調べている。

相分離ドメインの位置やダイナミクスの制御を目的として、外場として直流電場 $\boldsymbol{E}=\boldsymbol{e}_z E$ を与えた。荷電脂質を 25%含むベシクルにおいて、電場強度 E に応じて荷電相分離ドメイン内での細孔形成が観察された。細孔形成確率の電場強度依存性を Fig. 1 に示す。また、荷電脂質を 10%含むベシクルにおいては、相分離が完了しても荷電ドメインが臨界サイズを超えず細孔形成は生じない。このとき電場の向きを反転させることで、荷電ドメインが移

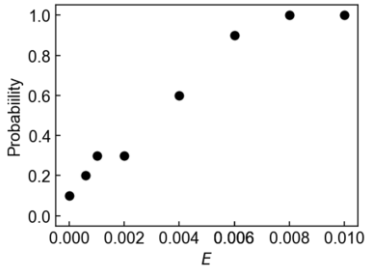


Fig. 1 細孔形成確率の電場強度依存性。

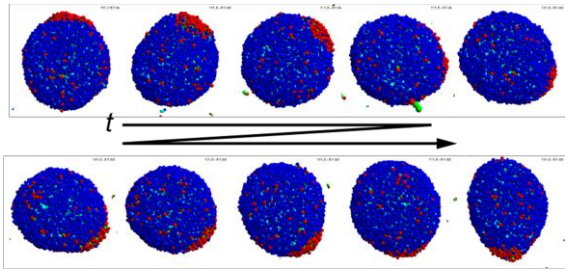


Fig. 2 反転した電場（紙面下向き）に対する荷電脂質ドメイン（赤）の応答。

動し、実験での報告[1]を粗視化シミュレーションで再現することができた(Fig.2)。これらの結果は、外部電場による荷電脂質リポソームの細孔形成の制御やドメインの方向制御の一例となっている。

２．両親媒性ブロック共重合体の自発的高次構造形成

両親媒性ブロック共重合体の集合構造はナノ材料への応用が期待されている。材料として使用するには集合構造を希望の形状にすることが必要である。一つの例として、一軸成長の制御が課題であり、その生成条件は、疎水部を結晶性の高分子にすること、超分子会合ユニットが疎水部と親水部の間にあること、であると実験で示されているがメカニズムは分かっていない。そこで分子論的理解に基づく集合構造の形状制御を目指し、粗視化分子動力学法を用いて、両親媒性ブロック共重合体の集合プロセスを検討してきた。

本年度は昨年度モデル化した両親媒性ブロック共重合体を用いて一軸成長プロセスを検討した。Fig.3a に疎水、超分子会合ユニット、親水の三つのブロックから構成されるモデルを示す。昨年度から親水部と疎水部の粒子数を増やし、疎水部と親水部はそれぞれ 40 モノマーから構成した。超分子会合ユニットは三角形二つをつなげた 5 モノマーから構成した。平面に並べた初期条件から分子動力学計算を行うと、超分子会合ユニットが秩序構造を保ちながら円筒を形成していく過程を明らかにした (Fig. 3b)。超分子会合ユニットの大きさや相互作用の強さを変化させて同様の計算を行ったところ、円筒として安定するには、超分子会合ユニットは強い引力相互作用と、親水部や疎水部よりも大きなモノマーから構成する必要性が明らかになった。これは曲率を持ち、界面を安定させるために必要であると考えられる。円筒状の構造は実験においても観察されており [2]、実験結果を再現できたと考えられる。本年度は円筒状の構造が安定するために必要な超分子会合ユニットの条件を明らかにした。今後は疎水部分の物性を変化させた際の円筒の安定性を詳しく調べていく。

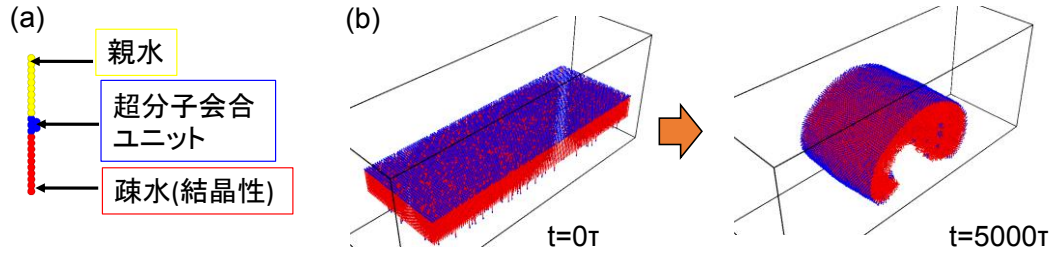


Fig.3 (a) 両親媒性ブロック共重合体のモデル。
(b) 分子動力学計算の結果(親水部は非表示)。

３．脂質三成分系における相分離

脂質膜における相分離は、飽和脂質と不飽和脂質の疎水部の秩序の差から生じる同種脂質間の引力と混合のエントロピーの競合により記述される。そのため、ほとんどの研究では二成分ないしコレステロールを含めた擬二成分系での二相分離が扱われている。

近年、我々は実験により脂質二成分系にもかかわらず三相に相分離する現象を見つけた。荷電不飽和脂質と中性飽和脂質の二成分系からなる脂質膜において、荷電脂質の電離状態に依存して三相構造が形成されることがわかった(Fig.4a)。そのため、電離した荷電脂質、電離していない荷電脂質、中性脂質の三成分系になっているために三相に分かれたと考えた。これら実験で見られた三相を同定するために、荷電不飽和脂質、中性不飽和脂質、中性飽和脂質の三成分からなる脂質膜での粗視化分子動力学シミュレーションを行った。

その結果、相分離ドメインは中性不飽和脂質が円形のドメインを形成し、その周りに荷電不飽和脂質が取り囲む構造となっていることがわかった(Fig.4b)。これは荷電脂質間の反発を押さえるために、荷電脂質と中性脂質の界面が増えるような並びになっていると考えら、理論的な予測とも一致する[3]。

さらに、中性の系においても三成分系における相分離の計算を行っている。その結果、実験では見られていないパッチワーク状の相分離ドメイン(Fig.3c)などが見られた。

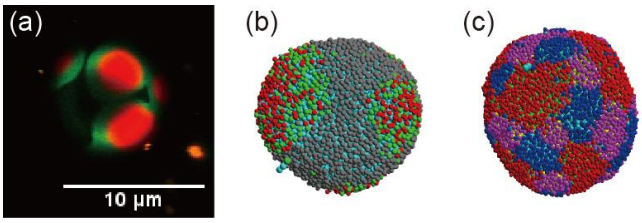


Fig.4 (a) 荷電不飽和脂質、中性飽和脂質二成分系での相分離の顕微鏡画像。赤い領域、緑の領域、黒い領域の三相にわかれている。(b)粗視化分子動力学シミュレーション。赤が中性不飽和脂質、緑が荷電不飽和脂質、灰色が中性飽和脂質を表す。(c)脂質三成分系でのシミュレーション結果。

【参考文献】

[1] F. J. Zendejas *et al.*, *Chem. Comm.,* **47**, 7320-7322 (2011).

[2] S. H. Kim, *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **48**, 4508 –4512 (2009).

[3] G. V. Bossa, *et al., Int. J. Adv. Eng. Sci. Appl. Math.*, **8**, 101-110 (2016).

【関連業績】

発表論文・著書

1．Coarse-grained molecular dynamics simulation for uptake of nanoparticles into a charged lipid vesicle dominated by electrostatic interactions
Naofumi Shimokawa, Hiroaki Ito, Yuji Higuchi, arXiv:1812.10658

学会発表

1．粗視化分子動力学法による両親媒性ブロックポリマーの構造形成
樋口祐次、伊藤弘明、下川直史、野口博司、日本物理学会 2018 年秋季大会、同志社大学、（平成 30 年 9 月 10 日）

２．Molecular Simulations on Morphological Change of Charged Vesicles
Yuji Higuchi, Bilateral project between Slovenia and Japan: Interaction between charged particles and lipid membranes, University of Ljubljana, （平成 30 年 9 月 20 日）

３．荷電脂質ベシクルの相分離と形態変化の粗視化分子動力学シミュレーション
伊藤弘明、樋口祐次、下川直史, 第 8 回ソフトマター研究会、首都大学東京、（平成 30 年 12 月 7 日）

４．Coarse-grained molecular dynamics simulation of phase separation and morphological dynamics of a charged lipid vesicle
Hiroaki Ito, Yuji Higuchi, Naofumi Shimokawa, Soft Matter Physics: from the perspective of the essential heterogeneity, 九州大学, （平成 30 年 12 月 10 日）

５．DC 電場に誘起される荷電脂質ベシクルの相分離と細孔形成
伊藤弘明、樋口祐次、下川直史、日本物理学会第 74 回年次大会、九州大学、（平成 31 年 3 月 16 日）

６．荷電脂質膜の張力誘起相分離と脂質電離状態、
郭ジンウ、下川直史、高木昌宏、日本物理学会第 74 回年次大会、九州大学、（平成 31 年 3 月 17 日）

７．粗視化分子動力学シミュレーションによる荷電脂質膜ベシクルのダイナミクス
下川直史、物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の新展開」、東京大学、（平成 31 年 4 月 2 日）

外部資金

１．科学研究費　基盤研究(C)
「荷電脂質膜における多価イオン間静電相互作用と相分離」
（平成２９年度～平成３２年度）

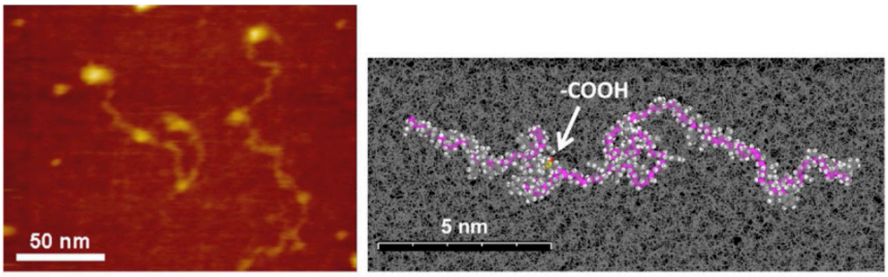
２．日本学術振興会　二国間交流事業共同研究（スロベニア）
「荷電粒子と脂質膜の相互作用」
（平成３０年度～平成３１年度）

Single-Molecule Imaging of a Polymer and Simulations by All-atom MD and DFT

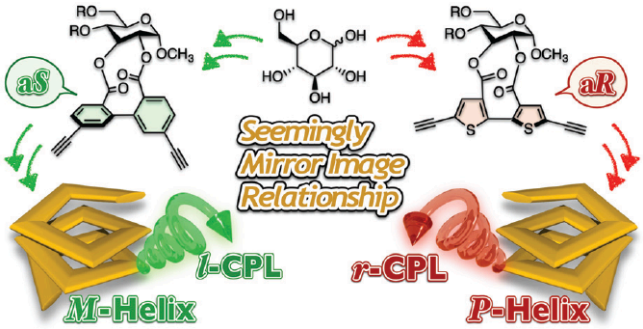
Tomoyuki Ikai and Ken-ichi Shinohara
井改知幸(金沢大)・篠原健一(北陸先端大)

使用計算機：vpcc, uv
使用ソフト：BIOVIA Materials Studio (Forcite, Amorphous Cell), Gaussian16

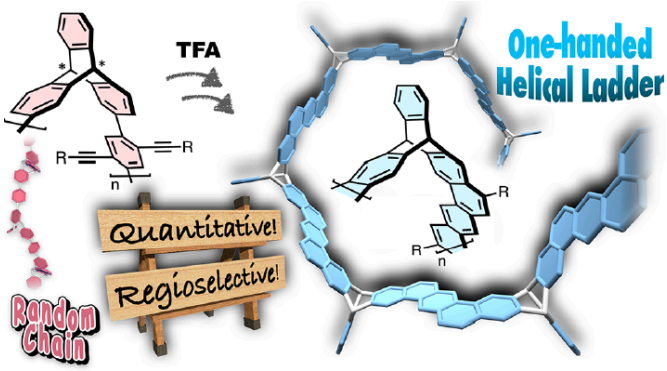
Direct observation of dynamic interaction between a functional group in a single SBR chain and an inorganic matter surface (1):
As a composite of hybrid organic-inorganic materials, blending hydrophilic silica microparticles with oilextended rubber can improve vehicle tire performance but the nanometer scale effects of microparticle inclusion have not been thoroughly studied. Here, we used atomic force microscopy (AFM) video imaging to closely investigate the behavior of functionalized and unmodified styrene-butadiene rubber (SBR), as models for tire rubber, on mica surfaces. The hydrophilic silica microparticle surface could be simulated by a mica substrate because both have silanol groups on their surface. Using AFM video imaging, we tracked the behavior of individual SBR polymer chains on mica surfaces to reveal how polymer modification affects the interaction of SBR with mica surfaces. We measured the diffusion coefficients and spring constants of single SBR polymer chains for the first time, demonstrating that it is possible to parameterize the relationship between the molecular dynamic structure of a polymer and rubber properties of the vulcanized compound. The SBR structure was also discussed by all-atom MD simulations.



Helicity control of π-conjugated foldamers containing D-glucose-based single enantiomeric units as a chiral source (2):
An optically active bithiophene derivative containing a D-glucose residue and two ethynyl groups ((aR)-7) was synthesized and copolymerized with 2,5-diiodothiophene through Sonogashira–Hagihara crosscoupling. The absorption, circular dichroism, photoluminescence and circularly polarized luminescence properties of the resulting polymer (poly-7) were investigated under various solution conditions. The structure was also discussed by all-atom MD simulations. Poly-7 exhibited a clear solvent dependence of the optical and chiroptical properties as a result of the interconversion between random-coil and right-handed helical backbones. We also demonstrated that poly-7 emitted right-handed circularly polarized light upon ultraviolet irradiation in the helically folded state. Based on the contrasting results for a previously reported polymer (poly-A), which contained biphenyl units instead of bithiophene units in the main chain, it can be concluded that seemingly mirror-imaged chiral materials can be prepared using a single enantiomer of glucose without the need for the unnatural L-isomer.



Triptycene-Based Ladder Polymers with One-Handed Helical Geometry (3):
Here we report an efficient synthesis of optically active ladder-type molecules and polymers through intramolecular cyclization of chiral triptycenes containing bis[2-(4-alkoxyphenyl)ethynyl]phenylene units. The electrophile-induced cyclization reactions are directed away from the bridgehead carbon atoms of triptycene by steric factors, thereby producing one-handed twisted ladder units without any detectable byproducts. Moreover, the quantitative and regioselective nature of this intramolecular cyclization allowed us to synthesize optically active ladder polymers with a welldefined one-handed helical geometry in which homoconjugated dibenzo[*a,h*]anthracene units are helically arranged along the main chain. The structure was also discussed by all-atom MD and DFT simulations. This synthesis route enables the construction of a variety of nanoscale helical ladder architectures and provides an entry into new chiroptical materials.



研究業績
査読付き論文
(1) Ken-ichi Shinohara, Yuu Makida, *Sci. Rep.* **8,** 13982 (2018).
(2) Tomoyuki Ikai, Serena Minami, Seiya Awata, Sho Shimizu, Takumu Yoshida, Mitsuhiro Okubo, Ken-ichi Shinohara, *Polym. Chem.* **9,** 5504-5510 (2018).
(3) Tomoyuki Ikai, Takumu Yoshida, Ken-ichi Shinohara, Tsuyoshi Taniguchi, Yuya Wada, Timothy M. Swager, *J. Am. Chem. Soc.* 141, 4696-4703 (2019).

有機化合物のハマカー定数の新規算出法の開発

増田研(前園・本郷研) 高岸秀行

使用計算機: PCCluster

ハマカー定数 (Hamaker constant)は分子間力の指標の一つである。液体の濡れ広がり、付着・吸着・接着、コロイドの安定性などの物理現象と相関があることが知られており、このため様々な分野において現象解明や物質探索に利用されている。一般にハマカー定数は実験的に算出されるが、この操作にはそれなりに時間がかかる。また、量子力学計算でハマカー定数を算出する手法がいくつか開発されてきたが、それらの多くは「簡単だが精度に問題がある」か「精度は良いが高度な技術・労力・計算時間を必要とする」かのいずれかであった。そこで今回「実験操作が必要なく、簡単な手順で計算でき、それでいて計算精度も高い」計算手法を新たに開発した。

基盤としたのは Lifshitz 理論であり、その計算に必要となる値を DFT 計算で求めた。具体的には、まず有機化合物の単分子モデルを作成し、Gaussian 16 で B3LYP/aug-cc-PVDZ を用いて分極率、双極子モーメント、分子体積および分子振動を計算した。次にこれらの計算値から Lorentz-Lorenz の近似式により屈折率を、Onsager の近似式により誘電率を概算した。これらの値を元に Lifshitz 理論に基づいてハマカー定数を算出したところ、非会合性物質（炭化水素、エーテル、ケトン、アルデヒド、カルボン酸、カルボン酸エステル、ニトリル、水素化ケイ素、ハロゲン化物）に関しては実験値と比較的良く一致した(図 1 左)。旧来の簡易的計算法である London formula はサイズの小さな無極性炭化水素にしか適用できなかったが、本法ではより多くの物質にも適用できるようになった。それでいて計算時間はさほど変わらなかった。一方で会合性物質に関しては本法でも実験値を再現出来ない物質がいくらかあった(図 1 右)。比誘電率の算出に用いた Onsager の近似式が原理的に会合性物質に対応できないためであると思われる。

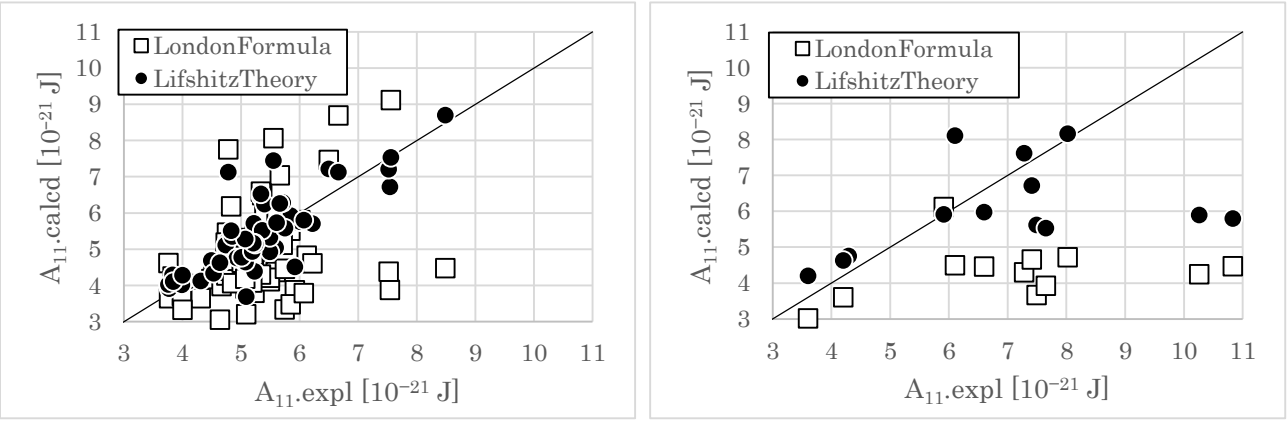


図 1. ハマカー定数 A_{11} の実験値(expl)と計算値(calcd)。左図は非会合性物質、右図は会合性物質。
図中“LondonFormula”は旧来の簡易的計算法を示し、“LifshitzTheory”は本法の計算値を示す。

今回開発した手法のメリットは、簡単な計算で短時間のうちにハマカー定数が得られる点にある。従来の 2 分子モデルを利用する高度な計算法では分子配置を適切にモデル化することが不可欠であり、これにはある程度の慣れが必要である。一方、本法では単分子モデルで済むため特別な技能は不要である。また、オーソドックスな DFT 計算のため計算時間は比較的短い。原子数 10~40 個程度で構成される有機化合物約 800 種類の計算に要した時間は PCC 上で 2 週間程度だった。このように、非会合性物質に関しては簡単な DFT 計算だけで容易にハマカー定数を算出できることを実証した。論文を投稿準備中。

機械学習を利用した $TiCl_4$ 終端 $MgCl_2$ ナノ粒子の構造決定

所属・氏名　高棹玄徳, 谷池俊明

使用計算機: PC Cluster

$MgCl_2$ 担持型 Ziegler-Natta 触媒（ZN 触媒）はポリオレフィン生産の大部分を担う工業触媒であり、その一次粒子は側面が $TiCl_4$ および内部ドナーによって終端された $MgCl_2$ ナノプレートであると考えられている[1,2]。一次粒子の詳細な構造は合成されるポリマーの一次構造分布の観点から重要な情報であるが、実験・計算化学の両面においてその構造決定は未だに達成されていない。特に計算化学では、原子組成・配置の配向空間の膨大さが構造決定の障壁となっている。本研究では、膨大な配向空間において効率的な探索を可能とする遺伝的アルゴリズムと密度汎関数計算（DFT）を併用した非経験的構造決定プログラムを開発し、$MgCl_2/TiCl_4$ ナノ粒子の構造決定を行った。

本研究では遺伝的アルゴリズム上、生成された多数の構造群に対し DFT による構造最適化を行う必要があり、その計算資源として本学の PC Cluster が必要不可欠であった。今年度は主に $xMgCl_2/yTiCl_4$ の各組成に対し構造決定を実施した。

構造決定プログラムにより得られた $15MgCl_2$、$15MgCl_2/4TiCl_4$ の最安定構造を Figure 1 に示す。$15MgCl_2$ の最安定構造は{100}表面によってのみ構成された平行四辺形構造である。一方、$15MgCl_2/4TiCl_4$ の最安定構造は{100}表面と{110}表面の両方が露出する $MgCl_2$ 骨格を持ち、{110}表面上に $TiCl_4$ 分子が優先的に吸着していた。この事実は、$TiCl_4$ の存在が $MgCl_2$ 骨格を再構成し{110}表面を露出させることを示している。また、構造決定の過程で得られた準安定構造のうち、最安定構造から 6 kcal/mol 以内に存在する構造の数が $4TiCl_4$ の存在により約 10 倍に増加しており、$MgCl_2/TiCl_4$ 系の構造は多様な分布を持つ事が示された。これらの事実を計算化学的に実証したのは本研究が初めてである。このような構造分布と非理想的な有限表面という制約が $MgCl_2$ 上の $TiCl_4$ の吸着状態に分布を生じさせていると示唆される。これは、ZN 触媒から合成されるポリマーの一次構造分布の起源に迫るという触媒化学的な意義だけでなく複雑な固体材料のモデリング手法という計算化学的観点からも大きな進歩をもたらした。

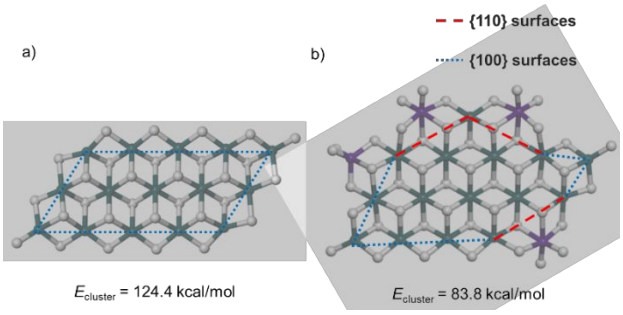


Figure 1. Comparison of morphology and energy of $15MgCl_2$ and $15MgCl_2/4TiCl_4$.

関連発表論文

※本学の計算サーバから得られた成果は、下記の発表論文の他、申請者の修士論文に利用された。

1) "Machine Learning-Aided Structure Determination for TiCl4-Capped MgCl2 Nanoplate of Heterogeneous Ziegler-Natta Catalyst", Gentoku Takasao, Toru Wada, Ashutosh Thakur, Patchanee Chammingkwan, Minoru Terano, Toshiaki Taniike, ACS Catalysis, 2019, 9, 2599-2609. 査読あり

関連学会発表

1) "Development of ab-initio structure determination program for primary particles of Ziegler-Natta catalysts using machine learning", Gentoku Takasao, Toru wada, Patchanee Chammingkwan, Minoru Terano, Toshiaki Taniike, 第 48 回石油・石油化学討論会, 東京, 2018 年 10 月 18 日, 口頭発表

ACTIVITY REPORT OF FY2018

1. PROJECT TITLE:

ADHESION OF THE ELECTRODES ON BLACK PHOSPHORUS DEVICE SURFACES

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Nobuya Watanabe

AFFILIATION: Ryo Maezono Laboratory, JAIST, Nomi, Ishikawa, Japan.

ADDRESS: 11702 Center Drive, Lemont, IL, USA

PHONE: +1-331-219-5656

EMAIL: mwkwtn1703@icloud.com

WEBPAGE: N/A

2. PROJECT DESCRIPTION:

Phosphorus has been utilized from several centuries for industrial usage such as fertilizers. Recently it was reported that a layer of black phosphorus (BP) can be peeled off from bulk. A single layer of BP is known as Phosphorene and is a 2D material. Phosphorene is also found to have good electronic and opto-electronic properties because of its finite and tunnable band gap. However, to utilize phosphorene in electronic devices, it should have strong adhesion, low resistance and good Ohmic contact with metal electrodes. The metal electrodes are generally used to carry the current out of the device. In this study, we have tried to find out the most suitable metal electrode. We evaluated the adhesion strength and electronic conductivity as criteria for a good electrode. We have chosen 20 types of metal such as Au, Pd, Ta, and Ti as possible candidates for the metal electrode. A slab consisting of one layer of metal, one layer of termination (Oxygen or Hydrogen) and three layers of phosphorene is used for the simulation. For each combination of termination and metal, simulation of adhesion strength and electronic property is carried out. The work of separation is employed to estimate the adhesion strength, which is calculated as the interfacial energy divided by per unit area. We performed DFT calculations using QUANTUM ESPRESSO with PBE-GGA exchange-correlation functional and ultra-soft pseudopotential available therein. We investigated the cases of oxygen and hydrogen terminated phosphorene. The termination is considered to strengthen the adhesion and to improve the electronic conductivity. Besides that, we also estimated the ohmic contact and electric conductivity from the plot of density of states at the Fermi level. In-gap peak of the density of states corresponds to the localized surface electronic states because such a peak is not observed in bulk phosphorene. At the interface of the systems, the appearance of the peak means the existence of localized electronic states around the interface. It is considered that such localized electronic states appear with the electrode having low carrier mobility across the interface. Since these electronic states give rise to electric double layers that are the origin of electric rectification, these in-gap peaks are regarded as the sign of a Schottky contact, otherwise the electric contact nature is Ohmic. From the simulations, it was found that Ti with Oxygen termination has the highest work of separation and there is a trend that work of separation decreases from group 4 elements to group 6 elements in case of oxygen termination. Among those elements showing high work of separation, group 5 elements show peak in-gap density of states. Considering the work of separation and electric

大規模分子シミュレーションを活用した糖鎖コンフォメーションの解析と制御

マテリアルサイエンス系・山口拓実
使用計算機: Cray XC40, PC クラスタシステム

概要

糖鎖の生物機能の多くは、糖認識タンパク質（レクチン）との結合を通して発揮される。しかし糖鎖は一般に、溶液中で絶えず揺らいでいる。したがって、糖鎖が関与する分子認識システムにおいては、糖鎖の立体構造ダイナミクスが、結合や解離といった相互作用の制御に重要な役割を果たしていると考えられる。本研究では、大規模分子シミュレーションを基軸とした糖鎖の動的立体構造解析と、それに基づく分子設計を通して、レクチンとの親和性を制御することに取り組んだ。

糖鎖の動態を明らかにするため、Cray XC40 を使用した AMBER プログラムパッケージによる全原子分子動力学計算を実施し、立体構造を網羅的に探査した。さらに、分子シミュレーションと、PC クラスタシステムの Gaussian16 プログラムを利用した量子化学計算を通して、糖鎖の化学構造が立体構造に与える影響を考察し、タンパク質との相互作用を考慮した人工糖鎖を新たに設計した。こうした分子デザインに基づいて化学合成した種々の糖鎖について、物理化学的な実験と解析を行い、実際のコンフォメーションや親和性の変化を調べた。例えば、神経幹細胞に存在するルイス X 型糖鎖では、分岐鎖の化学構造改変に伴い、そのコア部位であるピラノース環の配座変化が誘起され、取り得る立体構造が大きく変化することを明らかにした。またレクチンとの結合試験を行った結果、親和性が有意に変化することも示すことができた。このように、溶液中のコンフォメーション空間探査を活用した分子設計に基づき、糖鎖の動的立体構造と生物機能との連関を明らかにするための基礎を築くことができた。糖鎖の立体構造制御による機能分子設計は、新たなドラッグデザインの指標にもなると考えている。

関連発表論文

1) T. Yamaguchi, K. Kato, “Molecular dynamics of gangliosides,” *Methods In Molecular Biology*, 2018, 1804, 411-417. 査読有
2) 中根健汰，鈴木達哉，谷中冴子，加藤晃一，山口拓実, “合成糖鎖基質を用いたレクチン–糖鎖の動的相互作用機構の解析,” 生体機能関連化学部会若手の会 第 30 回サマースクール, 宮崎, 2018 年 7 月.
3) 龍岡博亮, 山口拓実, “緩和時間計測による糖鎖動的立体構造の解析,” 第 19 回 若手 NMR 研究会, 呉, 2018 年 8 月.
4) 山口拓実，龍岡博亮，Yan Gengwei，鈴木達哉，加藤晃一, “糖鎖コンフォメーション空間の探査と化学的改変,” 第 12 回バイオ関連化学シンポジウム, 吹田, 2018 年 9 月.
5) 中根健汰，鈴木達哉，谷中冴子，加藤晃一，山口拓実, “動的相互作用機構解析に基づいたレクチン高親和性糖鎖の設計,” 日本化学会 第 99 春季年会, 神戸, 2019 年 3 月.
6) 龍岡博亮, 山口拓実, “NMR 計測によるルイス X 糖鎖の立体構造解析,” 日本化学会 第 99 春季年会, 神戸, 2019 年 3 月.
7) 瀧澤功一, 山口拓実, “分子シミュレーションによるコンドロイチン硫酸の立体構造解析,” 日本化学会 第 99 春季年会, 神戸, 2019 年 3 月.

表面増強ラマン散乱に関する研究

所属・氏名　マテリアル系山本裕子

使用計算機: vpcc

概要

Gaussian を用いた量子化学計算法により、小さな有機分子のラマンスペクトルの計算を試みた。使用方法が難しく、きちんとした結果を得るまでには至らなかったが、おおよその計算方法を理解することができた。

関連発表論文

なし

関連取得研究費

なし

4. 謝辞

JAIST の並列計算機利用者メーリングリストである MPC メーリングリストを通じて各計算機利用者へ報告書の作成を依頼し，これに応じて頂いた各著者のご厚意によって，本報告書を取りまとめることができました.

ご多忙のところ，報告書の作成にご協力を頂いた著者各位に心から感謝致します.