

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 2022
Author(s)	本郷, 研太; 宮下, 夏苗; 井口, 寧
Citation	Technical memorandum (Japan Advanced Institute of Science and Technology), TM-2023-001: 1-41
Issue Date	2023-08-25
Type	Others
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/18716
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)

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 2022

本郷 研太, 宮下 夏苗, 井口 寧 編
2023 年 8 月 25 日
TM-2023-001

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、2022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	9
物質科学シミュレーションとマテリアルズ・インフォマティクス	本郷研太
PdCrO ₂ と CuCrO ₂ のヘテロ構造における不純物相分離メカニズム	市場 友宏
量子モンテカルロ法用途の局所性誤差フリー有効核電荷の開発	市場 友宏
LaMO ₃ 型ペロブスカイトにおけるアンチサイト欠陥の量子モンテカルロ法予見	市場 友宏
Ab initio analysis of electrochemical reactivity of cobalt carbonate hydroxide pseudo capacitor	Kenji Oqmhula
First-principles Study of S-substituted WS ₂ -metal Contact	Abdul Ghaffar
希土類金属の三元超伝導水素化物に関する研究	SONG PENG
Interface structure prediction of SnS-based thin film solar cell using CALYPSO	Dahule Rohit Sanjay
First-principles study on the specific heat of BaFe ₂ Se ₃	Putu Bhargo Abhimana Chrysnanda
Theoretical investigation into growth mechanism of self-oriented LaNiO ₃ buffering layers: A first-principles DFT evaluation of their surface energies	Putu Bhargo Abhimana Chrysnanda
GPU を使ったストリーム学習に関する研究	渡邊純司
人間らしい将棋 AI に関する研究	小川竜欣
3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバー利用研究	28
Ziegler-Natta 触媒ナノ構造の非経験的構造決定に関する研究	筑間弘樹, Da Silveira Marcos Joao, 和田透, 谷池俊明

ポリマー1分子の直視
アニオン性ポリマー鎖とカチオン性ポリマー鎖の静電引力による1分子力学計測

篠原健一, 大貫佑河, 堀諒雅, 樋口秀男

分子シミュレーションを活用した糖鎖の水和構造の解析

山口拓実

低い格子熱伝導率を示す AgP_2 の熱電物性と非調和フォノンのメカニズムの研究

宮田全展

炭化水素系分子の Mulliken 電荷の計算

東嶺孝一

「相変化材料を用いた光スイッチの相変化状態制御に関する研究」

佐野陽之, 水谷五郎, 安東秀

Band structure and Berry curvature calculation in hBN/Bilayer graphene heterostructure

Kareekunnan Afsal

Lyotropic Liquid Crystalline Property and Organized Structure in High Proton-Conductive Sulfonated Semi-Alicyclic Oligoimide Thin Films

Yao Yuze

Design of biopolybenzazole exhibiting low dielectric constant and ultrahigh thermoresistance

Zhong Xianzhu

Predicting new 2D materials useful for technology

Chi-Cheng Lee

Capturing Charge and Size Effects of Ions at the Graphene Electrolyte Interface Using Polarizable Force Field Simulations

Sairam Swaroop Mallajosyula

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)は、最先端の教育研究活動を支える研究基盤として全学共同利用な計算サーバ群を提供している。各ユーザの研究活動に応じて、その目的達成に資するためには、柔軟な運用形態が求められる。情報社会基盤研究センター(以下情報センター)はソフト・ハード両面の保守業務を担っているが、ユーザー目線での運用を実現するために、情報センターとは独立な組織として「MPC グループ」と「MPC 管理グループ」が存在し、三者の親密な連携の上に運用されている。

MPC グループは共有計算サーバのユーザーから構成され、MPC 管理グループはその有志から構成される。MPC グループの登録ユーザーは、mpc メーリングリストを通じて、「計算機リソースやキュークラスに関する要望」や「各種共用ソフトウェアの利用に関する質問」など計算機利用に関する質問・要望を広く発言できる。

MPC 管理グループは、ユーザの質問・要請に応え、キュークラス設定やリソース配分の具体案を提案し、ユーザー間の調整を行う。その提案に従い、情報センターが随時、設定を更新していく。情報センターと MPC グループ・MPC 管理グループの詳細は文献[9,10]を参照されたい。

1.2 システム構成

JAIST 共有計算サーバ環境は、HPC(High Performance Computing)-AI(Artificial Intelligence)研究用計算機システム“KAGAYAKI”(CPU/GPU)と汎用 PC クラスタ計算機システムから構成される。前者は、科学技術計算などの HPC 利用を想定した CPU 計算機ノードと AI・機械学習研究利用を想定した GPU 計算機ノードから構成されており、後者は、汎用的な CPU 計算機ノードと一部大容量メモリを搭載した CPU 計算機ノードから構成され、初学者でも容易に大規模並列計算を実行できる並列計算機環境を提供し、KAGAYAKI システムへの導入機と位置付けられる。

今年度は、ハードウェアに関して過年度の既設システムからの変更点はなく、表 1 に示す構成となっている。図 1 に各システムの利用状況を示す。KAGAYAKI システムでは、CPU・GPU 計算ノードともに利用率が高く、また汎用 PC クラスタ計算機システムでは、大容量メモリノード(lmpcc-s1/l1)が断続的ではあるものの定期的に利用されており、KAGAYAKI システムでは実施の難しい大規模計算に利用されていると考えられる。特に GPU 計算ノードは、昨年度の更新で、前システムから NVIDIA A100 系ノード 10 台と A40 系ノード 20 台へと大幅に増加したが、全ノードにおいて使用率はほぼ 100%であり、本学の AI/機械学習研究の需要[20,21]に応えることができたと考えられる。

表 1. JAIST で利用可能な計算サーバ群(2022)

KAGAYAKI システム CPU 計算ノード構成	
CPU ノード計算機	Dell PowerEdge R6525
CPU	AMD EPYC 7H12 2.6GHz 64Cores x 2 Sockets
メモリ	512GB (32GB DDR4/3200 SDRAM×16)
ノード総数/全 CPU 数/全コア数/主記憶容量	280 ノード/560 CPUs/35,840 Cores/143.3TB
総理論演算性能	1.48PFLOPS
開発環境(Fortran/C/C++)	GNU/Intel OpenAPI/AOCC
運用期間	2021年 3 月 1 日～2026 年 2 月 28 日(予定)
KAGAYAKI システム GPU 計算ノード構成	
GPU ノード計算機(GPU-1 & GPU-2)	Dell PowerEdge R750
CPU	Intel Xeon Gold 5329 2.2GHz (26-core×2)
メモリ	512GB (32GB DDR4/3200 SDRAM×16)
GPU-1/GPU-1 ノード総数	NVIDIA A100 x 2/10 ノード
GPU-2/GPU-2 ノード総数	NVIDIA A40 x 2/20 ノード
開発環境(Fortran/C/C++/Python)	GNU Compiler, Intel OneAPI, Anaconda Python
運用期間	2022 年 3 月 1 日～2026 年 2 月 28 日(予定)
汎用 PC クラスタ 計算機システム構成	
汎用 PC クラスタ	HPE ProLiant DL560
CPU	Intel Xeon G-6242 2.8GHz (16-core)×4
メモリ	1.5TB
ノード総数/全 CPU 数/全コア数/主記憶容量	30 ノード/120 CPUs/1920 Cores/45TB
大容量メモリノード S	HPE Superdome Flex
CPU	Intel Xeon G-6240M 2.6GHz (18-core)×8
ノード総数/全 CPU 数/全コア数/主記憶容量	1 ノード/8 CPUs/144 Cores/12TB
大容量メモリノード L	HPE ProLiant DL560
CPU	Intel Xeon G-6140 2.6GHz (18-core)×4
ノード総数/全 CPU 数/全コア数/主記憶容量	1 ノード/4 CPUs/72 Cores/6TB
開発環境(Fortran/C/C++)	GNU/PGI Compiler/Intel Parallel Studio XE
運用期間	2019 年 3 月 1 日～2024 年 2 月 28 日(予定)

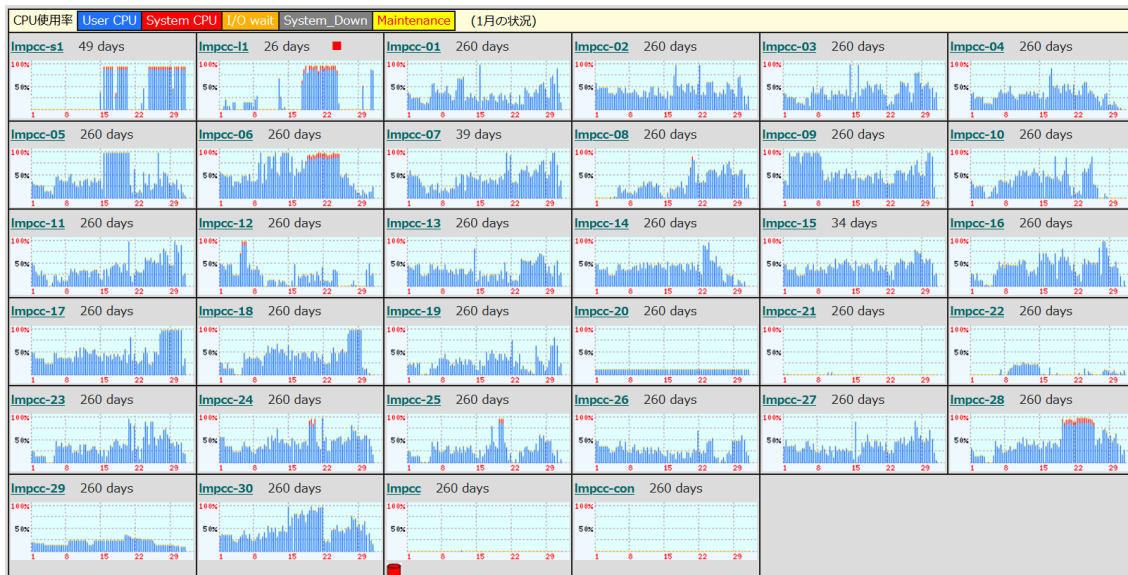
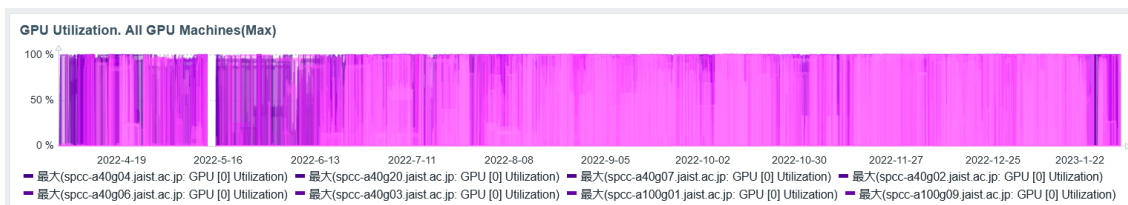


図 1. KAGAYAKI システムの年間利用状況：CPU ノード(上段)と GPU ノード(中段)，及び，汎用 PC クラスターシステムの 2023 年 1 月の利用状況. KAGAYAKI システムでは，1 日毎の CPU/GPU 使用率の最大値を表示している. 汎用 PC クラスターシステムでは，1 時間毎の CPU 使用率の最大値を表示している.

1.3 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 2 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 の商用ソフトウェアを利用することができる。これらのソフトウェアは CPU 計算機上で並列計算として実行することができる。データ科学・機械学習などで利用可能なソフトウェアとしては、MATLAB(商用)が利用できる。また、Tensorflow, Pytorch などの公開されている各種ツール、フレームワークをコンテナとして計算機上に展開することができる。なお、これらのコンテナ環境は、CPU・GPU 両計算機上で実行することができる。

表 2. 各種ソフトウェアとプラットフォームの対応表(2022)

ソフトウェア	概略	KAGAYAKI		汎用 PC クラスター
		CPU	GPU	
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	○	○	○

1.4 2022 年度の活動

2022 年度の JAIST 共有計算サーバ環境に関連する主な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。今年度は、感染対策に関する本学対応方針に従い、昨年度に引き続き、ハイブリッド開催とした。今年度で開催した講習会の一覧を表 3 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。ハンズオントレーニングは、GUI 環境しか利用経験のないユーザーに対して、CLI 環境利用への心理的障壁を多少なりとも緩和し、本学での研究活動に向けて各種計算機の円滑利用を目的としている。そこで、Linux コマンド操作から始めて、ファイル編集、プログラムコンパイル、ジョブ投入といった計算機上での一連の作業を体験し、また本学で利用可能な科学技術計算ソフトウェアについても簡単な実習を含めた講習内容となっている。

システム毎の講習会では、ログインからジョブ投入など初心者向けの内容から、MPI の理論と実行など中級者向けの内容まで、利用者のレベルに応じたテーマを用意している。2022 年度は、データ科学・機械学習の研究開発プラットフォームとして、Python 環境の構築と利用を念頭に、

前半は初級者向けの基本事項を提供し、その上で、後半は Singularity コンテナを用いた実践的な利用方法を提供した。特に GPU は一般的にドライバやライブラリ、ソフトウェアのバージョンアップに応じて実行環境を頻繁に構築し直す必要に迫られる状況が発生しやすく、コンテナの利用がこのような状況に対する有効な解決策として期待される。

最後に、今年度は、本学で包括契約により全学サービスしている MATLAB の利用者拡大を目的に、MATHWORKS 社と本学学生アンバサダーからの尽力で、MATLAB 入門セミナーを実施することができた。本セミナーは、MATLAB の基礎的な内容と活用事例を座学で学び、データ解析や可視化などをハンズオン形式で操作しながら体験できる内容となっていた。今後も、本学でサービス提供しているソフトウェア全般に対して、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 3. 2022 年度に開催した講習会

開催月	講習会
2022 年 6 月 16 日	大規模計算機利用オリエンテーション
2022 年 6 月 17 日	計算機講習会 [Large Memory PCC] ～ コンテナ活用 ～
2022 年 6 月 20 日	計算機講習会 [並列化とアプリケーション] ～ Conda, Matlab, Gaussian ～
2022 年 6 月 21 日	計算機講習会 [GPU] ～ JupyterNotebook ～
2022 年 7 月 15 日	MATLAB 入門セミナー
2022 年 10 月 28 日	大規模計算機利用オリエンテーション
2022 年 11 月 2 日	MATLAB Introduction Seminar
2022 年 11 月 7 日	計算機講習会 [KAGAYAKI/並列化とアプリケーション] ～ Matlab, Mathematica, Python ～
2022 年 11 月 8 日	計算機講習会 [KAGAYAKI/GPU] ～ GPU + JupyterNotebook ～
2022 年 11 月 9 日	計算機講習会 [LMPCC] ～ 大容量メモリ機初級編+Python(2) ～

1.5 まとめと今後の導入計画

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 2022」は 2022 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 12 件、材料科学分野から 11 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。特に、2020年度導入のKAGAYAKIシステムのCPUノードに、昨年度導入のGPUノードが加わることで、従来のHPC研究分野のみならず、AI・機械学習系研究分野にも包括する計算機環境を整備することができ、今年度の利用実績を鑑みても、AI研究環境として非常に高い利用率を確認することができた。今後も、KAGAYAKIシステムが、本学におけるHPC・AI・機械学習研究発展の大きな原動力となることを期待するとともに、最新の研究動向を常に把握しておくことで、次期システム更新の選定指針を学内で広く議論していきたい。

最後に、今後の導入・更新計画について言及しておく。汎用PCクラスター計算機システムは、2024年2月にリース終了となる予定である。当該システムの更新に関して、当該システムを構成するサブシステムである大容量メモリノードS(HPC Superdome Flex/12TB)は、大規模計算の需要から一部の利用者にとって不可欠の計算機システムとして重宝されてきたが、昨今の厳しい予算状況を鑑み、更新しないことが学長判断によって決定された。今後は残された計算機資源を有効活用すべく再編成し、「研究クラウド基盤システム」として更新する予定である。当該システムにより、利用者自身で仮想サーバを自由に構築し、教育研究に利用可能とすることで、本学の教育研究における多様な要求に柔軟に対応可能なシステムを提供できるものと期待している。

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] 本郷 研太, 辻 誠樹, 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 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).
- [19] 本郷 研太, 辻 誠樹, 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 2018”, 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-2019-001, (2019).
- [20] 本郷 研太, 辻 誠樹, 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 2019”, 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-2020-001, (2020).
- [21] 本郷 研太, 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 2020”, 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-2021-001, (2021).

2. 情報科学分野の計算サーバ利用研究

物質科学シミュレーションとマテリアルズ・インフォマティクス

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: Impcc、kagayaki

今年度は、本学計算機群を利用した研究成果として、原著論文 16 件、解説記事 3 件、学会発表等 3 件 (内招待講演 2 件) を報告した。第一原理計算を活用したデータ駆動型構造探索手法による新規高温超伝導体の発見に成功し、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 3 件の原著論文、本学マテリアルサイエンス系との学内共同研究成果 2 報を報告している。JST 二国間交流事業に採択され、韓国科学技術研究院との国際合同セミナーを開催し、ハイエントロピー合金に関する原著論文を 1 報報告している。これらの計算では、主として、KAGAYAKI 上にインストールされている VASP/Quantum Espresso を利用した。また、今年度は、第一原理計算だけではなく、マテリアルズ・インフォマティクス研究において、本学並列計算機群を利用した研究成果が得られている。

研究業績(原著論文・査読あり)

- 1) K. Oqmhula, T. Toma, R. Maezono, K. Hongo, "First-Principles-Based Insight into Electrochemical Reactivity in a Cobalt-Carbonate-Hydroxide Pseudocapacitor", **ACS Omega** 8, 6743-6752 (2023).
- 2) N. Kumar, K. Oqmhula, K. Hongo, K. Takagi, S. Yusa, R. Rajan, K. Matsumura, "Mechanistic insights and importance of hydrophobicity in cationic polymers for cancer therapy", **Journal of Materials Chemistry B** 11, 1456 (2023).
- 3) H. Mizuseki, R. Sahara, K. Hongo, "Order-disorder competition in equiatomic 3d-transition-metal quaternary alloys: phase stability and electronic structure", **Science and Technology of Advanced Materials: Methods** 3, 2153632 (2023).
- 4) K. Utimula, M. Yano, H. Kimoto, K. Hongo, K. Nakano, R. Maezono, "Feature Space of XRD Patterns Constructed by an Autoencoder", **Advanced Theory and Simulations** 6, 2200613 (2023).
- 5) P. Song, Z. Hou, K. Nakano, K. Hongo, R. Maezono, "Potential high-Tc superconductivity in YCeH_x and LaCeH_x under pressure", **Materials Today Physics** 28, 100873 (2022).
- 6) K. Oka, T. Ichihara, D. Kato, Y. Noda, Y. Tominaga, K. Yamada, M. Iwasaki, N. Noma, K. Hongo, R. Maezono, F.A. Reboredo, "Anionic ordering in Pb₂Ti₄O₉F₂ revisited by nuclear magnetic resonance and density functional theory", **Dalton Transactions** 51, 15361 (2022).
- 7) T. Muroto, K. Hongo, K. Nakano, R. Maezono, "Ab-initio-based interface modeling and statistical analysis for estimate of the water contact angle on a metallic Cu(111) surface", **Surfaces and Interfaces** 34, 102342 (2022).
- 8) A. Raghav, K. Hongo, R. Maezono, E. Panda, "Electronic structure and effective mass analysis of doped TiO₂ (anatase) systems using DFT+U", **Computational Materials Science** 214, 111714 (2022).
- 9) Y. Qian, B. Song, J. Jin, G.I. Prayogo, K. Utimula, K. Nakano, R. Maezono, K. Hongo, G. Zhao, "Ab initio molecular dynamics simulation of structural and elastic properties of SiO₂-P₂O₅-Al₂O₃-Na₂O glass", **Journal of American Ceramics Society** 105, 6604-6615 (2022).

- 10) G.I. Prayogo, A. Tirelli, K. Utimula, K. Hongo, R. Maezono, K. Nakano, "SHRY: Application of Canonical Augmentation to the Atomic Substitution Problem", **Journal of Chemical Information and Modeling** 62, 2909–2915 (2022).
- 11) Y. Masubuchi, S. Miyazaki, P. Song, T. Yamamoto, K. Nakano, K. Hongo, R. Maezono, "High-pressure behavior of tetragonal barium carbodiimide, BaNCN", **Journal of Alloys and Compounds** 918, 165632 (2022).
- 12) Y. Yoshimoto, T. Toma, K. Hongo, K. Nakano, R. Maezono, "Computational Design to Suppress Thermal Runaway of Li-Ion Batteries via Atomic Substitutions to Cathode Materials", **ACS Applied Materials and Interfaces** 14, 23355-23363 (2022).
- 13) A. Hermawan, A.T. Hanindriyo, K. Hongo, R. Maezono, S. Yin, "Impact of Surface Faceting on Gas Sensing Selectivity of NiO: Revealing the Adsorption Sites of Organic Vapors on the {111} Facet ", **Journal of Physical Chemistry C** 126, 8037-8046 (2022).
- 14) Y. Nikaido, T. Ichibha, K. Hongo, F.A. Reboredo, K.C. Hari Kumar, P. Mahadevan, R. Maezono, K. Nakano, "Diffusion Monte Carlo Study on Relative Stabilities of Boron Nitride Polymorphs", **Journal of Physical Chemistry C** 126, 6000-6007 (2022).
- 15) X. Zhong, A. Nag, J. Zhou, K. Takada, F.A.A. Yusof, T. Mitsumata, K. Oqmhula, K. Hongo, R. Maezono, T. Kaneko, "Stepwise copolymerization of polybenzimidazole for a low dielectric constant and ultrahigh heat resistance ", **RSC Advances** 12, 11885 (2022).
- 16) T. Ichibha, V.A. Neufeld, K. Hongo, R. Maezono, A.J.W. Thom, "Making the most of data: Quantum Monte Carlo postanalysis revisited", **Physical Review E** 105, 045313 (2022).

研究業績(解説記事等・査読なし)

- 1) 本郷研太、前園涼、中野晃佑、G.I. Prayogo、市場友宏、内村慶舟、「材料科学における量子アニーリング応用」、「量子技術の実用化と研究開発業務への導入方法」 § 5.1/情報技術協会(2023/01/31)
- 2) 本郷研太、「水素を吸蔵するナノチューブ材料の特徴とその可能性」、**MATERIALSTAGE** 2023年3月号、技術情報協会.
- 3) 本郷研太、「物質探索におけるベイズ統計の活用」、**高分子** 71(12) 625-626 (2022)、高分子学会.

学会発表実績

- 1) 宋鵬、川口真理、鱒渕友治、奥村健司、中野晃佑、前園涼、○本郷研太、「金属カルボジイミド高圧相の進化論的構造探索」、第70回応用物理学会春季学術講演会、上智大学、2023年3月17日
- 2) Kenta Hongo, "Recent Advances in Materials Simulations and Informatics", JAIST-KIST Joint Research Seminar(Invited Talk), JAIST, 2022/12/15.
- 3) 本郷研太、「データ駆動型アプローチに基づく物質探索とキャラクター化」、第71回高分子討論会(招待講演)、北海道大学、2022年9月6日

研究費獲得実績

- 1) 令和4年度科研費・基盤研究(B)(一般)、「準安定な酸水酸化物結晶の創製と水酸基化学への展開(研究分担/研究代表者：稲田幹/22H02170)」、R4年度500千円(R4年~R6年)。

- 2) 令和 3 年度科研費・基盤研究 (B) (一般)、「水分散系における高分子の移流集積界面分割モデルの設計 (研究分担/研究代表者：桶葭 興資/21H01998)」、R3 年度 500 千円 (R3 年～R6 年)。
- 3) 令和 3 年度科研費・基盤研究 (C) (一般)、「第一原理量子モンテカルロ法を用いた層状物質に対する第一原理フォノン計算の実現 (研究分担/研究代表者：前園 涼/ 21K03400)」、R3 年度 300 千円 (R3 年～R5 年)。
- 4) 平成 31 年度科研費・基盤研究 (C)、「分子理論・計算科学・データ科学の融合によるハマカー定数の自律型予測モデルの開発 (研究代表/19K05029)」、R3 年度 700 千円 (H31 年 4 月～R5 年 3 月)。

PdCrO₂ と CuCrO₂ のヘテロ構造における不純物相分離メカニズム

市場 友宏 特任助教

本郷グループ

Kagayaki を使用

本研究は、原著論文として *Advanced Physics Research* 誌に投稿し、同誌にアクセプトされた。以下、その要諦の引用を示す:

PdCrO₂ films are synthesized on CuCrO₂ buffer layers on Al₂O₃ substrates. This synthesis is accompanied by impurity phase segregation, which hampers the synthesis of high quality PdCrO₂ films. The potential causes of impurity phase segregation were studied by using a combination of experiments and ab initio calculations. X-ray diffraction and scanning transmission electron microscopy experiments revealed impurity phases of Cu_xPd_{1-x} alloy and chromium oxides, Cr₂O₃ and Cr₃O₄, in PdCrO₂. Calculations determined that oxygen deficiency can cause the impurity phase segregation. Therefore, preventing oxygen release from delafossites could suppress the impurity phase segregation. The amounts of Cr₂O₃ and Cr₃O₄ depend differently on temperature and oxygen partial pressure. A reasonable theory-based explanation for this experimental observation is provided.

本研究の計算には全て密度汎関数法を使用しており、それらの計算に Kagayaki 計算クラスタを使用した。

Published papers:

- 1) T. Ichibha et al., *Advanced Physics Research* (just accepted).

量子モンテカルロ法用途の局所性誤差フリー有効核電荷の開発

市場 友宏 特任助教

本郷グループ

Kagayaki を使用

本研究は、原著論文として取りまとめており、最終著者のコメントに従って現在リバイスを進めている。以下、執筆中原稿の要諦の引用を示す:

Locality errors have hampered the applications of the diffusion Monte Carlo (DMC) method in materials containing transition metals in particular oxides. We have developed locality error free effective core potentials, pseudoHamiltonians, for transition metals ranging from Cr to Zn. We have modified a procedure published by some of us in [M.C. Bennett et al, JCTC 18 (2022)]. We carefully optimized our pseudoHamiltonians and achieved the similar transferabilities to the best semilocal pseudopotentials used with DMC but without incurring in locality errors. Our pseudoHamiltonian set (named BPH23) is a potential game changer to study the basic science of transition metal complex materials.

有効核電荷のパラメータ最適化、および、有効核電荷の検証を目的とした量子化学計算に Kagayaki 計算クラスタを使用した。

LaMO₃型ペロブスカイトにおけるアンチサイト欠陥の量子モンテカルロ法予見

市場 友宏 特任助教

本郷グループ

Kagayaki を使用

本研究は、原著論文として *Scientific Reports* 誌に投稿し、現在リバイス稿のピアレビューを受けている。以下、論文の要諦の引用を示す:

The properties of LaMO₃ (M: 3d transition metal) perovskite crystals are significantly dependent on point defects, whether introduced accidentally or intentionally. The most studied defects in La-based perovskites are the oxygen vacancies and doping impurities on the La and M sites. Here, we identify that intrinsic antisite defects, the replacement of La by the transition metal, M, can be formed under M-rich and O-poor growth conditions, based on results of an accurate many-body ab initio approach. Our fixed-node diffusion Monte Carlo (FNDMC) calculations of LaMO₃ (M = Mn, Fe, and Co) find that such antisite defects can have low formation energies and are magnetized. Complementary density functional theory (DFT)-based calculations show that Mn antisite defects in LaMnO₃ may cause the p-type electronic conductivity. These features could affect spintronics, redox catalysis, and other broad applications. Our bulk validation studies establish that FNDMC reproduces the antiferromagnetic state of LaMnO₃, whereas DFT with PBE (Perdew–Burke–Ernzerhof), SCAN (strongly constrained and appropriately normed), and the LDA+U (local density approximation with Coulomb U) functionals all favor ferromagnetic states, at variance with experiment.

上述のアブストラクトで言及している FNDMC 計算および DFT 計算に Kagayaki 計算クラスタを使用した。

Published papers:

- 1) T. Ichibha et al., *Scientific Reports* (revision submitted).

ACTIVITY REPORT OF FY2022

1. PROJECT TITLE:

***Ab initio* analysis of electrochemical reactivity of cobalt carbonate hydroxide pseudo capacitor**

PRINCIPAL INVESTIGATOR: Kenji Oqmhula

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

ADDRESS: 1-1 Asahidai, Nomi, Ishikawa, Japan

PHONE: 0761-51-1301

EMAIL: mwkokk1907@icloud.com

WEBPAGE: None

MACHINE USED: (kagayaki)

2. PROJECT DESCRIPTION:

脱炭素化社会を実現するため、再生可能エネルギーの導入が求められているが、電力供給の不安定性が課題となっている。そのため、供給電力を制御する電力平準化用の蓄電池が求められている。当該蓄電池には、高い静電容量(高エネルギー密度)と、高速充放電(高パワー密度)の両立が可能である擬キャパシタ材料が注目されている。Cobalt Carbonate Hydroxide (CCH)は、金属酸化物擬キャパシタで特に高い静電容量と、高速充放電特性、及び高いサイクル安定性を有し、小型化蓄電池としての応用化が期待されている。

CCH 材料は結晶構造制御によるモルフォロジー制御が、電気化学特性に大きく影響することが報告されている。そのため、CCH 電極の電気化学反応の解析は、結晶構造設計に重要な知見を与えると考えられる。しかしながら、CCH 相から生成される $\text{Co}(\text{OH})_2$ 相の脱プロトン反応が、電気化学反応として提案されているが、CCH 相自身に対する反応は未解明である。CCH 結晶が近年まで、正しく同定されていないことに加え、脱プロトンを担う水素原子位置が未同定であったことに起因する。そこで、本研究では、第一原理計算による CCH 結晶中の未同定の Co 空孔サイト及び、水素原子位置の予測を行った。近年同定された CCH 結晶 ($\text{Co}_6(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_8 \cdot \text{H}_2\text{O}$)は、6 個の充填率 0.5 の Co 空孔サイト(V_{Co})と 1 個の構造水となる酸素原子サイト(W_{O})が含まれている。そこで、 V_{Co} と W_{O} のパターン構造の生成及び、水素付加を行い、第一原理構造最適化から、安定パターン構造の絞り込みを行った。さらに、得られた安定パターン構造を還元体構造として、CCH 結晶内部の脱プロトン反応に対する起電力評価を行った。算定起電力と実験で報告されている電位窓を比較し、CCH 相における当該反応の妥当性を評価した。

第一原理起電力評価の結果、CCH バルク内部の脱プロトン反応起電力は 3 V 以上となり、実験で報告されている電位窓 0.6 V を大きく上回る値を示した。そのため、CCH 相のバルク内部では、脱プロトン反応が起こらないと考えられる。また、CCH 相の結晶内部反応の起こりにくさは電気化学特性と大きく関係していると考えられる。先行研究では、CCH 相に対して、CCH 相から生成する $\text{Co}(\text{OH})_2$ 相の割合が、高過ぎると、高静電容量を示すが、サイクル安定性が劣化することが報告されている。今回の結果と先行研究から、CCH 相は結晶内部の脱プロトン反応が起こらないため、充放電反応に対する構造安定性を担う役割を果たしている

考えられる。一方で、 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 相は脱プロトン反応相であるため、相の割合が増えると、静電容量が増加すると考えられる。静電容量とサイクル安定性の双方で優れた性能を示す umbrella-like モルフォロジーの結晶構造を持つ CCH 電極は、CCH 相と $\text{Co}(\text{OH})_2$ 相の適度なバランスを実現していると考えられる。これらから、CCH の結晶構造制御の重要性を、結晶内部における CCH 相の低い反応性と $\text{Co}(\text{OH})_2$ 相の反応性から説明することができた。

3. NAME OF CO-AUTHORS IN JAIST

3.1 LIST OF CO-AUTHORS

- Prof. Maezono Ryo /School of information science.
- Associate Prof. Hongo Kenta/ School of information science.
- Assistant Prof. Kousuke Nakano/ School of information science.

A/How many co-authored publication with JAIST faculties so far [6].

B/How many co-authored publication with JAIST faculties planed in future [4].

4. PUBLICATION LIST DURING FY2022 USING JAIST FACILITIES

- Mechanistic insights and importance of hydrophobicity in cationic polymers for cancer therapy, *J Mater Chem B* 11, 1456-1458 (2023)
- First-Principles-Based Insight into Electrochemical Reactivity in a Cobalt-Carbonate-Hydroxide based capacitor, *ACS Omega* 8(7), 6743-6752 (2023)
- Stepwise copolymerization of polybenzimidazole for a low dielectric constant and ultrahigh heat resistance, *RSC Advances* 12(19), 11885-11895 (2022)

5. CO-AUTHORING PROJECTS FOR FY2023 USING JAIST FACILITIES

- *Ab initio* exploration BCS-type super conductors for ThCr_2Si_2 -type compounds
- Biophysical properties of fibril structure of the toxic conformer of amyloid- β 42: characterization by atomic force microscopy and molecular docking
- Gene-Split Genetic Algorithm for Bus Routing Problem Optimization

5.1 LIST OF PLANNED PUBLICATIONS

[1]" Material Design and exploration of novel BCS-type superconductors in ThCr_2Si_2 -type crystals via *ab-initio* simulation ",

[Ryo Maezono, Kenta Hongo, Kousuke Nakano], [*Inorg. Chem.* (temporary)]

[2]" Molecular dynamics study of the aggregation mechanism of toxic-type amyloid- β 42 oligomer via β -barrel structure ",

[Ryo Maezono, Kenta Hongo], [*ACS Chem. Neurosci.* (temporary)].

[3]" Gene-Split Genetic Algorithm for Bus Routing Problem Optimization",

[Ryo Maezono, Kenta Hongo], [undecided].

[4]" Biophysical properties of fibril structure of the toxic conformer of amyloid- β 42: characterization by atomic force microscopy and molecular docking ",

[Ryo Maezono, Kenta Hongo], [*ACS Appl. Mater. Interfaces* (temporary)].

First-principles Study of S-substituted WS₂-metal Contact

Abdul Ghaffar
Hongo Group
Information Science
Machine: Kagayaki

Abstract

Using first-principles calculations, we have modeled S-substituted WS₂-metal contact interfaces [Fig. 1] and investigated their contact properties with different metal electrodes. Here, widely used metals such as Ag, Au, Cu, Pd, Pt, Sc, and Ti are adopted as the electrodes, whereas non-metallic dopants, C, Cl, N, F, O, and P are doped into the WS₂ surface. We have analyzed the adhesion strength, Schottky-barrier heights (SBH), tunnel barriers, charge transfer across interface, and metal-induced gap states (MIGS) to assess their relative trends. 2D-semiconductor/3D-metal interfaces have been found to suffer from severe Fermi-level pinning due to MIGS formation at the interface which makes van der Waals (vdW) contacts very difficult to realize. To mitigate this issue, we have employed MIGS analysis for the first time at the doped-WS₂/metal contacts, thereby demonstrating the dopant's relative ability to unpin the Fermi-level by increasing vdW interaction which results in the MIGS suppression. As is well known, C-, N-, and P-doped WS₂ surfaces possess *p*-type characteristics. Our results reveal that the C-, N-, and P-doped WS₂ still exhibit *n*-type SBH even with high work-function metals (Pd, Pt) upon metal contact, however, a clear shift of the Fermi level towards the valence band edge gives rise to a lower *p*-type SBH ascribing to significantly reduced MIGS, compared to pristine WS₂-metal contact.

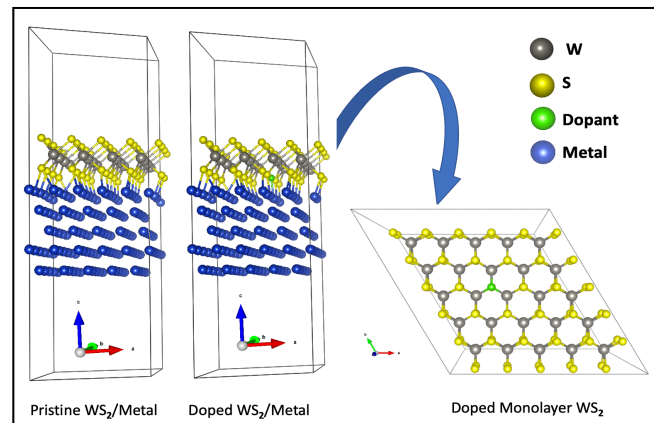


Figure 1: Modeled doped and undoped WS₂/metal interface

Planned publication:

- 1) First-principles Study of S-substituted WS₂-metal Contact

概要

ランタン、イットリウム、セリウムの水素化物は、La-H、Y-H、Ce-H系として知られる超伝導二元水素化物の中で最もよく知られており、理論的、実験的研究の両方で大きな注目を集めています。最近の研究では、ランタンとイットリウムからなる三元水素化物が 253 K 前後で高い超伝導性を発現することが示されています。本研究では、進化アルゴリズムに基づく結晶構造予測 (CSP) 法と第一原理計算を用いて、高圧下で構成された(Y、Ce)および(La、Ce)の三元水素化物の安定性と超伝導性を調べました。私たちの計算では、Y-Ce-H および La-Ce-H 系に複数の安定相が存在し、その中には、 H_{18} 、 H_{29} 、 H_{32} クラスレート構造を持つ $P4/mmm$ -YCeH₈、 $P-6m2$ -YCeH₁₈、 $R-3m$ -YCeH₂₀、 $P4/mmm$ -LaCeH₈、 $R-3m$ -LaCeH₂₀ が、熱力学および格子力学的安定性を維持できることが示されました。さらに、これらの相は高温下でも分解に強いこともわかりました。電子-フォノン結合計算によると、これら 5 つの相のうち、高温超伝導性を示すのは 3 つだけです。Allen-Dynes 修正 McMillan 式を用いて、 $R-3m$ -YCeH₂₀、 $R-3m$ -LaCeH₂₀、 $P-6m2$ -YCeH₁₈ の超伝導転移温度 (T_c) はそれぞれ、300 GPa で 122 K、250 GPa で 116 K、150 GPa で 173 K と予測されています。さらに、 $P-6m2$ -YCeH₁₈ を安定化するための圧力は 150 GPa に低減され、高圧合成に適した条件が示唆されています。

図を含めることも可能

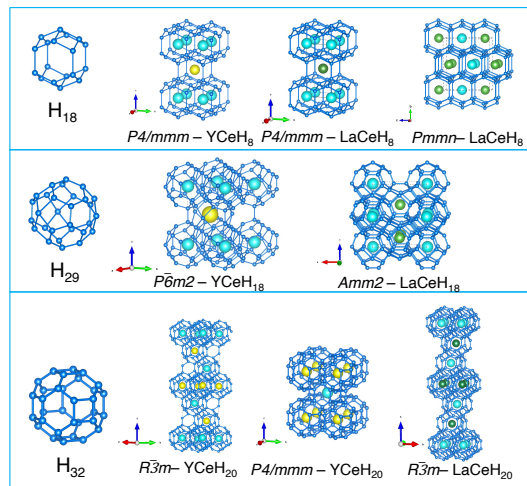


Fig. 1 安定した YCeH_x と LaCeH_x のクラスレート構造。

関連発表論文

- 1) P. Song, Z. Hou, K. Nakano, K. Hongo and R. Maezono, Potential high- T_c superconductivity in

YCeH_x and LaCeH_x under pressure, Mater. Today Phys., 28, 100873 (2022/IF = 11.021/Q1-journal).

関連取得研究費（もしあれば）

- 1) "Data scientific structure search for ternary hydride high-temperature superconductors", JPSJ/GAKUSHIN/DC2 (Research Fellowship for Young Scientists, 2021batch) (Representative [P. Song/PhD course student/2yr]; 2022.4-2024.3).

Interface structure prediction of SnS-based thin film solar cell using CALYPSO.

Dahule Rohit Sanjay
Maezono Group
Machine: Kagayaki, Impcc

Abstract:

Thin film solar cells (TFSC) have become a suitable alternative for sustainable energy supply because of their reduced material cost. Moreover, the SnS is a promising candidate for a low-cost, earth-abundant, photovoltaic absorbing layer for TFSC. In this context, the structural and optoelectronic properties of SnS were investigated using a combination of experiment and theory. First-principles density functional theory (DFT) computations of the bulk and surface SnS were employed to evaluate the electronic structures and analyze the observed anomalies in their bulk and surface electrical properties. The experimentally observed semi-metallic behavior utilizing scanning tunneling spectroscopy was further addressed by DFT calculations. Furthermore, the physicochemical insights in the surface and interface of SnS-based TFSC will help in understanding the transport properties in the heterostructure. In addition, the CALYPSO-predicted atomic structure of interfaces as shown in Figure 1 would enable comprehension of the physical properties of the TFSC layers and therefore, would be extremely useful for the fabrication of high-performance devices.

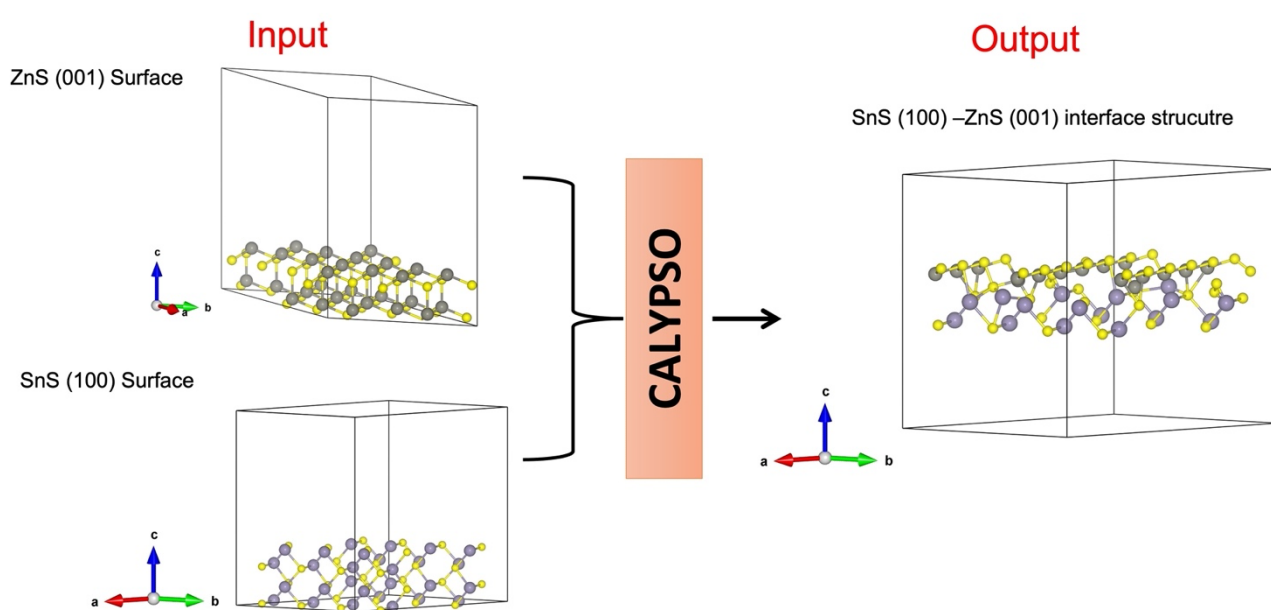


Figure 1 Interface structure prediction of SnS(100) and ZnS (001)

Published papers:

- 1) Dahule, R., Singh, C.C., Hongo, K., Maezono, R. and Panda, E., 2022. *J of Mate Chem C*, 10(14), pp.5514-5525.

First-principles study on the specific heat of BaFe_2Se_3

Putu Bhargo Abhimana Chrysnanda
Maezono Group
Machine:: Kagayaki

Abstract

BaFe_2Se_3 is a member of iron-chalcogenides superconductors which exhibit iron ladder structure. Unlike other iron-chalcogenides, this material has a unique block antiferromagnetic (AFM) ordering (Figure 1) as opposed to the usual stripe AFM ordering. Hence, it has attracted a lot of research interest to understand its properties.

In this study, we try to investigate the specific heat of BaFe_2Se_3 from first-principles Density Functional Theory (DFT) calculations. We used the Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) implementation of Generalized Gradient Approximations (GGA) functional. For these calculations, plane waves energy cutoff of 350 eV and Monkhorst-Pack k-point mesh of $6 \times 6 \times 3$ were employed. The specific heat can be evaluated by using phonon calculations, which requires the structure of bulk BaFe_2Se_3 to be optimized first. Structure optimization was carried out with energy and force convergence criteria of 10^{-8} eV and 10^{-3} eV/Å, respectively. Here, we adopted the $Pmn2_1$ structure as the initial structure for our calculations. Previous calculation attempts resulted in different symmetry due to buckling of Fe ladder structure, which was not observed in other literatures. Currently, we are trying to optimize the atomic positions only while leaving the cell shape and volume constant to fix the issue of symmetry breaking.

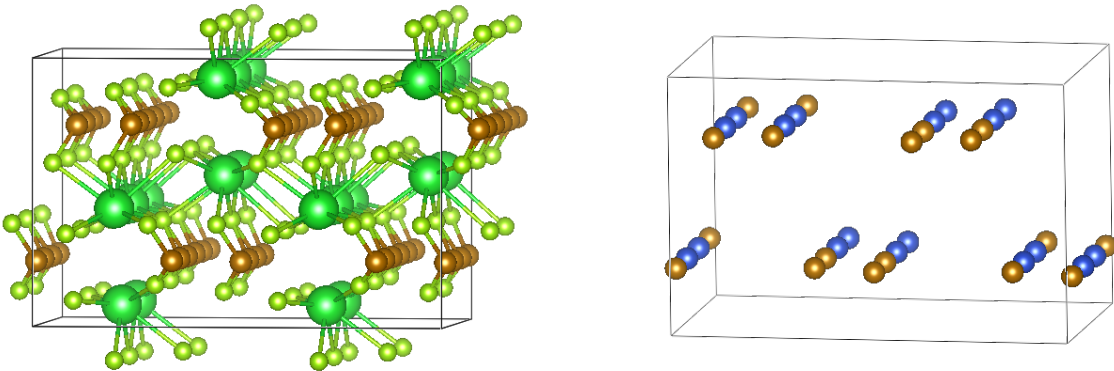


Figure 1: Crystal structure of BaFe_2Se_3 (left) and magnetic ordering of Fe ladder (right)

Theoretical investigation into growth mechanism of self-oriented LaNiO₃ buffering layers: A first-principles DFT evaluation of their surface energies

Putu Bhargo Abhimana Chrysnanda
Maezono Group
Machine:: Kagayaki

LaNiO₃ is used as an appropriate buffering layer for piezoelectric materials such as PZT (PbZrTi), because it grows self-assembly on any substrates in liquid process, leading to a self-oriented layer. Experimentally, XRD analysis found that (200) plane has 10 times larger peak intensity than (110) plane, indicating (200) is a more favorable orientation than (110), though its growth mechanism still remains unclear. Instead of relying on experiments, theoretical investigations based on first-principles evaluations of surface energies can provide deeper insights into the growth mechanism; if a certain surface has a lower surface energy than the other ones, it can be concluded that the growth of the surface is energetically dominant. Here the surface energy γ is defined as the energy difference between the surface slab and the bulk reference as:

$$\gamma = \frac{1}{2A} \left(E_{slab} - \sum_{i=1}^N n_i \mu_i \right),$$

where E_{slab} is the total energy of surface slab, n_i and μ_i are the number of i species and the chemical potential of i species in the bulk material having N atoms in total, and A is a surface area. μ_i and E_{slab} values can be evaluated from first-principles simulations for the bulk and surface models, respectively. To evaluate the E_{slab} values, we first modeled (200)- and (110)-oriented surfaces by means of supercell approach (Fig. 1). The present simulations were based on density functional theory (DFT) within the framework of generalized gradient approximation (GGA) with the Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) implementation. The Kohn-Sham orbitals were expanded in terms of plane waves with cutoff energy of 520 eV. The ionic cores were replaced with PAW pseudopotentials. 6x6x6 and 4x6x1 Monkhorst-Pack k-point meshes were adopted for the bulk and (110) surface slab models, respectively. For both the models, their structures were fully optimized until the total energy converge within 10⁻⁶ eV. The computations for deciding the k-point mesh and the vacuum width in the slab model were done using Quantum Espresso. However, due to convergence problems, we decided to do the subsequent calculations using VASP. Currently, we are conducting calculations to determine the suitable slab width.

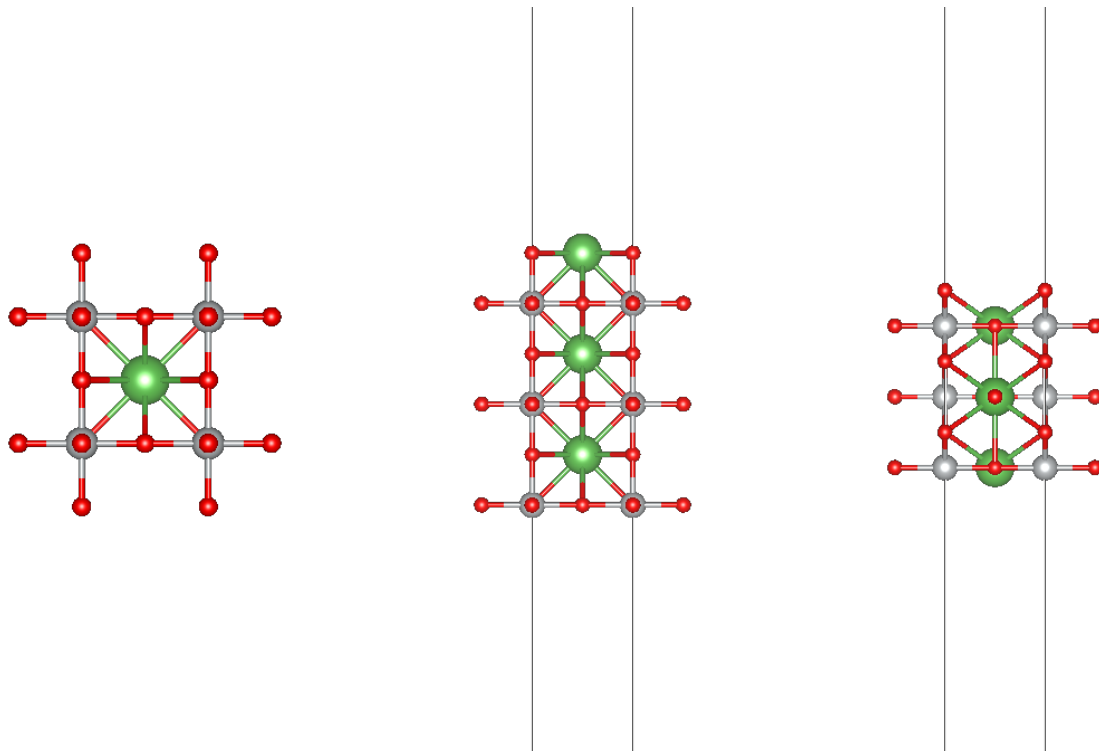


Figure 1: Bulk structure model (left), (200)-oriented surface slab model (middle), and (110)-oriented surface slab model (right). Green-, gray-, and red-colored balls stand for Li, Ni, and O atoms, respectively.

GPUを使ったストリーム学習に関する研究

所属・氏名

井口研究室 渡邊純司

使用計算機: Kagayaki

概要

IT デバイスやモバイルデバイスの普及により、時々刻々と作り出されるデータの量は増えています。このような連続的に作り出されるデータのことをデータストリームと呼びます。データストリームからパターンを学習するには従来の機械学習に用いられるバッチ学習をそのまま適用することができません。なぜならデータストリーム学習では、データは1度だけ観測され全てのデータを保持することができません。

データストリーム学習によく用いられる手法として、**Hoeffding Tree** というインクリメンタル学習アルゴリズムの決定木があります。**Hoeffding Tree** をよりロバストに学習するために、ランダムフォレストと呼ばれる手法が用いられます。ランダムフォレストでは、たくさんの決定木を学習するために計算量が増加してしまうことが問題になります。特にデータストリーム学習においては大量のデータを扱うことを想定しているために、なるべくスループットを向上する必要があります。

GPU Random Forest(GPU RF)はこの問題に対して、GPU を使った並列アルゴリズムを提案し大幅なスピードアップを達成しております。しかし、実装上の問題でツリーの深さに制限を設けるなどの制約が存在します。これによって、扱える問題が限られてしまっています。**Adaptive Random Forest(ARF)**は、様々なストリーム学習の問題に対して優位性を示している手法です。**ARF**はマルチコア CPU を活用して並列化することでスピードアップを達成しておりますが、**GPU RF** ほどのスピードアップには至っていません。

本研究では **GPU Adaptive Random Forest (GPU ARF)**を提案し、**GPU RF** で問題となっていた制約を取り除き、かつ **ARF** のような汎用性をめざしました。結果として、**GPU ARF** は **ARF** と比較して、3 倍から 7 倍のスピードアップを達成しました。またこの比較には、C++で速度を最適化した **ARF** との比較を行っており、並列プログラムには **Open MP** を使いました。**GPU ARF** の実装には **NVIDIA** の **CUDA C++** を使いました。

Kagayaki を使うことで **OpenMP** のプログラムの実行や **GPU** プログラムの実行を簡単に行うことができ、実験の計測を用意に客観的に行うことができました。

人間らしい将棋 AI に関する研究

所属・氏名 融合科学共同専

攻 M2 小川竜欣

使用計算機: Kagayaki

概要

ゲームを対象とした情報処理に関する研究はゲーム情報学と呼ばれている。ゲーム情報学では長らく、「人間のトッププレイヤーに勝つ」という目標が掲げられてきたが、将棋や囲碁、チェスといった完全情報ゲームではこの目標は既に達成された。しかし、人間を楽しませるという点から見ると、残された課題は多い。人間らしい将棋 AI を実現するにあたって、将棋 AI を構成する要素について着目すると、「価値関数（局面から勝率を予測する）」と「方策関数（局面から着手確率を予測する）」、「探索手法（先読みを行い、価値関数・方策関数の評価を精緻化する）」という構成例が挙げられる。本論文では、探索手法の構成要素となっている方策関数の人間らしさを向上させる手法について提案し、実際に人間らしさを向上できているかについて評価を行った。

強いゲーム AI が調整なしで人間と対局すると棋力が高すぎるため、ランダムな行動をとらせたり探索を浅くしたりといった単純な方法で弱体化させることがある。これらのゲーム AI の行動は、ときに人間にとって奇妙であったり、理解しがたいものであったりする。これは、単に対局して人間に勝利したり、互角の勝負をしたりすることだけが目的であれば問題ないが、人間を楽しませることを目的とする場合に問題になる。なぜなら、人間プレイヤーはゲーム AI の手が不自然である、もしくは理解できないと感じると、対局を楽しむのは難しくなるためである。この問題を解決するため、チェスや囲碁で人間の着手予測に有効な手法として知られている深層教師あり学習モデルと、強いゲーム AI を作る手法として知られている AlphaZero 系の強化学習モデルについて、各モデルが将棋の着手予測についても有効か調査を行った。その結果、1 モデルにつき約 13 万棋譜を使用した深層教師あり学習は人間の手を 50%程度予測でき、将棋においても有効な手法であることを示した。強化学習に基づく AlphaZero 系の将棋 AI である DLshogi は、棋力が高いプレイヤーの手をより正確に予測できることを示した。これらの 2 つのモデルはそれぞれ強みがあるため組み合わせることが有望だと考えたが、異なる視点からも分析を行うことで、モデルについて理解をより深められると考えた。そこで、深層教師あり学習モデルについて、尤度（モデルによって予測される人間の手の確率）に着目して分析を行った。そこから、低棋力プレイヤーのデータでは予測確率が 0.01 以下の人間の手は 5%ほど存在するなど、モデルが予測できていない人間の手が少なからず存在することを示した。このようなことが起きる理由を調べるため、モデルが予測しづらい局面について考察・分類を行った。分類については、「モデルが探索しないことによるミス」、「人間の探索に関するミス」、「操作ミス」、「様々な手が有望な局面」、「敗勢の局面」という 5 つに分け、各分類ごとに尤度を高める手法について提案を行った。また、人間らしい方策関数については、教師データの数が限られている場合に、複数の方策を組み合わせることで、一致率・尤度の向上を目指す 2 つの手法を提案した。一つは、Classifier モデルという、異なる状況に応じて適切な方策関数を選択する「分類器」を用いるものであり、もう一つは、Blend モデルという、複数の方策関数の確率を「混合」するものである。実験の結果、Classifier モデルでは一致率については低棋力プレイヤーのデータでは 1.3 ポイント、高棋力プレイヤーのデータでは 2.0 ポイント向上したが、尤度については向

上しないことが分かった。Blend モデルでは、一致率については低棋力プレイヤーのデータでは 2.9 ポイント、高棋力プレイヤーのデータでは 3.7 ポイント向上した。また、尤度についても低棋力プレイヤーデータでは 0.200 から 0.224, 高棋力プレイヤーのデータでは 0.201 から 0.224 に改善した。このように、Classifier モデルも Blend モデルも一致率を向上させることに成功したが、Blend モデルのほうが一致率の向上幅が大きい。尤度の向上にも成功したため、より優れた手法と言える。

関連発表論文

国内学会口頭発表（査読あり）

- 1) 小川竜欣, シュエジュウシュエン, 池田心. 着手予測モデルが予測しづらい局面の考察・分類と確信度を利用した一致率の向上, 第 27 回ゲームプログラミングワークショップ (GPW), pp.180–186, (2022).

国際学会口頭発表（査読あり）

- 2) Ogawa, T., Hsueh, C.-H., Ikeda, K.: Improving the Human-Likeness of Game AI 's Moves by Combining Multiple Prediction Models, 15th International Conference on Agents and Artificial Intelligence (ICAART), Paper #276, (2023)

3. マテリアルサイエンス分野の計算サーバ利用研究

Ziegler-Natta 触媒ナノ構造の非経験的構造決定に関する研究

先端科学技術研究科 谷池研究室・筑間 弘樹, Da Silveira Marcos Joao, 和田 透, 谷池 俊明

使用計算機: Impcc, KAGAYAKI

Ziegler-Natta 触媒 (ZN 触媒) は、現代のポリオレフィン生産の中核を担う触媒である。その構造単位である一次粒子は、 MgCl_2 ナノプレートが TiCl_4 によって終端されていると考えられており、その構造は触媒機構解明の基礎となる。しかし、固体触媒に代表される複雑な材料において分子レベルの情報は実験的に得難く、ZN 触媒においても構造の詳細は未解明である。当研究室では、遺伝的アルゴリズム (GA) と密度汎関数法 (DFT) を組み合わせることにより実験結果によらない ZN 触媒の正確な分子モデルの決定を試みている。実触媒サイズの系における構造決定においては、探索空間の拡大と局所解の増大による GA の早期収束および DFT 計算の計算コスト削減が大きな課題となる。本年度は、構造データベースからの移住による分散型 GA の実装による早期収束の解決および、高次元ニューラルネットワークポテンシャル (HDNNP) の導入による計算コスト削減に取り組んだ。なお、HDNNP は分子モデルと DFT 計算結果の対応をニューラルネットワークによって学習し、高速かつ高精度に DFT 計算を再現できるポテンシャルモデルである。

共有計算サーバーは、GA による非経験的構造決定および NNP 構築に活用された。DFT 計算には多大な計算量を要し、HDNNP 構築には巨大なデータセットを用いた訓練が必要である。

分散型 GA によって、局所解にトラップが抑制され、構造決定が効率化されることで、実触媒に近いサイズを持つ TiCl_4 終端 MgCl_2 ナノプレート ($50\text{MgCl}_2/3\text{TiCl}_4$) の構造決定が実現されたこの成果は論文 1 で報告された。

HDNNP 構築では $\text{MgCl}_2/\text{TiCl}_4$ 系においてエネルギーで 1.5 kcal/mol、力で 1.5 kcal/(mol Å) 程度の二乗平均平方根誤差を持つ高精度なポテンシャルを実現した。DFT による構造最適化計算およびエネルギーの評価を HDNNP で代替することで、計算時間を平均 1400 倍程度に改善させることに成功した。これにより、実触媒スケールのサイズおよび TiCl_4 被覆率を有する TiCl_4 終端 MgCl_2 ナノプレート ($50\text{MgCl}_2/9\text{TiCl}_4$) の構造決定を実現した (Fig. 1)。この成果は発表 1 で報告された。

また、現在は ZN 触媒の改質剤である内部ドナーを含めた構造決定についても実施している。

【関連発表論文】

- 1) G. Takasao, T. Wada, H. Chikuma, P. Chammingkwan, M. Terano, and T. Taniike: "Preventing Premature Convergence in Evolutionary Structure Determination of Complex Molecular Systems: Demonstration in Few-Nanometer-Sized TiCl_4 -Capped MgCl_2 Nanoplates" *J. Phys. Chem. A*, 2022, 126, 5215-5221.

【関連学会発表】

- 1) 筑間 弘樹, 高棹 玄德, Behler Jörg, 谷池 俊明, "機械学習ポテンシャルによる Ziegler-Natta 触媒ナノ構造の非経験的構造決定", 第 52 回石油・石油化学討論会, 長野, 2022.10.27-28, 一般口頭.

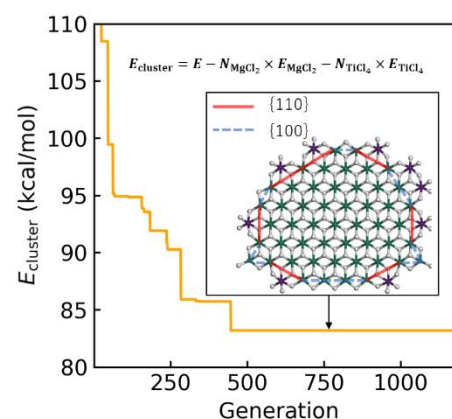


Fig. 1. Evolutionary progress plot for the structure determination of $50\text{MgCl}_2/9\text{TiCl}_4$. The energy of the most stable structure in a generation is plotted against the generation.

ポリマー1分子の直視 アニオン性ポリマー鎖とカチオン性ポリマー鎖の 静電引力による1分子力学計測

所属・氏名：マテリアルサイエンス系 篠原健一、大貫佑河、堀諒雅、東大院理 樋口秀男

使用計算機：Large Memory PC Cluster -superdome-(1mpcc)

既に我々は、アニオン性ポリマー鎖とカチオン性ポリマー鎖の静電相互作用ダイナミクス的高速 AFM イメージングを報告した。今回、光ピンセット（レーザートラップ）法によるイオン性ポリマー鎖の力発生を直接計測することに成功した。アニオン性ポリマーとして PAMPS [poly(2-acrylamido-2-methyl-1-propanesulfonic acid)] (M_w : 3.31×10^6 , M_w/M_n : 2.24, Sigma-Aldrich, 図 1 左) を用いた。カ

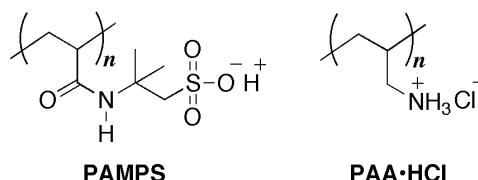


Fig. 1. Chemical structure of ionic polymers.

チオン性ポリマーとして PAA · HCl [Poly(allylamine hydrochloride)] (M_w : 3.57×10^4 , M_w/M_n : 2.23, Nittoho Medical, 図 1 右) を用いた。先ず、ガラス基板表面に PAMPS 水溶液をキャストし静置する。一方、PAA · HCl 水溶液とビーズ（直径 $1 \mu\text{m}$ カルボキシル化ポリスチレンビーズ）を混合した後、 15 mM KCl 水溶液中で希釈して希薄溶液を調製する。この溶液を上記のガラス基板にキャストし、最後に 15 mM KCl 水溶液でリンスして観測試料とした。

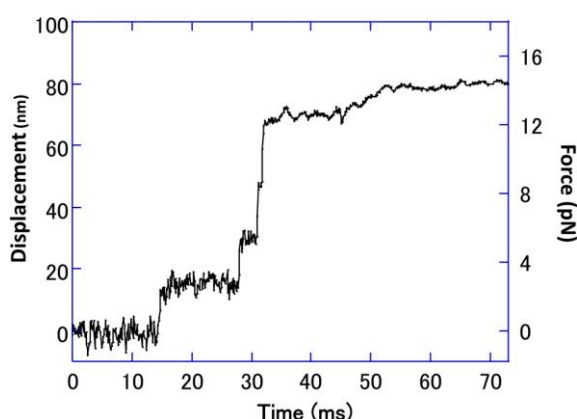
実験の結果、図 2 に示す力発生が計測された。ポリマー鎖は、レーザートラップのバネに対して仕事をしたことになり、ポリマー鎖の仕事はバネの仕事の式を使って、

$$E = \frac{1}{2} kx^2 = 0.5 \times 0.18 \times 80^2 = 576 \text{ [pN}\cdot\text{nm]}$$

$$= 576 \times 10^{-21} \text{ [J]}$$

ここで、 k はトラップのバネ定数、 x は変位である。

この値は、熱ゆらぎエネルギー $k_B T = 4.1 \text{ pN}\cdot\text{nm}$ の 140 倍であり、ATP の加水分解エネルギー ($\sim 400 \text{ pN}\cdot\text{nm}$) の 1.4 倍の仕事がなされた。静電相互作用によるエネルギーと考察される。さらに 15 nm 程度のステップ状の力発生（中間状態）が確認された。既報告の高速 AFM イメージングにおいても PAMPS 鎖に沿った



たプロセッシブな PAA 短鎖分子運動における 15 nm 程度のステップが多数観測されていることから分子歩行による分子モーターの力発生であると考察された。また、 15 mM KCl 水溶液中のイオン性ポリマー鎖間の相互作用について、全原子 MD シミュレーションを実施した。

Fig. 2. A stepwise force generation by an ionic interaction between PAMPS chain and PAA · HCl chain in 15 mM KCl aq. at $25 \text{ }^\circ\text{C}$ measured by an optical trap system.

関連発表論文

- 1) ○篠原 健一、大貫 祐河、堀 諒雅、樋口 秀男、ポリマー1分子の直視：イオン性ポリマー分子モーターの高速 AFM イメージングとレーザートラップ法による力学計測、高分子学会、第 71 回高分子討論会、北海道大学、2022 年 9 月 7 日 (口頭発表)

分子シミュレーションを活用した糖鎖の水和構造の解析

マテリアルサイエンス系・山口拓実

使用計算機: KAGAYAKI

概要

糖鎖の機能を制御する要因として水和に注目し、糖鎖の構造-水和挙動の連関の解明に取り組んだ。糖鎖の機能発現には、その化学構造や立体構造に加え、水和が重要な因子として考えられる。また糖鎖は医療のターゲットとしても注目されており、新薬の開発等へ応用するためにも、その水和構造の理解は役立つものと言える。そこで分子動力学 (MD) シミュレーションによる解析と核磁気共鳴 (NMR) 計測を組み合わせ、糖鎖の構造に依存した水和挙動の違いについての観測・比較を行った。

MDシミュレーションにはKAGAYAKIを利用し、AMBER20プログラムパッケージを使用して行った。糖鎖の力場には酸素の孤立電子対を考慮した GLYCAM06EP を使用し、水の孤立電子対を考慮するため TIP5P モデルの水を共存させた。シミュレーションは 1 atm、300 K での *NPT* アンサンブルによって行い、得られたデータを解析した。

はじめに糖鎖の基本的な構成単位である、グルコース、ガラクトース、マンノースの各単糖について解析を行った。各試料の NMR 計測を行った結果、これらの単糖間では、糖の水酸基と水とのプロトン交換速度に違いがあることが示された。さらにマンノース溶液では水分子の挙動が異なっており、水-水間の相互作用が強く働くことが示唆された。そこで MD シミュレーションにより、糖と水分子との間の水素結合を調べたところ、マンノースでは糖の水酸基間を架橋する水分子が顕著に確認された。これらの結果から、糖鎖と強く結びついた水分子が、周囲の水の配置を変化させることが示唆された。

また、細胞内に見られる高マンノース型糖鎖の部分構造に着目し、MD シミュレーションと NMR 計測による解析を行った。その結果、高マンノース型糖鎖の末端に見られる特徴的なグルコース-マンノース配列は、糖残基間を架橋する水分子が存在しており、周囲の水の構造化を進めることが示唆された。また、水の構造化には立体構造の安定性も重要であることが示唆された。糖鎖の化学構造や配列の違いは、水素結合の様式と立体構造の揺らぎの両面で周囲の水分子に影響を与え、水和圏の範囲を調整していることが考えられた。得られた知見は、水溶液中の糖鎖のふるまいを知ることに一助になるものであり、水和構造の理解による機能制御を通して、糖鎖のマテリアル応用へと発展することが期待される。

関連発表論文

- 1) H. Tatsuoka and T. Yamaguchi, "NMR analyses of carbohydrate-water and water-water interactions in water/DMSO mixed solvents, highlighting various hydration behaviors of monosaccharides glucose, galactose and mannose," *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 2023, 96, 168–174. 査読有
- 2) 龍岡博亮, 山口拓実, "H/D 同位体シフトを用いた糖の水和挙動の NMR 解析," 第 16 回バイオ関連化学シンポジウム, 名古屋, 2022 年 9 月.
- 3) 龍岡博亮, 山口拓実, "溶液 NMR 法を用いた糖-水間および水-水間相互作用解析," 第 41 回日本糖質学会年会, 吹田, 2022 年 10 月.
- 4) 龍岡博亮, 山口拓実, "溶液 NMR 計測と分子シミュレーションを用いた糖鎖の立体構造と水和挙動の連関の解明," 日本化学会第 103 春季年会, 野田, 2023 年 3 月.

低い格子熱伝導率を示す AgP_2 の熱電物性と非調和フォノンのメカニズムの研究

先端科学技術研究科

宮田全展

使用計算機: KAGAYAKI

概要

石油や天然ガスなどの一次エネルギーのうち、エネルギーとして回収できるのは 33%程度であり、残りの 67%は未利用熱として廃棄されている。廃熱の多くは蒸気タービンを利用したエネルギー回収が困難な 150°C 以下の低温排熱は大きな割合を占めるため、低温排熱からエネルギーを回収する技術が求められている。熱電変換は熱エネルギーを電気エネルギーに直接相互に変換できる唯一の技術として注目を集めている。現在、応用に用いられている熱電変換材料は、 Bi_2Te_3 等の Te 化合物である。Te は Pt と同程度の地殻埋蔵量しかない為、Te を含まない熱電材料の研究が世界各国で精力的に行われている。

本研究では、他の材料系と比較して未開拓領域であるリン化合物に注目し、新規高性能熱電材料の探索を行っており[1]、組成が比較的単純な二元系のリン化合物 AgP_2 について、世界で初めて実験と第一原理計算から熱電物性を詳細に調査した。室温において、実験で合成した AgP_2 は、約 $1.2 \text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$ というリン化合物の中では極めて低い格子熱伝導率を示す真性半導体であることが分かった。このきわめて低い格子熱伝導率を示すメカニズムを明らかにするため、第一原理計算コード OpenMX とフォノン輸送計算コード ALAMODE を用いて、 AgP_2 のフォノン輸送メカニズムを詳細に調べた。その結果、 AgP_2 における Ag-P クラスター中の Ag 原子が、結合の異方性に起因した大きな非調和振動を示し、強いフォノン-フォノン散乱が生じることで低い格子熱伝導率を達成していることを明らかにした。本研究の成果は、研究業績 [2]および 2022 年度日本熱電学会にて発表を行い、優秀講演賞を受賞した[3]。

株式会社白山をプロジェクトリーダーとした、シリサイド系熱電材料のモジュール開発の産学連携研究に共同研究者の一人として昨年度に引き続き参画し、第一原理計算を用いたシリサイド中に含まれる不純物相が電子物性に及ぼす効果の解明や、モジュール素子の材料設計指針を提案に貢献した[4]。

<関連取得研究費>

- [1] 科学研究費補助金 若手研究 (基金), Ag-P クラスター構造を有するリン化合物熱電材料のフォノン輸送メカニズムの解明, 令和 2 年度~4 年度, 研究代表者: 宮田 全展

<関連発表論文 (査読あり) >

- [2] M. Miyata and M. Koyano, Materials Research Express 9(5), 055901-055914 (2022).

<受賞>

- [3] 優秀講演賞, 日本熱電学会(2022 年)

<産学連携実績>

- [4] 相手方: 株式会社白山
期 間: 令和 4 年 5 月 17 日~令和 5 年 3 月 31 日
研究課題名: 環境調和型熱電モジュールの開発
研究代表者: 小矢野 幹夫, 建部 秀斗
研究分担者名: 宮田 全展, 高畑 宏章, 内田 健太郎

炭化水素系分子の Mulliken 電荷の計算

ナノマテリアルテクノロジーセンター 東嶺孝一

使用計算機: LMPCC

概要

電子エネルギー損失分光法における内殻電子励起スペクトルの測定によって、材料の化学状態に関する情報を得ることができる。無機材料では、例えば金属酸化物の酸化数の違いによって、ピーク位置やピーク形状が異なるなどの例が多数報告されている。一方で、高分子材料等では報告例が少なく、測定したスペクトルの解釈が困難な場合がある。最近、ニューラルネットワークを用いた内殻電子励起スペクトルの定量解析に関する報告事例 [1] があり、そこでは、内殻電子励起スペクトルから Bond Overlap Population や Mulliken 電荷の予測が可能であると結論付けられている。このことから、高分子材料等のスペクトルの解釈に向けて、各原子の Mulliken 電荷等の計算をすることは有用と考えられる。今回は、DMol3 を用いて炭化水素系分子の Mulliken 電荷の計算を行った。一例として、比較的構造の単純な C_6H_6 と C_6H_6O についての計算結果を図 1, 2, および、表 1 に示した。それぞれの分子における各炭素原子の Mulliken 電荷を比較すると、 C_6H_6 と比べて C_6H_6O では、OH の付いた C1 の Mulliken 電荷は正の値となるが、それに隣接する C2, C6 および C4 では、負の値のまま絶対値が増加する結果が得られた。この結果は、内殻電子励起スペクトルの CK 端が、 C_6H_6O の場合にはどの炭素原子に起因するピークであるかによって、ピーク位置が異なる可能性があることを示唆している。今回、いくつかの炭化水素系分子とそれに酸素を付加した分子の Mulliken 電荷について計算をした。得られた結果は、例えば高分子材料等が酸化した時のスペクトルの変化を解釈する際に有用な情報になると期待される。

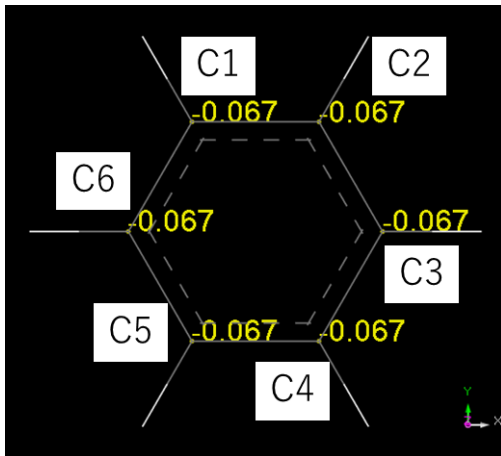


図 1 C_6H_6 の C 原子の Mulliken 電荷

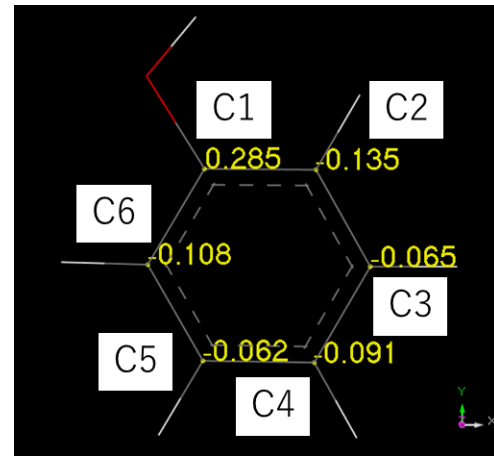


図 2 C_6H_6O の C 原子の Mulliken 電荷

表 1 各分子の Mulliken 電荷の計算結果

	C1	C2	C3	C4	C5	C6
C_6H_6	-0.067	-0.067	-0.067	-0.067	-0.067	-0.067
C_6H_6O	0.285	-0.135	-0.065	-0.091	-0.062	-0.108

[1] Shin Kiyohara *et al* 2019 *J. Phys. Mater.* **2** 024003

「相変化材料を用いた光スイッチの相変化状態制御に関する研究」

石川工業高等専門学校・佐野陽之

JAIST ナノマテリアル・デバイス研究領域・水谷五郎

安東秀

使用計算機： Kagayaki

<目的>

相変化材料の自己保持性を利用した“高速で低消費電力な光スイッチ”（相変化光スイッチ）の開発が進められている。これまでの研究において、「相変化材料の相状態がよく分からず、予想される性能が出ない」「挿入損失が大きい」などの問題が生じている。そのため、本研究では、「光スイッチ動作の完全な理解」と「低損失な相変化材料の提案」を行う。

<内容および研究成果（状況）>

○相変化シミュレーション

相変化材料 GST ($\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$) を用いた光スイッチ動作を完全に理解するため、「電気伝導、ジュール熱発生、熱拡散、相変化、光伝搬」の物理現象を含む相変化光スイッチシミュレーションシステムを開発した。試作デバイスを基にした光スイッチモデル構造に関するシミュレーションを行った結果、GST のアモルファス化過程において、GST の加熱が著しく不均一であり、そのため冷却時に GST の再結晶化が進むことによって光スイッチの消光比性能が劣化することが分かった。GST 加熱時の電流・電位分布を解析したところ、GST の乗っていない ITO 領域の相対的な電気抵抗が大きくなり、その部分で発生するジュール熱が大きくなるのが不均一加熱の原因であることが分かった。この結果をもとに、GST 内の温度差を小さくするための検討を行い、「GST 膜の乗っていない ITO 領域の膜厚を 2 倍したモデル構造」(M1) と「ITO 層と GST 層の間に電気的な絶縁のための SiO_2 層を挿入したモデル構造」(M2) に関するシミュレーションを行った。M1 モデルでは、GST 内の温度差が約半分になり、冷却後の再結晶化が大きく減少する結果を得たが、M2 モデルでは、再結晶化の抑制効果が小さいことが分かった。

○低損失な相変化材料の探索

MnTe は変位型相変態を示す磁性半導体であり、光スイッチで利用される波長領域で光吸収が非常に小さく、また高速に相変態が起こることが知られているため、相変化光スイッチの材料として有望である。そこで、 α 、 β 、 β' の 3 つの MnTe 結晶相を対象に、第一原理計算を行った。計算手法（近似）として GGA-U と HSE06 を使い、構造最適化、状態密度分布 (DOS)、エネルギーバンド図、光学誘電率の計算を行った。GGA-U 近似を用いた場合、計算時間が短いバンドギャップが実験値より 30%程度小さくなった。一方、HSE06 近似を用いた場合、計算時間は長いバンドギャップは実験値とほぼ同じ値になった。 β' 型については、Mn と Te の最近接原子間距離が 1.7Å であり、計算プログラム (VASP) の限界値 2.48Å よりずっと小さく正しい計算を行うことが出来ないことが分かった。今後は、 α と β の 2 つの結晶相について、光学誘電率の測定データとの比較や相変態の反応経路計算を行い、相変化の性質を明らかにしていく予定である。なお、この第一原理計算に関する研究は、JAIST ナノマテリアル・デバイス研究領域の水谷教授及び安東秀准教授との共同研究に基づいて実施している。

<研究業績等> 本研究に関連する研究発表等を以下に示す。

1) 佐野陽之、桑原正史、“相変化材料を用いた光スイッチ動作のシミュレーション解析”

応用物理学学会学術講演会 2023年3月18日（オンライン）18a-A202-6.

<関連取得研究費>

1) 科研費基盤研究 (C) 「相変化光スイッチの相変化状態制御の理論解析と最適なデバイス構造・材料の探索」令和2年度～5年度、研究代表者：佐野陽之

Band structure and Berry curvature calculation in hBN/Bilayer graphene heterostructure

Kareekunnan Afsal

Mizuta Lab

School of Materials Science

Machine Used: Kagayaki

Program Code: SIESTA

Here I performed ab initio calculation using SIESTA and Wannier90 code to calculate the band structure and Berry curvature for hBN/Bilayer graphene heterostructure. Both the band structure and Berry curvature were also calculated by applying positive and negative electric fields of different magnitudes across the heterostructure.

The ab initio calculations are performed using the SIESTA package, which uses the linear combination of atomic orbitals (LCAO) basis sets. To maintain a similar interlayer distance between the layers as the experimental values, van der Waals exchange-correlation functionals were used. A vacuum layer of 25 Å was used to reduce the interaction between adjacent structures. A Monkhorst-Pack grid of $40 \times 40 \times 1$ and an energy cutoff of 500 Ry were used for all the calculations. Structure optimization was performed until the force between atoms was less than 0.01 eV/Å. The Berry curvature calculation was performed using the WANNIER90 package. A total of 15 Wannier functions were utilized on a Monkhorst-Pack grid of $40 \times 40 \times 1$ to calculate the Berry curvature.

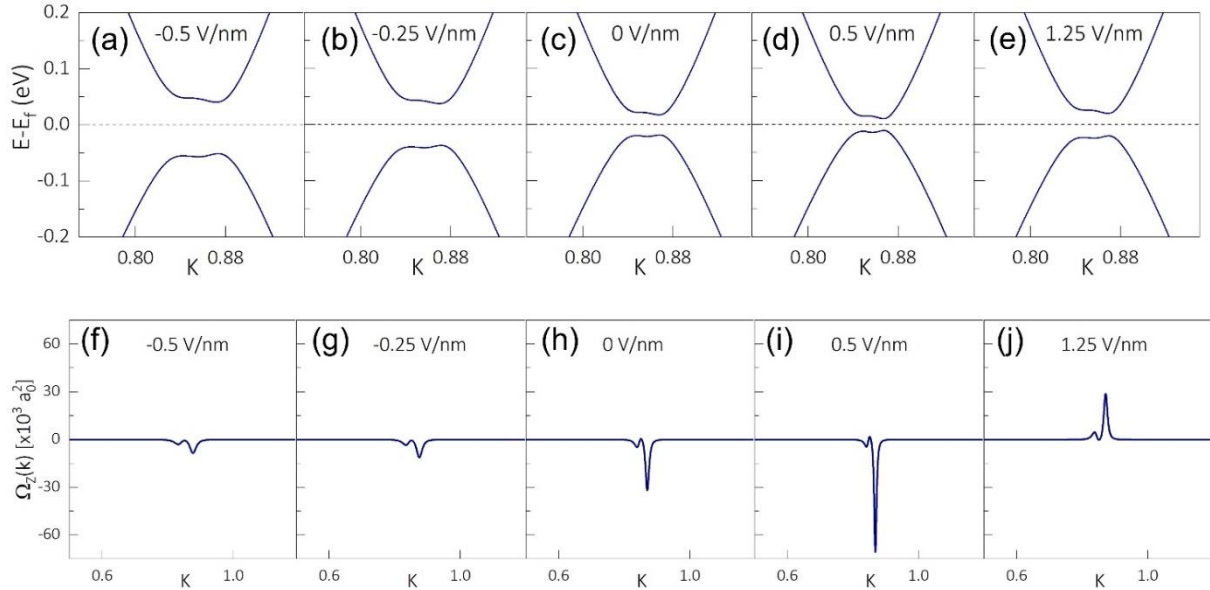


Figure 1: Electronic band structure calculated for the hBN/bilayer graphene heterostructure at electric fields of magnitude (a) -0.5 V/nm, (b) -0.25 V/nm, (c) 0 V/nm, (d) 0.5 V/nm and (e) 1.25 V/nm. Berry curvature calculated at K high symmetry point for the heterostructure at electric fields of magnitude (f) -0.5 V/nm, (g) -0.25 V/nm, (h) 0 V/nm, (i) 0.5 V/nm and (j) 1.25 V/nm.

Manuscript written:

Teppei Shintaku, Afsal Kareekunnan et al., Berry curvature induced valley Hall effect in non-encapsulated hBN/Bilayer graphene heterostructure aligned with near-zero twist angle, **arXiv preprint** arXiv:2301.02358

Lyotropic Liquid Crystalline Property and Organized Structure in High Proton-Conductive Sulfonated Semi-Alicyclic Oligoimide Thin Films

School of Materials Science,

Nagao Lab, Yao Yuze

Machine: Large Memory PC Cluster

Abstract

Fully aromatic sulfonated polyimides with a rigid backbone can form lamellar structures under humidified conditions, thereby facilitating the transmission of protons in ionomers. Herein, we synthesized a new sulfonated semi-alicyclic oligoimide composed of 1,2,3,4-cyclopentanetetracarboxylic dianhydride (CPDA) and 3,3'-bis-(sulfopropoxy)-4,4'-diaminobiphenyl (BSPA) to investigate the influence of molecular organized structure and proton conductivity with lower molecular weight. The density functional theory (DFT) calculation shows that this new oligoimide has a more linear main-chain conformation than the previous reported alkyl-sulfonated semi-aliphatic polyimides (ASSPIs) (Figure 1). Therefore, it can form an ordered lamellar structure under humidified condition even with a much lower molecular weight. Benefiting from the formation of the ordered lamellar structure, the new oligoimide exhibits an ultrahigh proton conductivity of 0.2 S cm^{-1} (298 K, 95% RH) which is the highest value among the reported alkyl-sulfonated polyimide (ASPI) thin films with comparable molecular weight.

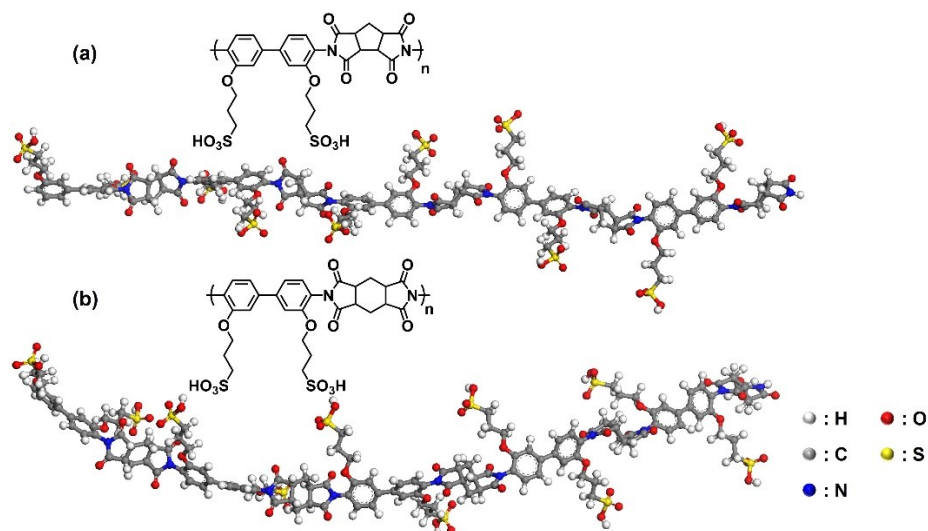


Figure 1. Optimized structures of (a) five repeating units of BSPA-CPDA with rigid backbone and (b) five repeating units of ASSPI with bending backbone.

Published papers:

- 1) Y. Yao, H. Watanabe, M. Hara, S. Nagano, Y. Nagao*, Lyotropic Liquid Crystalline Property and Organized Structure in High Proton-Conductive Sulfonated Semi-Alicyclic Oligoimide Thin Films, (10.1021/acsomega.2c06398.), peer reviewed.

Design of biopolybenzazole exhibiting low dielectric constant and ultrahigh thermoresistance

School: MS

Lab: Kaneko lab

Name: ZHONG Xianzhu

Machine: LMPCC

Abstract

Bio-based polymer materials having a great potential due to the depletion of fossil-fuel resources have been applied as single-use and medicinal materials but their low thermomechanical resistance limited the wide applications. Here the ultrahigh thermoresistant bio-based terpolymers with low dielectric constant, comprising polybenzimidazole and poly(benzoxazole-*random*-aramid) were prepared by a method involving stepwise polycondensation of three monomers—3,4-diaminobenzoic acid for benzimidazoles, 3-amino-4-hydroxybenzoic acid for benzoxazoles, and 4-aminobenzoic acid for aramids. For optimized monomer compositions, the obtained terpolymers exhibited dielectric constants lower than 3, and a 10% mass loss at approximately 760 °C—a temperature higher than that for any other polymer material reported so far. The high thermal degradation temperatures were a result of the high interaction enthalpies of hydrogen bonding between imidazole rings in the polymer chains, this was evidenced by the density functional theory calculations using trimer models in gaussian.

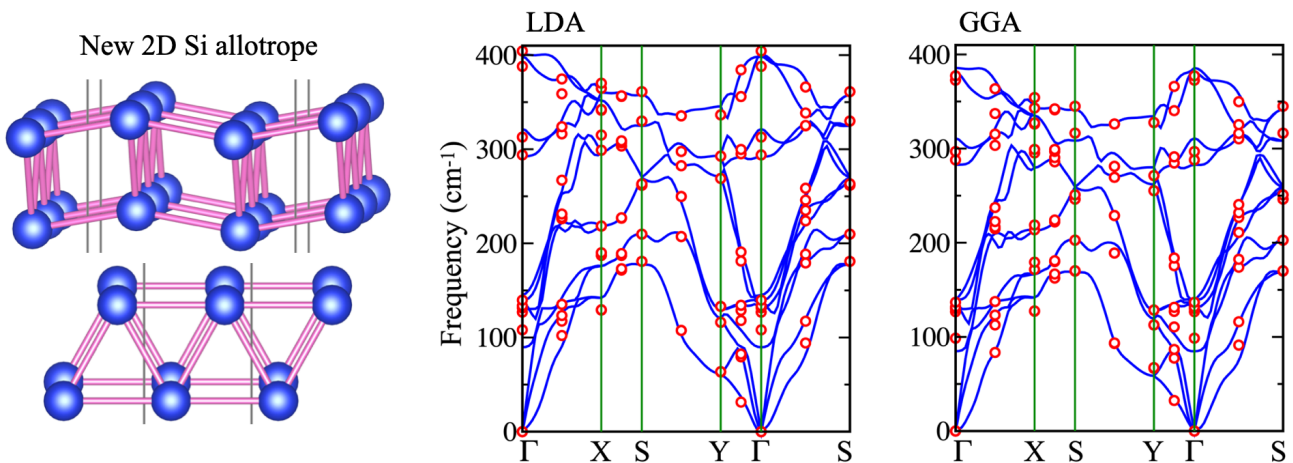
Published papers:

- 1) X. Zhong, T. Kaneko, et al., *RSC Adv.*, 2022,12, 11885-11895

Predicting new 2D materials useful for technology

Department of Physics
Tamkang University
Chi-Cheng Lee
Machine:: KAGAYAKI

In collaboration with Prof. Yamada-Takamura in School of Materials Science, JAIST, we have explored the physical properties of 2D materials composed of Si and Ge atoms that can exhibit high Fermi velocities needed for the interconnects in the semiconductor industry. We have used KAGAYAKI to search for many possible structures and identified the structures that possess lower energies than those of silicene and germanene, respectively. To calculate the phonon dispersion, a large-scale supercell is needed for the density functional theory (DFT) calculations and KAGAYAKI is also used to obtain the needed force constants. We have found the atomically thin Si and Ge allotropes not only possess high Fermi velocities superior to those in graphene but also are dynamically stable. This study demonstrates that all-silicon-based integrated circuits are possible.



Predicted new 2D Si allotrope with its phonon dispersion within LDA and GGA approximations.

Published papers:

- 1) Chin-En Hsu, Yung-Ting Lee, Chieh-Chun Wang, Chang-Yu Lin, Yukiko Yamada-Takamura, Taisuke Ozaki, and Chi-Cheng Lee, *Phys. Rev. B* **107**, 115410 (2023).

Activity Report FY2022

1. **Research title:** Capturing Charge and Size Effects of Ions at the Graphene-Electrolyte Interface Using Polarizable Force Field Simulations

Principle Investigator: Sairam Swaroop Mallajosyula

Affiliation: Associate Professor, Indian Institute of Technology Gandhinagar

Machine: Kagayaki

2. **Project Description:** We present a systematic investigation capturing the charge and size effects of ions interacting with the graphene surface using polarizable simulations. Our results utilizing the Drude polarizable force field (FF) for ions, water and graphene surfaces, show that the graphene parameters previously developed by us are able to accurately capture the dynamics at the electrolyte-graphene interface. For the monovalent ions, with increasing size, the solvation shell plays a crucial role in controlling the ion-graphene interactions. The smaller monovalent ions directly interact with the graphene surface, while the larger ions interact with the graphene surface via a well-formed solvation shell. For the divalent ions, both interaction modes are observed. For the anion Cl⁻, we observe direct interaction between the ion and the graphene surface. The anion-graphene interactions are strongly driven by the polarizability of the graphene surface. These effects are not captured in the absence of polarization by additive FF simulations. The present study underlines the importance of polarizability in capturing the interfacial phenomenon at the solid-solute interface.

3. Publication list during FY2022 using JAIST Facilities:

- i) Hemanth, H.; Mewada, R.; Mallajosyula, S. S., Capturing charge and size effects of ions at the graphene–electrolyte interface using polarizable force field simulations. *Nanoscale Advances* **2023**, *5* (3), 796-804.

4. Co-Authoring projects for FY2022 using JAIST facilities:

In FY2023 we plan to investigate the applicability of Graphene Nanopores in sequencing DNA using Drude Polarizable FF simulations. The work build up on the previous results that we obtained in FY2021 and FY2022.

1. **Research title:** Impact of Polarization on the Ring Puckering Dynamics of Hexose Monosaccharides

Principle Investigator: Sairam Swaroop Mallajosyula

Affiliation: Associate Professor, Indian Institute of Technology Gandhinagar

Machine: Kagayaki

2. **Project Description:** Analysis of crystal structures of hexose monosaccharides, α -D-mannose (α -MAN), β -D-mannose (β -MAN), α -D-glucose (α -GLC), β -D-glucose (β -GLC), α -D-galactose (α -GAL), β -D-galactose (β -GAL), α -D-altrose (α -ALT), β -D-altrose (β -ALT), α -D-idose (α -IDO) and β -D-idose (β -IDO) reveals that the monosaccharide ring adopts multiple ring conformations. These ring conformations can be broadly classified as chair, half-chair, envelope, boat and skew-boat conformations. The ability of the monosaccharide ring to adopt multiple conformations has been closely tied with their bio-activity. However, it has been difficult to capture the dynamic information of these conformations from experimental studies. Even from simulations capturing these different conformations is challenging because of the energy barriers involved in the transitions between the stable 4C_1 and 1C_4 chair forms. In this study, we analyze the influence of polarizable force field on the ring dynamics of five major types of unsubstituted aldohexoses, Glucose, Mannose, Galactose, Altrose and Idose, and their anomers. We simulate microsecond trajectories to capture the influence of CHARMM36 additive and polarizable carbohydrate force fields on the ring dynamics. The microsecond trajectories allow us to comment on the issues associated with equilibrium molecular dynamics simulations. Further, we use the extended system adaptive biasing force (eABF) method to compare the conformational sampling efficiencies of the additive and polarizable force fields. Our studies reveal that inclusion of polarization enhances the sampling of ring conformations and lowers the energy barriers between the 4C_1 and 1C_4 conformations. Overall, the CHARMM36 additive force field is observed to be rigid and favour the 4C_1 conformations. While the inclusion of polarizability results in enhancing ring flexibility, we observe sampling which does not agree with experimental results warranting a revision of the polarizable Drude parameters.

3. Publication list during FY2022 using JAIST Facilities:

- i) J. N, Chythra; Mallajosyula, S. S., Impact of Polarization on the Ring Puckering Dynamics of Hexose Monosaccharides. *Journal of chemical information and modeling* **2023**, *63*(1), 208-223.

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。