

氏名（本籍）	箕土路 祐希（大阪府）
学位の種類	博士（工学）
学位授与番号	甲第108号
学位授与日付	令和3年9月30日
専攻	システム工学専攻
学位論文題目	超球面探索法における計算コスト削減と結晶構造予測への適用
学位論文審査委員	(主査) 教授 橋本 正人 (副査) 教授 木田 浩嗣 准教授 山門 英雄

論文内容の要旨

本研究では、すでに化学反応経路探索の方法として広く成功している超球面探索法を用いて、固体の結晶構造をより低い計算コストで探索する方法を検討するものである。本研究では主にいかに記す3つの計算コスト削減の工夫を用いた。

1. Rapid-nuclear-motion 近似 (RNM 近似)
2. 充填率関数
3. Picking up Discrete reaction Center Atoms 法 (PDrCA 法)

RNM 近似では通常結晶を表現するのに必要な格子の変数、格子中の原子位置の変数のうち、格子の変数のみを扱う方法である。この方法はすでに、リチウムの遷移構造決定において一定の成果を上げている。今回 RNM 近似と超球面探索法をシリコンに適用することで、格子の変数のみを露わに取り扱い、複数の結晶構造多形を得ることに成功した。この方法は、複雑な結晶であっても超球面探索法で探索する空間は 6 次元に抑えられるという利点がある。RNM 近似は従来、Nudged Elastic Band 法などの 2 点間法（反応物構造と生成物構造）に適用され、反応経路の精密化などでその有用性を示していた。今回の超球面探索法との組み合わせで、RNM 近似が超球面探索法などの 1 点（反応物構造のみ）をインプットとして用いる方法でも、反応経路発見に有用であることが分かった。

充填率関数では、通常ポテンシャルエネルギー上の極小点を探すことで行われる安定構造探索を、独自に開発した充填率を参考にした目的関数上で行うものである。ポテンシャルエネルギー計算は多くの計算時間を要するので、大幅な探索の効率化が望める。今回、この目的関数上で探索を行うことで、原子の系では面心立方構造、六方最密充填構造を得ることが出来た。また分子の系（今回はエタン結晶）であっても、実測に近い構造を得ることが出来た。また実測に近い構造は、初期構造をランダムにした場合でも超球面探索法でたどり着くことが出来た。このことから今回、考案した目的関数は結晶構造の探索に使用できることが分かった。球や多面体を空間充填する数学的問題はよく知られているが、充填率の極大化を用いて結晶構造の探索を行ったのはこれが初めてである。また密な空間充填についてはよく研究されているが、密充填構造同士をつなぐような充填構造（充填率の 1 次鞍点）についての研究は少なく、重要な知見になると考えている。

最後に、PDrCA 法は、巨大分子の配座探索を効率的に行う方法である。巨大分子の構

造最適化では microiteration 法が行われるが、その際の反応中心は結合でつながった原子団が選ばれることが多い。PDrCA 法ではその名の通り、分子全体から少しずつ反応中心とする原子をピックアップする。これによって分子全体のジオメトリーを考慮できる。実際に h グリシンの 3 つの水素を反応中心として、microiteration 法+超球面探索法で配座探索を行ったところ、採用した計算レベルで表現可能な 7 つの配座を得た。通常の探索ではグリシンの原子数 $(10) \times 3 - 6 = 24$ 次元の空間で探索する必要があるが、今回は 3 つの水素原子からなる 3 次元の空間の探索ですべての異性体を網羅することが出来た。この方法は原理的にはどの分子にも適用可能であるので、タンパク質のフォールディング問題にも、現実的な計算コストで行える可能性がある。

論文審査の結果の要旨

申請者から提出された論文原稿について、主査及び副査の 3 名で審査を行った。本論文は分子構造及び結晶構造の計算による予測についての基盤的研究であり、将来の物性予測や高機能材料の設計、タンパクなどの多原子かつ複雑な三次元構造を持つ生体分子の機能解明などにつながる重要な内容を持つものと認められる。また、本論文について投稿論文は 3 報、いずれも信頼できる雑誌に掲載済みであり、業績としても問題ない。以上のことから、本論文は論文審査に合格したものと判定した。なお、序論への多少の内容の追加、論文題目(和文・英文)の再検討およびいくつかのタイプミスが指摘され、取り急ぎ修正することとなった。

最終試験の結果の要旨

2021 年 8 月 5 日(木)14:00 から B101 講義室にて公聴会を行った。参加者は主査副査 3 名を含む 10 名であった。スライドを用いて 30 分ほど論文内容の概要を申請者が説明した後、質疑応答を 70 分ほど実施した。多くの質問が出され、活発な議論が行われたが、申請者は的確な回答を行った。この結果を踏まえ、公聴会終了後に主査・副査 3 名で合議を行い、最終試験に合格と判定した。