



Title	Development of Automated Error Control Scheme Based on Divide-and-Conquer Method for Large-Scale Quantum Chemical Calculation [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	藤森, 俊和
Citation	北海道大学. 博士(理学) 甲第14462号
Issue Date	2021-03-25
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/81407
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	theses (doctoral - abstract and summary of review)
Additional Information	There are other files related to this item in HUSCAP. Check the above URL.
File Information	FUJIMORI_Toshikazu_abstract.pdf (論文内容の要旨)



[Instructions for use](#)

学位論文内容の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（理学） 氏名 藤森 俊和

学位論文題名

Development of Automated Error Control Scheme Based on Divide-and-Conquer
Method for Large-Scale Quantum Chemical Calculation
(大規模量子化学計算に対する分割統治法に基づいた誤差自動制御スキームの開発)

分子の構造や反応性といった様々な物理量は電子状態に支配されており、その電子状態は Schrödinger 方程式を解くことで計算できる。近年の計算機の性能向上によって ab initio 計算の適用範囲は拡大したけれども、タンパク質のような大規模系への適用は未だに困難である。通常の量子化学計算では、計算時間は系の大きさに対して急激に増加することが知られている。例えば Hartree-Fock (HF) 法や密度汎関数理論 (DFT) では、SCF 計算における対角化にかかる計算時間が系の大きさの 3 乗に比例して増加する。更に 2 次の Møller-Plesset (MP2) 法や coupled cluster (CC) 法といった post-HF 理論では、計算時間は系の大きさに対して 5 乗もしくはそれ以上に比例して増加するようになる。そのため、原子数が数千 数万にも及ぶ大規模系への適用は困難であった。

この問題を解決するために、1990 年代から系の大きさに対する計算時間が線形もしくは低スケーリングの計算手法が多く開発されるようになった。それらの手法の 1 つとして、系全体の電子状態を計算するために開発された手法がフラグメント型量子化学計算手法である。これらの計算手法では、系全体をいくつかのフラグメントに分割し、各フラグメントで計算が行われる。そして全てのフラグメントの結果を組み合わせることで、系全体の電子状態を近似的に計算できる。フラグメント型電子状態計算手法の 1 つとして、Yang・Lee によって提案され、小林・中井等によって開発されている分割統治 (DC) がある。DC 法では、各部分系 (フラグメント) は中央領域とバッファ領域の 2 つの領域で構成される。中央領域は互いに重なりなく分離している領域であり、バッファ領域は周辺環境を考慮するために各中央領域に対して加えられる。DC 法では、フラグメント化によって生じる通常法との誤差はバッファ領域の大きさを増加させることで系統的に改善できる。しかし、計算精度と計算時間を両立できる適切なバッファ領域の大きさは対象としている系に依存しているので、適切なバッファ領域の大きさを決定するためには事前評価が必要であった。そこで本研究では、誤差を自動的に制御するために、推定誤差を用いて適切なバッファ領域の大きさを決定する手法を開発した。

本学位論文は 6 つの章から構成されている。第 1 章は序論として上記で述べた内容について記した。第 2 章では、本学位論文に対する理論的背景を記した。具体的には、HF 理論と

MP2 摂動理論についてまとめた。また、DC 法を含めたいくつかのフラグメント型電子状態計算手法について説明した。

第 3 章では、DC-SCF 計算における自動誤差制御手法の開発を行った。最初に Dixon と Merz によって提案された階層型バッファ領域を導入し、階層間の密度行列変化を用いて原子当たりの 1 次のエネルギー変化を見積もる式を導出した。そして見積もった原子のエネルギー変化を基準として、DC-SCF 計算におけるバッファ領域を拡大していくことで、適切な大きさのバッファ領域を構築する手法の開発を行った。水クラスター、タンパク質、アルカン系に適用され、本手法の有効性を確認した。また、本手法は従来の DC 法と同様に線形スケールリングを達成することができた。

第 4 章では、自動誤差制御手法の DC-MP2 計算への拡張について記した。Häser 等によって提案された Atomic orbital (AO)-Laplace MP2 法の考えを用いることで、各部分系の DC-MP2 電子相関エネルギーからバッファ領域に存在する原子当たりのエネルギー変化を見積もる式を導出した。DC-MP2 計算におけるバッファ領域の大きさは DC-HF 計算におけるバッファ領域よりも小さくても DC-HF 計算と同程度の精度を与えることが報告されている。そのため、見積もった各原子のエネルギー変化を用いて DC-HF 計算におけるバッファ領域の大きさから減じることで、DC-MP2 計算における適切な大きさのバッファ領域を決定する手法の開発を行った。本手法を複数の系に適用させ、見積もりエネルギーによってエネルギー誤差を系統的に制御できていることを確認した。

第 5 章では、DC-HF エネルギー勾配計算の自動誤差制御手法の提案を行った。第 2 章で説明された自動 DC-HF 法から、1 次のエネルギー変化に対するエネルギー勾配の見積もりを導出した。小林等によって提案された DC-HF エネルギー勾配の考え方に基づいて、見積もったエネルギー勾配式における Pulay 項を構築した。また 2 電子積分の計算コストを削減するために、Hellman-Feynman 項の上限を Schwarz と Thompson の不等式を用いて構築した。上記の推定を用いて、DC-HF エネルギー勾配計算におけるバッファ領域の自動決定法を提案した。本論文では、推定 DC-HF エネルギー勾配における Pulay 項と Hellman-Feynman 項の 1 電子部分を実装し、 α ヘリックス型グリシンオリゴマー (Gly)10 に適用した。その結果、推定エネルギー勾配の最大絶対誤差 (MAXE) 及び平均絶対誤差 (MAE) は、実際の誤差の MAXE と MAE よりも小さくなる傾向があることを確認した。

第 6 章では、この学位論文についての全体の総括と DC 法の展望について記した。

以上で述べたように本研究では、DC 法における誤差の自動制御手法の開発を行った。本手法によって、これまで解析が困難であった大規模系に対して、高精度かつ高速な反応解析を行うことが可能となる。今後、本研究の成果が大規模系の反応解析及び理論的理解の促進に貢献することを期待する。