

大田原 一成 下川 信祐 新上 和正

ATR環境適応通信研究所

1. はじめに

新しい物質をデザインするにあたり、物質の安定構造を探索する問題が生じる。分子を対象とした物質のデザインでは、物性値を求めるために電子状態計算を行い、その過程で分子の平衡構造を探索することを行うが、従来の探索手法では、初期構造が平衡構造に十分に近くないと探索が成功しないことが起きる。そこで、高次元アルゴリズム^{1),2)}を採用し、任意の初期構造から、その局所領域内の平衡構造を探索する手法を適用した。その収束性について報告する。

2. 分子の平衡構造の探索と収束性

分子の平衡構造は、構成する各原子配置を動かし、分子の内部エネルギーを最も小さくするような立体構造を求めることで得られる。初期構造が平衡構造に十分に近い場合には、エネルギー最小化にNewton-Raphson法が効率が良いとされるが、新規の物質探索といった場面では、実験または経験的に知られていない構造を持つ分子を対象とするために、良い初期構造を与えることが困難となり、平衡構造の探索が成功しないことが起きる。高次元アルゴリズムは、極小値の近傍でも運動量を持つため、局所解間の障壁を越えた範囲の探索が可能になり、良い初期構造を与えられない場合の平衡構造探索に適している。高次元アルゴリズムの探索手順は、

- 1) 系の全エネルギーを、電子状態計算から求められるポテンシャルエネルギーと、各原子に与えた速度および求めた構造から計算される力から決めた運動エネルギーとの和で与える。
- 2) 運動によって各原子配置を動かすことを繰り返しながら、運動エネルギーを徐々に下げる。

ことで、局所解となる平衡構造を求める。

構造探索の各過程では、電子に対する力と構造に対する力が共に収束するまで、現在の構造の電子状態計算から求まるエネルギーによって、次に動かす構造を決めていくため、毎回の構造計算に対し、電子状態の収束計算を行うこととなり、計算量が大きくなる。一方で、電子状態の十分な収束と、構造の十分な収束を各々繰り返しても計算量は大きくなる。そこで、計算量を減らしつつ、十分な精度を持つ分子構造を得るために必要となる収束性を検討した。

構造計算に対する電子計算の頻度と、電子の収束条件を変えた場合の計算結果として、簡単な例であるニトロベンゼン分子についての結果を示す。ニトロベンゼンの平衡構造は、平面のベンゼン環に対し、ニトロ基が同一面内にあるが、ニトロ基が垂直に捻れた初期構造から平衡構造の探索を開始した。

表 1. 計算条件と収束性 ^{a)}

構造計算に対する 電子計算の頻度	電子エネルギー [eV]	2 面体角 [degree]	計算量 [arb. unit]
1/1	-1534.23801	0.4	1868
1/1	-1534.23801	0.4	1436 ^{b)}
1/10	-1534.23800	0.5	1054
1/50	-1534.23789	4.1	75
1/100	-1534.23786	4.6	75
1/1000	-1534.23786	3.0	1648
1/10000	-1534.23290	22.0	1000

a) 電子状態計算は MNDO-PM3 法を用いた。

b) 電子の収束条件を、 2×10^{-5} 、その他は 2×10^{-8} とした。

電子計算の頻度を下げるに従って構造の精度は低下するが、計算量は減少した後に、収束性が低下するために計算量は再び増加した。本例の条件中では、電子計算の頻度を 1/10 回程度にすることで、構造の精度を保ちながらも、計算量を 5 割程度に下げることが出来たが、構造計算に対する電子計算の頻度を変えると、エネルギー最小値に近い構造に到達しつつも、収束までの計算量が著しく減少するので、収束度によって段階的に電子計算の頻度を変えることが有効となる可能性がある。

3. まとめ

分子の平衡構造の探索に高次元アルゴリズムを適用し、その収束性を検討した。計算量を減らしつつ、十分な精度を持つ分子構造を求めることのできる電子状態の収束条件と構造探索計算に対する電子状態計算の頻度条件を示した。適切な計算条件により、新規物質の探索などの試行対象が多い場合や³⁾、大きな分子系の平衡構造を求める場合に、特に有効になると考えられる。

参考文献

- 1) 新上 和正, “高次元アルゴリズム”, bit, 31 (7), pp. 2-8 (1999).
- 2) 新上 和正, “高次元アルゴリズム - 問題を解く一つの方法”, 日本ファジー学会誌, 11 (3), pp. 382-395 (1999).
- 3) 大田原 一成, 下川 信祐, 新上 和正, “新物質の安定構造の探索”, 情報処理学会第 60 回全国大会, 6H-04, (2000).