

一般化超球面探索法に乗数法を適用しての構造探索

(和歌山大学システム工学部) 山門 英雄

E-mail: yamakado@sys.wakayama-u.ac.jp

筆者らはこれまで、2004 年に大野、前田により開発された超球面探索法[1]や、2010 年に大野、長田、前田により開発された一般化超球面探索法[2]を、結晶構造予測に適用し、炭素結晶[3]やイオン結晶[4]、窒化ホウ素結晶[5]、低次元 SiC [6]などについて一定の成果 (複数の多型に対応する結晶構造を自動探索できる)を得てきている。

しかし、このやり方をユニットセル中に多数の原子を含む分子性結晶などについて実行しようとする、変数が多いために非常に実行時間がかかってしまうという問題に遭遇する。そこで、この問題の解決の一助とすることを目的として、本研究では、多変数に対する探索時に、分子構造などに対応する束縛条件を後付けで加える方法の一つとして、乗数法(拡大ラグランジュ関数法とも呼ばれる)[7]を適用することを試みた。乗数法は、下りの探索(構造最適化)については数学的に確立された手法であるが、超球面探索法による上りの(遷移構造(TS)を経由した)経路探索に適用可能であるかどうかは自明ではなかったので、まず数学的モデル (Powell の等式制約最適化問題[8]) に対してその動作を確認し[9]、その後ホルムアルデヒド分子や水分子の多量体に対して、分子の相対配置探索に適用可能であることを実証した。[10]

現時点では、この乗数法を結晶構造の探索に用いることは、ペナルティ法を用いることに比べて実行速度的にメリットは無いものの、一般化超球面探索法に乗数法が適用可能であることを示したことは、超球面探索法の今後の発展・応用の広がりや寄与し、また結晶構造の予測についても、今後の新たな手法(例えばバリア法)の導入などへの足掛かりとなるものと考えている。

[1] K. Ohno and S. Maeda, *Chem. Phys. Lett.*, **2004**, 384, 277; S. Maeda and K. Ohno, *J. Phys. Chem. A*, **2005**, 109, 5742; K. Ohno and S. Maeda, *J. Phys. Chem. A*, **2006**, 110, 8933.

[2] K. Ohno, Y. Osada and S. Maeda, *Annual meeting of Japan society for molecular science 2010*, 1E15.

[3] H. Yamakado, H. Tokoyama, S. Maeda and K. Ohno, *APCTCC-4*, Port Dickson, Malaysia, 2009, abstracts, pp54.

[4] Y. Sawada, H. Tokoyama, H. Yamakado, S. Maeda and K. Ohno, *14th ICQC*, Boulder, Colorado, 2012, abstracts, IV.63.

[5] H. Tokoyama, H. Yamakado and K. Ohno, *Chem. Lett.* 2016, 45, 333-335.

[6] Y. Midoro, H. Yamakado and K. Ohno, *Annual meeting of Japan society for molecular science 2016*, 1P133.

[7] M. Hestenes, *Journal of Optimization Theory and Applications*, Vol. 4, No. 5, pp. 303-320 (1969).

[8] M. J. D. Powell, *Math. Program.*, **14**, 1978, 224.

[9] H. Yamakado, Y. Kodaya and K. Ohno, *96th CSJ Annual Meeting*, Kyoto, 2016, 2PC071.

[10] Y. Kodaya, H. Yamakado and K. Ohno, *Annual meeting of Japan society for molecular science 2016*, 2G02.