

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 李 瀚

本論文は、系のサイズ N に比例する計算量の新たな分子動力学手法の開発とその物質科学への応用、さらには機械学習による高速化を纏めたものであり、7つの章から構成されている。

第1章は序論であり、第一原理計算とくに密度汎関数理論 (DFT) 計算の物性予測能力、それらの計算手続きと計算コストが説明されている。従来手法では N の3乗に比例する計算量が必要なため、大規模系を扱う場合にはオーダー N 手法が必要であることが説明されている。

第2章では、本論文で開発された手法の基礎となる枠組みが簡潔に説明されている。DFTの基本定理と Kohn-Sham 補助系の導入、交換相関相互作用に関する近似、原子核と殻電子に対する擬ポテンシャル、原子に働く力とその局所性の解析、Kernel Ridge 回帰による機械学習法等の説明が成されている。

第3章が本論文で提唱されているオーダー N 計算手法の説明である。原子構造探索および分子動力学シミュレーションにおいて必要な物理量は原子に働く力である。その力が空間的に局所性を有しているとする、力を得るためにその原子を中心とする部分系 (補助系) を導入し、そこで得られた各原子に働く力を統合し、全系に対する構造探索、分子動力学シミュレーションを行うという手法が考えられる。従来手法の計算量が βN^3 (β : 数因子) であるのに対し、この手法の計算量は $\beta N_s^3 N$ であり (N_s : 部分系サイズ) オーダー N 手法となる。本章では、このアイデアの提示と、python コードを用いた部分系の自動抽出法、計算ノードへのタスクの割り振りが議論されている。

第4章では本オーダー N 手法の有効性の検証が成されている。力の局所性については、Si系を例にとり、部分系表面を水素終端すると、部分系サイズが 4.5\AA でも MAE (平均絶対値誤差) は 0.038 eV/\AA 、サイズを 7.5\AA にすると MAE= 0.018 eV/\AA と十分な精度が得られることが示されている。次に計算量の従来手法との比較が行われ、Si系において、500~600原子以上で本論文でのオーダー N 手法が有利となることが明らかにされている。さらにイオン性を有する SiO_2 、金属である Al について、力の誤差の部分系サイズ依存性が検証され、 SiO_2 でも Si と同様に本手法が有効であること、しかしながら Al では部分系サイズをかなり大きくとる必要があり、実際的な応用が難しいことが明らかにされている。さらに結晶 Si のフォノンスペクトルが、dynamical matrix と自己速度相関関数のフーリエ変換の二つの手法で計算され、従来の全系 DFT 計算と結果が一致することが示されている。

第5章は本オーダー N 手法の2つの物質科学ターゲットへの応用である。第1は SiC のデバイス絶縁膜 (酸化膜) 形成過程への応用である。従来手法によって明らかにされた SiC 表面上の3つの酸素原子安定吸着位置に対し、その初期構造から、今回のオーダー N 手法を用いた焼きなまし (SA: Simulated Annealing) 法により安定構造の探索が行われ、ひとつの初期構造からは、部分系サイズに依存しない構造に収束することが示されている。また3つの安定構造の相対的な全エネルギー差は、最も小さな部分系 (サイズ 4.5\AA) 計算でも従来の全系計算の結果と一致するこ

とが示されている。第 2 の応用例は、SiC 表面上のグラフェン層の構造と電子状態である。従来手法の全系計算による構造最適化、今回のオーダーN 手法による SA 法、さらにはオーダーN の SA で到達した構造からの構造最適化の 3 手法が比較され、従来手法の構造最適化では、初期構造の近傍の準安定構造にトラップされてしまうこと、今回の SA 法でよりグローバルな探索が可能となり、最終構造は全系に対する SA 法によって得られたものと本質的に同一であることが示されている。また、ターゲットサイズに対する計算コストの検証では、436 原子系と 872 原子系の間でクロスオーバーが起り、期待されたスケーリングが成立していることが実証されている。また π 電子系の切断による特異な平坦バンドが、SiC 上のグラフェンに出現することが示されている。

第 6 章では、まず、Tersoff 古典力場との混合により Si 系で 10%の高速化が達成されることが示されている。また、Kernel-Ridge 回帰法による機械学習力場構成が試みられ、記述子として原子位置が採用され、教師データの質、サンプル数、ベクトル長が吟味され、今回の簡単な記述子でも、 0.2 eV/\AA の誤差で、教師データに含まれない場合の力を再現することが明らかとなった。

以上、本研究は、物質中の各々の原子に働く力の空間的局所性に着目し、各原子周囲の部分系（補助系）を導入することによる申請者独自のオーダーN 分子動力学手法を開発し、具体的な物質ターゲットでその有用性を実証したものであり、また機械学習力場の導入による高速化の試みを行ったものである。アイデアから実装および実証まで申請者の寄与がほとんどであることも明らかである。より広範な物質群に対する有用性を向上させることが今後必要となるであろうが、大きな可能性を秘めた物質計算の新手法の提唱と言える。よって、審査委員全員一致で、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。