

次世代スパコンシンポジウム2008

分科会D 「計算科学者、計算機科学者、実験研究者
および産業の接点と人材育成」

分子科学研究所 平田文男

「ナノ統合拠点」のミッション

次世代スパコンの性能を最大限に活かしてナノ分野の「グランドチャレンジ課題」を解決する方法論およびアプリケーションの開発

ナノ分野のグランドチャレンジ課題

- (1) 次世代ナノ情報機能・材料
- (2) 次世代ナノ生体物質
- (3) 次世代エネルギー

上記のミッションの遂行を通じて

「計算科学者、計算機科学者、実験研究者および産業の接点と
人材育成」

を進める。

「ナノ統合拠点」における

「計算科学者、計算機科学者、実験研究者および産業の接点と人材育成」の取り組み

- (1) 分子科学、物性科学ワーキンググループ
計算科学者、実験研究者との連携、共同研究の推進
特に、ナノ分野の実験研究者との連携
- (2) プログラム高度化ワーキンググループ
計算機科学者(理研、筑波)と連携して、超並列に対応するプログラムの高度化を推進
- (3) ナノ設計実証
企業研究者との連携推進
- (4) 次世代ナノアプリケーション連携ツールの開発
「中核アプリ」を任意に連結してナノ分野のグランドチャレンジ課題を解決するツール群の開発
- (5) 「次世代スパコン」の有効利用に向けての取り組み
神戸センターを有効に活用するシステムの提案および人材育成

これまでの取り組みにおける成果(例)

(1) 分子科学、物性科学ワーキンググループ

セルロース分解酵素反応の実験研究者(三重大学)との共同で反応中間体(セルロース-酵素錯体内の水分子の位置)を同定することに成功

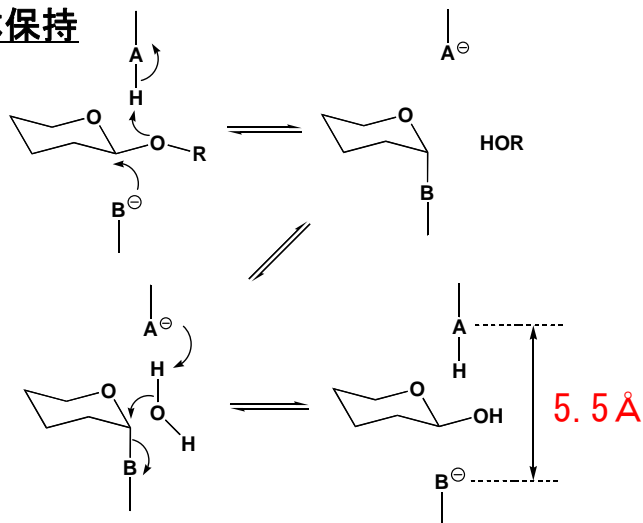
反応中間体である水分子の位置を実験的に決定することは困難であり、酵素反応設計において計算科学が有効であることを証明。

Cellulose decomposition reaction (hydrolysis)

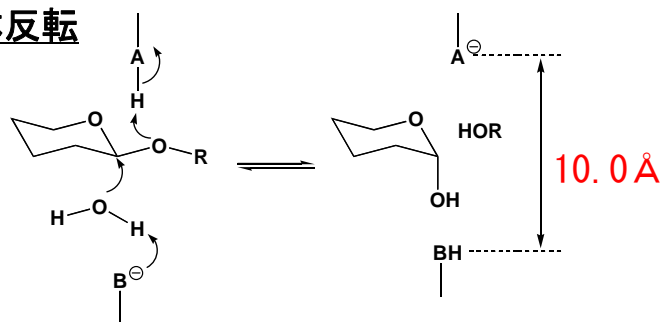
“Water is one of the substrates.”

Models proposed by X-ray

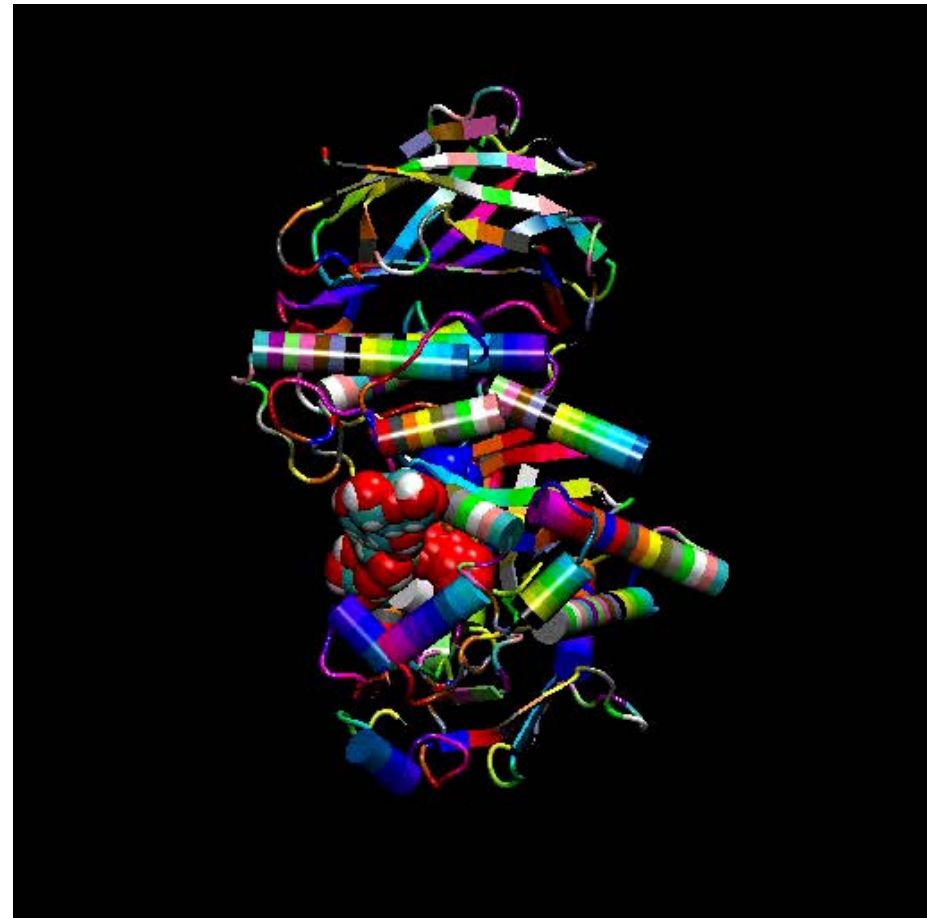
立体保持



立体反転



Position of water at in the reaction pocket is crucial. (It can not be seen by X-ray.)

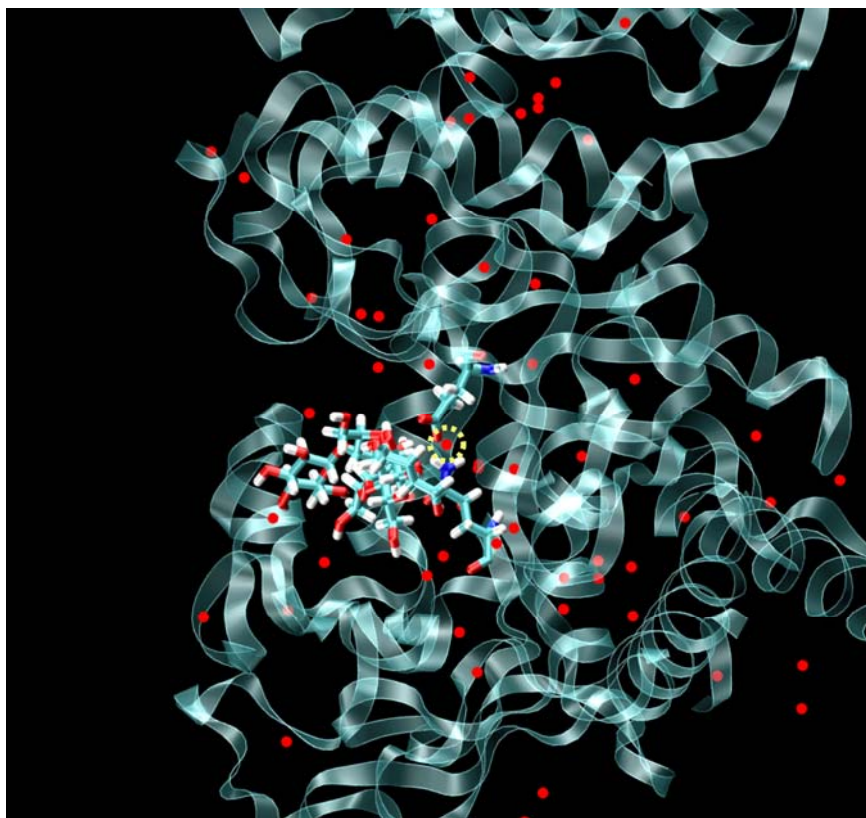


Cellulase : GH44

Cel44A catalytic module of CelJ (Cel9D–Cel44A) from *Clostridium thermocellum*

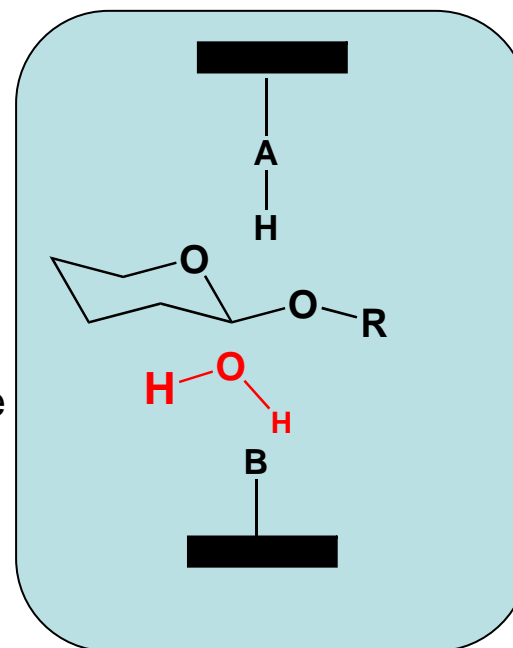
提供 (三重大学: 苅田修一准教授)

Water molecules in the protein-cellulose complex detected by the 3D-RISM method



The results from 3DRISM
blue ribbon: protein
red spheres: water molecules
(the reacting water molecule is surrounded by yellow dots.)

Blow up the
Reaction site
→



The water molecule can not be Detected by X-ray, because it Disappears due to the reaction.

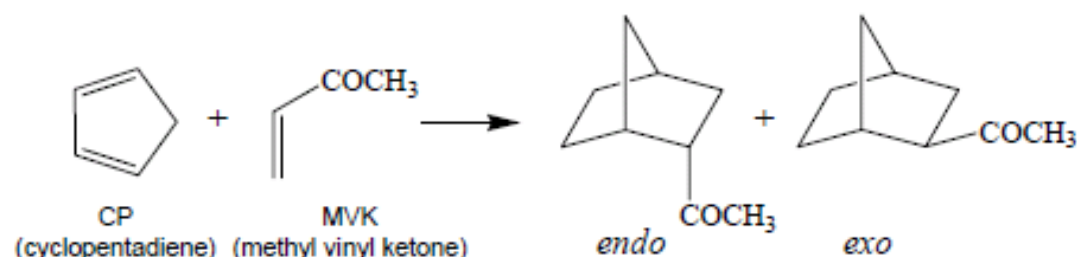
So, this corresponds to an intermediate state of the chemical Reaction.

(3) ナノ設計実証

NAREGIプロジェクトにおいて実施された企業研究者による「RISM勉強会」の成果として、企業研究者によって溶液内分子の電子状態に関わる研究が実施され、いくつかの学術的に重要な成果が生まれた。(現在、論文作成中)

このことは、一定の教育(育成)期間を設ければ、企業内研究者による「ナノ統合シミュレーション」ソフトの利用が可能であることを示唆している。

水溶液中での Diels-Alder 反応



- ✓ Diels-Alder 反応は水中で劇的に加速される (溶媒をイソオクタンから水に変えると反応速度は約740倍大きくなる)
 - 疎水相互作用により、非極性の溶質同士が接触している確率が高くなることで反応速度が増大 (hydrophobic effect)
- ✓ LiCl (hydrophobic effect を強める塩) を添加すると、水中の場合と比較して約2.5倍加速される
 - ☞ LiCl の効果を RISM 法で表現できるか？

D.C. Rideout and R. Breslow, *J. Am. Chem. Soc.* 1980, 102, 7816.
 R. Breslow, U. Maitra and D. Rideout, *Tetrahedron Lett.* 1983, 24, 1901.
 R. Breslow and U. Maitra, *ibid.* 1984, 25, 1239.
 P.A. Grieco, P. Garner and Z. He, *ibid.* 1983, 24, 1897.
 P.A. Grieco, K. Yoshida and P. Garner, *J. Org. Chem.* 1983, 48, 3137.
 J.F. Blake and W.L. Jorgensen, *J. Am. Chem. Soc.* 1991, 113, 7430.
 Y. Harano, H. Sato, and F. Hirata, *Chem. Phys.* 2000, 258, 151.

Table I. Rate Constants for Diels-Alder Reactions

solvent	additional component	$k_2 \times 10^3, \text{M}^{-1} \text{s}^{-1} \text{a}$
(a) Cyclopentadiene + Butenone, 20 °C		
isooctane ^b		5.94 ± 0.3
MeOH		73.5
H ₂ O		4400 ± 70
H ₂ O	LiCl (4.86 M)	10800
H ₂ O	C(NH ₂) ₂ Cl ^c (4.86 M)	4300
H ₂ O	β-cyclodextrin (10 mM) ^{d, f}	10900
H ₂ O	α-cyclodextrin (10 mM) ^{d, f}	2610
(b) Cyclopentadiene + Acrylonitrile, 30 °C		
isooctane ^b		1.9
MeOH		4.0
H ₂ O		59.3
H ₂ O	β-cyclodextrin (10 mM) ^{d, f}	537
H ₂ O	α-cyclodextrin (5 mM) ^{d, f}	47.9
(c) Anthracene-9-carbinol + N-Ethylmaleimide, 45 °C		
isooctane ^b		796 ± 71
1-butanol		666 ± 23
MeOH		344 ± 25
CH ₃ CN		107 ± 8
H ₂ O		22600 ± 700
H ₂ O	β-cyclodextrin (10 mM) ^e	13800

^a Second-order rate constants. All data are the result of at least three runs at a given set of concentrations; error limits are given for cases in which triplicate runs were performed at more than one dienophile concentration. ^b 2,2,4-Trimethylpentane, >99% pure. ^c Initial conditions: cyclopentadiene (0.4 mM), butenone (10 mM). ^d Initial conditions: cyclopentadiene (0.4 mM), acrylonitrile (200 mM). ^e Initial conditions: anthracene-9-carbinol (0.03 mM), N-ethylmaleimide (1.0 mM). ^f The reactions were actually performed with 1 mol % of methanol and small amounts of HCl or formate buffer present; these had no effect on the reaction rate in pure water.

D.C. Rideout and R. Breslow, *J. Am. Chem. Soc.* 1980, 102, 7816.

LiCl水溶液中の Diels-Alder 反応

水中およびLiCl水溶液中の活性化自由エネルギー(単位: kJ mol⁻¹)

	水中	LiCl 水溶液		
		0.1 M	0.5 M	1.0 M
<i>endo-cis</i>	84.1	83.3 (-0.8)	82.3 (-1.8)	81.0 (-3.2)
<i>endo-trans</i>	72.0	71.3 (-0.7)	70.4 (-1.6)	69.1 (-2.9)
<i>exo-cis</i>	93.7	93.0 (-0.7)	92.0 (-1.7)	90.7 (-3.0)
<i>exo-trans</i>	76.8	76.4 (-0.4)	75.5 (-1.4)	74.2 (-2.6)

1D-DRISM-SCF/KH (GAMESS-RISM Apr 2007 ver.)

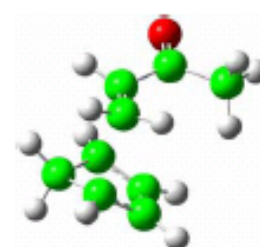
気相中の構造(HF/6-31G(d))で、RISM-SCF計算(MP2/6-31G(d))

溶媒のLJパラメータは前ページと同じ; 溶質のLJパラメータはOPLSAを使用

()内は、水中での活性化自由エネルギーとの差

- 活性化自由エネルギーがもっとも低いのは、水中、LiCl水溶液中のいずれも *endo-trans* (気相中も同じ)
- LiClを添加することによって、いずれも活性化自由エネルギーは低下する(1.0Mで約 3 kJ mol⁻¹)
- LiCl水溶液中での構造計算を行ってみたが、収束しなかった (gradientが大きいまま cycle over)

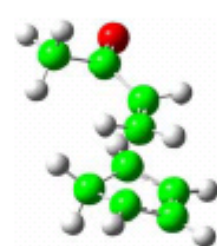
遷移状態の構造(気相中)



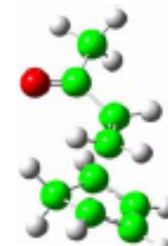
endo-cis



endo-trans



exo-cis



exo-trans

(2) プログラム高度化ワーキンググループ

筑波大学(計算センター)、理研、計算機メーカーとの共同により、従来不可能だと看做されていた3D-RISMプログラムの高並列化に見通しが出て来た。特に、このプロセスで筑波大学の計算機科学者(情報科学者)の専門性が重要な役割を果たした。他のプログラム高度化の教訓になり得る。

重要なポイント:

筑波大学の計算機科学者が3D-RISMプログラムの高並列化を自らの研究テーマとして取り組んでいること。

ナノ分野グランドチャレンジ課題

次世代ナノ情報機能・材料

次世代ナノ生体物質

次世代エネルギー



次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェア (最終年度版)

連携ツール
GIANT, IGNITION

- ・ナノ分野グランドチャレンジをカバー
- ・ナノ分野計算科学の学術基盤の形成

- ・電子・原子・分子から出発した最先端の理論・方法論
- ・高度並列化アルゴリズム、ソフトウェア
- ・任意のソフトの任意な結合・連成

付加機能ソフト

オーダーN密度汎関数計算法

混合基底軌道
第一原理計算

リカーシーブグリーン関数法

有向ループアルゴリズム

溶媒和
自由エネルギー計算

静電場下での電子状態、
エネルギー・応力密度、
誘電率の一次元分布の計算

マルチカノニカル法

有限要素法

フラグメント分子軌道法

正準変換理論

合金内部組織
マルチスケールシミュレータ

量子モンテカルロ法

動的平均場法

高精度高速
自由エネルギー計算

界面和周波発生
分光スペクトル計算

ナノスケール系量子伝導計算

実空間 Keldysh
グリーン関数計算

電子スピン共鳴解析ソフト

二次のMøller-Plesset
摂動法

Surface-Hopping法

時間依存密度汎関数法

変分モンテカルロ法

厳密対角化法

配置間相互作用法

金属錯体の
有効ポテンシャル計算

実空間
第一原理
ナノ物質
シミュレータ

動的
密度行列
繰り込み群法

大規模並列
量子
モンテカルロ法

高並列汎用
分子動力学
シミュレーション
ソフト

RISM/
3D-RISM

高速
量子化学
計算ソフト

中核アプリケーション

方法論開発・超並列化によりペタフロップス級性能を実現

連携ツール(IGNITIONとGIANT)

IGNITION

中核アプリ等の初期入力データの生成

入出力、実行の利便性の確保

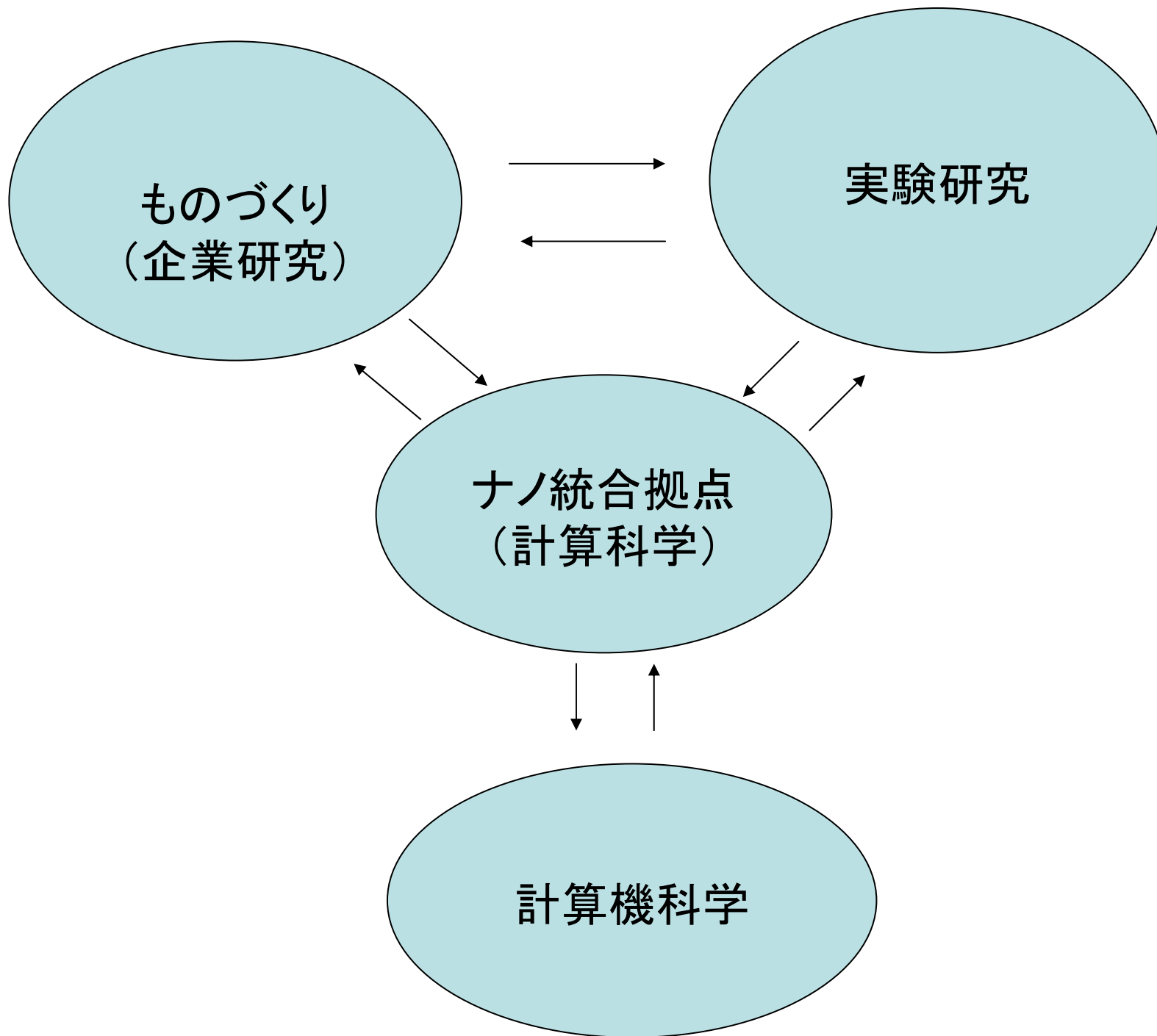
- 計算条件の手動入力の簡易化
- ナノスケールの複雑な構造情報の自動生成
- 多様なユーザレベルに対応

GIANT

アプリケーション間データ変換ツール

ナノに対する多様な理論・方法論の相互連携

- 任意のソフト(中核アプリ、付加機能ソフト)の任意な結合が容易に実行可
- バイナリー市販プログラムも組み込み可
- 計算結果の可視化、解析の自動化



実験研究者からの計算科学への期待:

潮田資勝(物材機構)、青野正和(物材機構)、栗原和枝(東北大学)

産学の連携

高田 章(旭硝子中研)、兵頭志明(豊田中研)、金田千穂子(富士通)

計算機科学と計算科学の連携

佐藤三久(筑波大計算センター)、押山(東大工)

ナノサイエンス分野における人材育成

岡崎 進(名古屋大)

「計算科学者、計算機科学者、実験研究者 および産業の接点と人材育成」

- (1) 実験研究と計算科学の連携および人材育成をいかに推進すべきか？
- (2) 「産」と「学」の連携および人材育成をいかに推進すべきか？
それぞれの課題？
- (3) 計算科学と計算機科学の連携および人材育成をいかに推進すべきか？