

TSUBAME 共同利用 平成30年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 ソフトクリスタル機能物性解析のための計算科学技術の開発

英文: Development of Computational Science and Technology for Functional Property Analysis of Soft Crystals

利用課題責任者

後藤仁志

所属

豊橋技術科学大学 情報・知能工学系

<http://www.cs.tut.ac.jp/>

ソフトクリスタルは、蒸気にさらず、擦るなどの低エネルギー刺激によって結晶構造が遷移することで、主に発光や光学特性などの機能物性が変化する新奇物質群である。その準安定構造や結晶多形間の遷移を制御することによって、これまで存在しなかった革新的な物質機能を創造することが期待されている。本課題では、こうしたソフトクリスタル現象の機能物性を解析するための基盤となる計算科学技術を開発する。特に、TSUBAME の特徴である GPU を活用し、機械学習による分子レベルでの物性解析、大規模構造データベースを用いた経験的ポテンシャルの開発、および立体配座や結晶多形データベースの自動構築とそこから得たビッグデータ解析を検討する。

Soft crystals are novel substances in which functions such as light emission and optical properties can be changed by phase transition of crystal structure with low energy stimulations. By controlling the crystal phase transition between stable and metastable crystal polymorphs, it is expected to create innovative material functions. In this work, we try to develop new computational techniques as a basis for analyzing the functional properties of such soft crystals' phenomena. In particular, using GPUs, the characteristics of TSUBAME, we expected to develop the materials' property analysis in molecular level by machine learning techniques, empirical crystal energy potentials using large scale structural database, and automatic construction of conformational and lattice polymorph database.

*Keywords: Crystal Structure Prediction, Dynamic Reaction Coordinate Analysis of Soft Crystal, Vapochromism, Mechanochromism, Superelasticity*

## 背景と目的

「ソフトクリスタル」は、蒸気にさらず、擦るなどの特定の弱い刺激によって『堅い』結晶構造が容易に別の結晶構造に相転移し、発光や光学特性などを変化させる新しい機能性物質である[1,2]。それらの多くは有機金属錯体等の分子性結晶であり、そうした興味深い「ソフトクリスタル現象」の多くは、粘り強く観察を続けた日本人研究者のセレンディピティによるものと言ってよいだろう[2]。最近では、その準安定状態や相転移を制御することによって、これまでにない革新的な機能を創生することが期待されている。我々はこの新奇物質群の結晶生成や相転移現象の学理を明らかにするために、理論に基づく計算解析技術として、有機金属錯体が形成する結晶構造を評価できる結晶力場の開発[3]、観測されていないが存在し得る準安定な結晶多形構造を見つけ

る結晶構造予測技術、および相転移プロセスを解析する動的反応座標解析法の確立を目指し研究を進めている[1]。特に、ソフトクリスタルの動的現象の解明には、秩序を維持しながら変位する動的プロセスを再現できる分子間相互作用の精緻化と、アモルファス系を考慮した新しい結晶シミュレーション技術が必要である。

本共同利用課題は、こうしたソフトクリスタル現象の解明に向けた学理解明に要請されている、より高度な様々な結晶シミュレーション技術を開発するための基盤研究として位置づけている。特に、TSUBAME の特徴である GPU を活用し、機械学習による分子レベルでの物性解析や経験的ポテンシャルの導出、および立体配座や結晶多形データベースの自動構築とそこから得たビッグデータの解析などを検討している。

## 概要

分子性結晶は、高精度な第一原理計算を適用できる孤立分子や、分子動力学シミュレーションによってマクロな構造変位を明らかにできる溶液系やアモルファス分子集合体とは異なり、比較的単距離な分子間ネットワークで形成される高密度秩序から、比較的広範囲に渡る並進対称性を維持している。

当初、我々は、孤立分子系や数量体の分子会合系に対する高精度な第一原理計算の結果を参照して開発された古典力学に基づく結晶力場によって分子間相互作用にかかる演算時間を短縮し、より長距離まで分子間相互作用を考慮すれば、結晶計算の高速性能と精度を改善できると考えていた。しかし、結晶の秩序性は高密度分子接触から維持されるため、孤立分子系や数量体の分子会合系とは異なる状態までを十分に考慮する必要があることが分かってきた[4]。また、ソフトクリスタル現象として発見された分子性結晶の大きな構造変位を追跡するためには、分子動力学シミュレーションにおける計算セルに相当する結晶格子を適切に制御し、かつ積極的に変異させることも、重要であることが分かってきた[5]。

現在、このようないくつかの知見に基づき、新たなアプローチを開始している。そして、古典分子力場計算であっても結晶計算に要求される演算性能は高く、課題解決のためにはさらに強力な計算機が必要となったことから、平成 31 年 1 月から TSUBAME の共同利用を開始した。現在、いくつかの成果が得られたところである。

## まとめ、今後の課題

弱い外部刺激によって結晶構造が変化する分子性結晶であるソフトクリスタルが示す新奇現象の学理を明らかにするため、新しい結晶シミュレーション技術の開発に取り組んでいる。TSUBAME の共同利用によって、その基盤技術の開発に繋がる成果が得られつつある。

尚、本研究の一部は、JSPS 科研費(17H06373)の支援を受けて実施している。

## 参考文献

- [1] 新学術研究:「ソフトクリスタル—高秩序で柔軟な応答系の学理と光機能」, <https://www.softcrystal.org/>
- [2] “Soft Crystals: Flexible Response Systems with High Structural Order”, Masako Kato, Hajime Ito, Miki Hasegawa, Kazuyuki Ishii, Chem. Eur. J., 25(20), 5105-5112. doi: 10.1002/chem.201805641
- [3] “Soft Crystal Force Field for Reproducing the Crystal Structures of Aryl Gold Isocyanide Complexes”, Nakayama, N.; Obata, S.; Hori, Y.; Goto, H.; Seki, T.; Ito, H. J. Comput. Chem. Jpn. 2018, 17, 155-157. doi: 10.2477/jccj.2018-0031
- [4] 「高精度量子化学計算に基づく分子間ポテンシャルに関する考察」, 濱田信次, 宮下真人, 都築誠二, 下位幸弘, 小畑繁昭, 中山尚史, 後藤仁志, 日本コンピュータ化学会 2019 春季年会, 2019 年 6 月, 東京工業大学 (大岡山キャンパス), 2P13.
- [5] 「ソフトクリスタルの結晶計算と多形転移解析の技術考」, 後藤仁志, 日本化学会 第 99 春季年会, 2019 年 3 月, 甲南大学 (岡本キャンパス), 4S2-15.