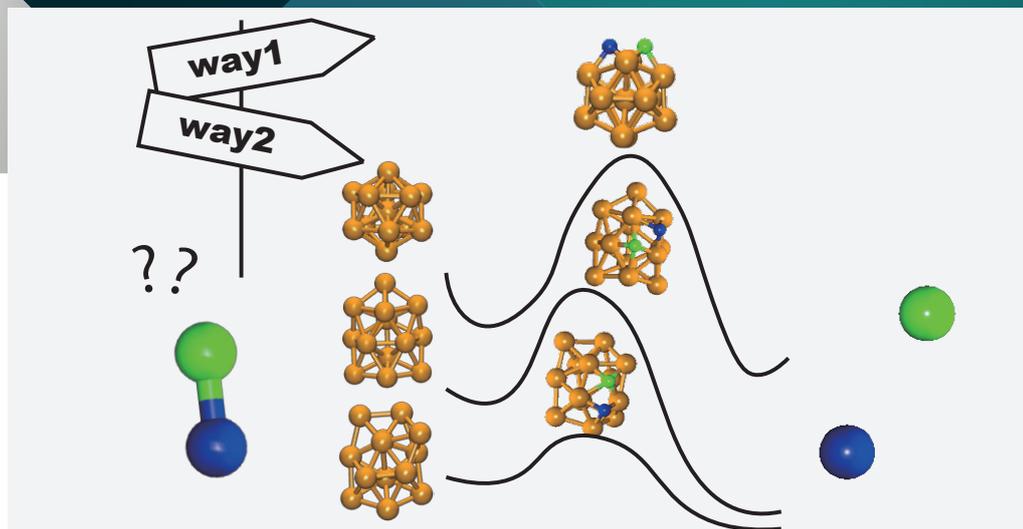


量子化学計算とデータサイエンスの 融合により、革新的な触媒開発への 道を拓く知見を創出

Your
Trusted,

technology and solution advisor.

SOLUTION
Report



北海道大学
HOKKAIDO UNIVERSITY



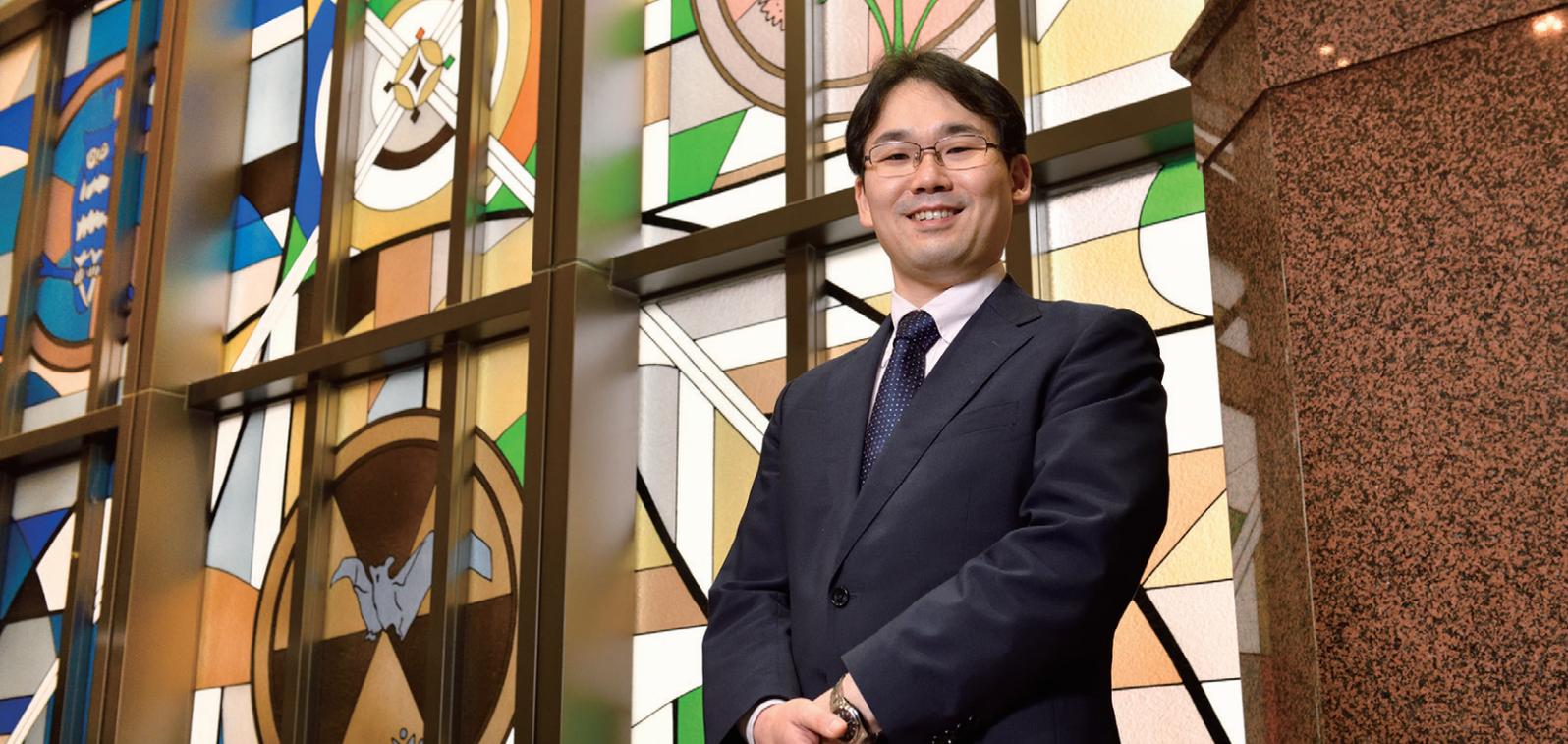
北海道大学 化学反応創成研究拠点

北海道大学 化学反応創成研究拠点 (ICReDD)

北海道大学 化学反応創成研究拠点(ICReDD)は、文部科学省が主導する「世界トップレベル研究拠点プログラム(WPI)」の一環として2018年10月に設立された。計算科学を中心に、情報科学、実験科学の3分野を融合し、「化学反応創成学」というひとつの研究領域を確立することを目指しており、触媒や材料に代表される革新的な化学物質を高速かつ効率的に開発する技術が世界から注目されている。北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 准教授でありICReDDに参画している小林正人氏は、量子化学計算に「ハイスループット化」の手法を適用し、これに「データサイエンス」を融合させる独自のアプローチで触媒開発の困難な課題を着実に解決へ導こうとしている。

- POINT 01 ● 社会を変えるような革新的な触媒の高速開発
- POINT 02 ● 量子化学計算のトレンドは「ハイスループット化」へ
- POINT 03 ● 金属ナノクラスター触媒の活性化エネルギー回帰
- POINT 04 ● 表面吸着モデル計算データベースの構築とその不均一触媒活性予測への応用
- POINT 05 ● インテル® Xeon® スケーラブル・プロセッサ搭載サーバーを100台導入

intel®



北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 准教授 北海道大学 化学反応創成研究拠点(WPI-ICReDD)准教授 小林 正人 氏

POINT 01 ▶ 社会を変えるような革新的な触媒の高速開発

化学反応を意図通りに制御し、反応開発を高速化し、社会を変えるような革新的な化学物質を開発する——その実現に向けて、計算科学・情報科学・実験科学という3分野の研究者の英知を結集させたのが、北海道大学 化学反応創成研究拠点(ICReDD)である。触媒や電池など様々な新素材として利用される化学物質は、人類を豊かにするだけでなく、エネルギー・資源や汚染といった課題の解決への応用も期待されている。北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 准教授の小林正人氏は次のように話す。

「実験的なトライアンドエラーに頼った反応開発から脱却し、これを劇的に高速化・短期間化するための科学の確立が求められています。ICReDDは、『化学反応創成学』という融合研究を行うWPIの中でもユニークな拠点として、産学連携を含めた活動でこの分野をリードしています」

小林氏は、JSTさきがけにおける「マテリアルズ・インフォマティクス」の基盤技術構築、京都大学触媒・電池元素戦略研究拠点(ESICB)における「触媒・電池の元素戦略研究」、パスト京の重点課題となった「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」などで成果を積み重ね、2019年よりICReDDに参画している。

「『物質の構造や性質・反応を、計算機を使って予測したい』という思いが、研究者としての私のスタート地点であり、今も変わらない立脚点です。2010年代前半までは、大規模で高精度な量子化学計算を効率的に実行することができる独自の『分割統治(DC)法』の開発に特に注力してきました」(小林氏)

小林氏が開発してきたソフトウェアは、ソースが無償で入手できる量子化学計算分野のデファクトスタンダードである「GAMESS」に実装され、2009年から利用可能となっている。

「2014年に北海道大学に移ってからは、DC法などの計算手法の開発と合わせて、触媒開発の困難な課題を量子化学計算とデータサイエンスで解決する研究にも取り組んでいます。化学反応の経路を自動探索する革新的なソフトウェア『GRRM』を活用し、『ハイスループット計算』のアプローチでデータベースを構築。これに統計的な解析手法を組み合わせ、触媒反応の活性予測、活性因子の特定を目指しています」(小林氏)

“量子化学計算で得られる結果を記述子として実験結果を回帰することに成功しました。この研究をさらに進めることで、量子化学計算を活用した高性能な材料・触媒予測が可能になる日も遠くはないでしょう。量子化学計算は新しい活用へ、新しいステージに立とうとしていることを日々実感しています”

— 北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 准教授 北海道大学 化学反応創成研究拠点(WPI-ICReDD)准教授 小林 正人 氏

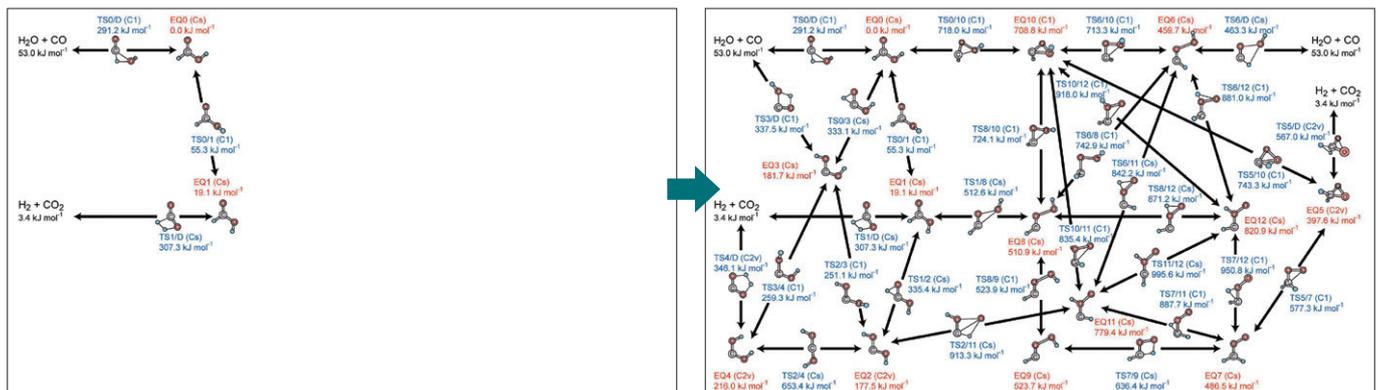
POINT 02 ▶ 量子化学計算のトレンドは「ハイスループット化」へ

量子化学計算は、アルゴリズムと計算機の進化とともに「大規模化」「高精度化」へと向かってきたが、小林氏はこれに「ハイスループット化」を加えた3軸で研究を進めているという。

「ハイスループット計算を平易に言うなら、『膨大な数の計算対象から、膨大な量の計算結果を得るアプローチ』となります。具体例としては、量子分子動力学によるシミュレーション、配座探索、反応経路探索などがあります。ハイスループット計算で得られた結果をデータベース化し、データサイエンスを活用して統計的に解析することにより、たとえば分子の静的な状態だけでなく、分子の動きや反応の流れを追うことができるようになりました」(小林氏)

ICReDDの中心的なテーマに、「人工力誘起反応(AFIR)法」を使った化学反応経路ネットワークの探索がある。これを起点に、新しい化学反応の合理的な設計と高速開発を目指す先端研究が進められている。ここで利用される反応経路自動探索ソフトウェア「GRRM」は、北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 教授であり、ICReDD 拠点長を務める前田理氏が開発した。

「GRRMを使った反応経路探索は典型的なハイスループット計算です。GRRMを使うことで、計算研究者が自身の判断で探索した重要反応経路だけでなく、本人の恣意性を超えて反応経路地図全体が明らかになります。このようにして得られたグローバル反応経路地図にデータサイエンスを適用して条件を絞り込むことで、実験段階での試行錯誤を解消し化学反応の開発を大幅に高速化できるのです」(小林氏)



(ギ酸の反応経路を例に示す。左は計算者が探索した反応経路、右はGRRMが描き出したグローバル反応経路地図)

POINT 03 ▶ 金属ナノクラスター触媒の活性化エネルギー回帰

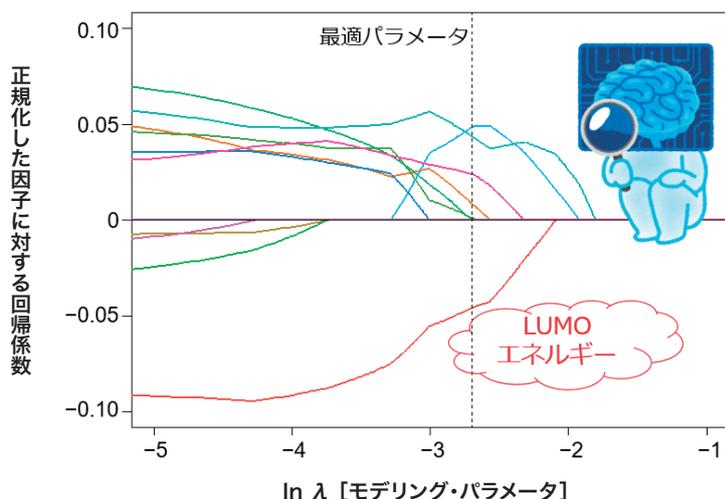
小林氏がGRRMを活用した成果のひとつに「金属ナノクラスター触媒の活性化エネルギー回帰」をテーマにした研究がある。GRRMで得られた遷移状態構造データ群に対し、データサイエンスの手法のひとつ「スパースモデリング」を用いて触媒活性因子を抽出するチャレンジである。スパースモデリングは、「解析したいもの(目的変数)の全体像が、多数の記述子(説明変数)候補のうち、一部の重要なものだけを用いて表現できる」と考え、記述子の選択と目的変数の数式化を同時に実行する手法だ。

「10個ほどの原子で構成される『金属ナノクラスター』の触媒活性について調べました。原子の数が非常に少ないクラスターは、一般的な金属で起こる反応とは全く異なる性質を示すため、新規触媒として大きな可能性を秘めています。触媒の活性が変わる要因には、構成元素、サイズ(原子の数)、電荷、担体などがありますが、私たちのグループでは『サイズが同じでもクラスターの形状で触媒の活性が変わる』ことを発見しました」(小林氏)

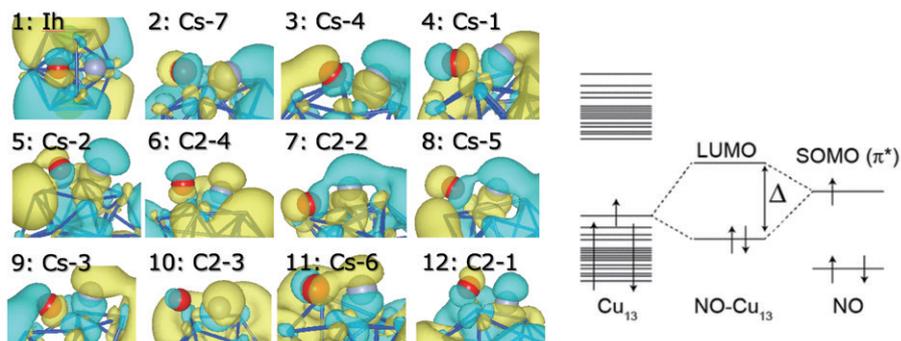
この「構造異性体依存性」の発見は画期的だったが、小林氏の研究チームはさらにその先を目指した。銅ナノクラスター(Cu₁₃)を触媒としたNO分子の解離反応を採り上げ、GRRMで得られた遷移状態構造データベースに対し、スパースモデリングを用いて触媒活性の決定的因子の解明に取り組んだのである。

「手順としては、まずGRRMプログラムでNO解離の反応経路を探索し、NO解離に対する12個の遷移状態構造を得ました。これらに対してスパースモデリング(LASSOやMC+)を用いたデータ解析を行った結果、LUMO(最低空軌道)のエネルギーが大きな負の相関を示していることが確認できました。12個すべてのTSに対してLUMOの形を可視化すると、LUMOがなぜ重要であったのか、その理由が明快にわかります」(小林氏)

LUMOはNO分子では一電子しか占有されていない反結合性 π 軌道の特徴を示している。NOと銅クラスターの相互作用が大きい、すなわち触媒作用が大きくなると、相互作用により分裂したLUMOのエネルギーが上がる。データサイエンスで得られた結果を化学理論の言葉できちんと説明できることを示した成果である。このように、スパースモデリングによる解析は、量子化学計算の結果をどのように解釈すればよいか、その指針としても活用できる。



(NO解離活性化エネルギーに対してスパースモデリングを適用して得た活性因子 [1].)



(左) 12個の遷移状態構造に対するLUMOの形状。NO分子の反結合性 π 軌道に由来する軌道であることがわかる。
 (右) 分子軌道ダイアグラムによる解釈。分裂したNOの一電子占有軌道(SOMO)のうち電子に占有されていない方は、Cuクラスターの非占有軌道(伝導帯)よりもエネルギーが低くなるため、LUMOのエネルギーの高さがNOとCuクラスターの相互作用の大きさに対応する [1].)

[1] T. Iwasa, T. Sato, M. Takagi, M. Gao, A. Lyalin, M. Kobayashi, K.-i. Shimizu, S. Maeda, and T. Taketsugu, J. Chem. Phys. A 123, 210 (2019).

もう一つの小林氏の研究「表面吸着モデル計算データベースの構築とその不均一触媒活性予測への応用」は、水素エネルギー開発という大きなテーマを見据えたものだ。現在、製造設備として実用化されているニッケル触媒よりも、低温・低圧で水素を製造できる効率の良い触媒の開発につながる研究である。

「メタン水蒸気改質反応に求められる不均一触媒の活性は、表面構造やドーピング、欠陥などの触媒そのものの状態に加え、担体、助触媒、温度などの多くの条件によって変化します。これらの影響の一つひとつに対して、量子化学計算によるシミュレーションでメカニズムを解明することは不可能ではありませんが、すべての条件を考慮したシミュレーションはとても現実的とは言えません」と小林氏は話す。

影響のすべてを取り込んでシミュレーションを実行し、触媒性能を総合的に評価することは世界最高性能のスパコンを使ったとしても難しいという。

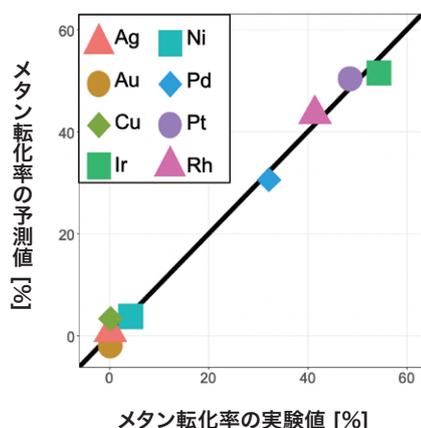
「そこで私たちは発想を転換しました。量子化学計算は、理想的にモデル化した金属表面に対する反応物・中間体の吸着構造・吸着電子状態をデータベース化する役割に徹し、データサイエンスによって反応解析や触媒探索に利用する方法を考え出したのです」(小林氏)

小林氏はデータベース構築のために、SIESTAプログラムを使用してほぼ自動的に系統的な量子化学計算を行うスクリプトを開発した。小林氏は次のように続ける。

「研究室で構築している表面吸着計算データベースから記述子を構築し、単一の論文で示されているメタン水蒸気改質反応の転化率を目的変数としてスパースモデリングによる解析を行いました。実験と計算のデータベースを相互に利用し、スパースモデリング(MC+)により、触媒活性と大きく相関する活性因子の推定を行ったことがポイントです」

この取り組みでは、炭素二原子(C₂)の吸着エネルギーがメタンの水蒸気改質反応の転化率と大きく相関する最も重要な因子であることが明らかになった。

「しかし、炭素を2原子以上含む分子はメタンの水蒸気改質反応の反応式には現れないので注意が必要です。実験的には、炭素の析出により本来のメタン水蒸気改質反応が阻害されることが報告されています。量子化学計算とデータサイエンスの点からも、炭素の析出がメタン水蒸気改質反応に大きく影響していることを示したものであると私は考察しています。また、このデータベースは今回のメタン水蒸気改質反応だけに利用されるものではありません。吸着分子の種類を増やしていくことにより、幅広い不均一触媒へと応用を広げることができると期待しています」(小林氏)

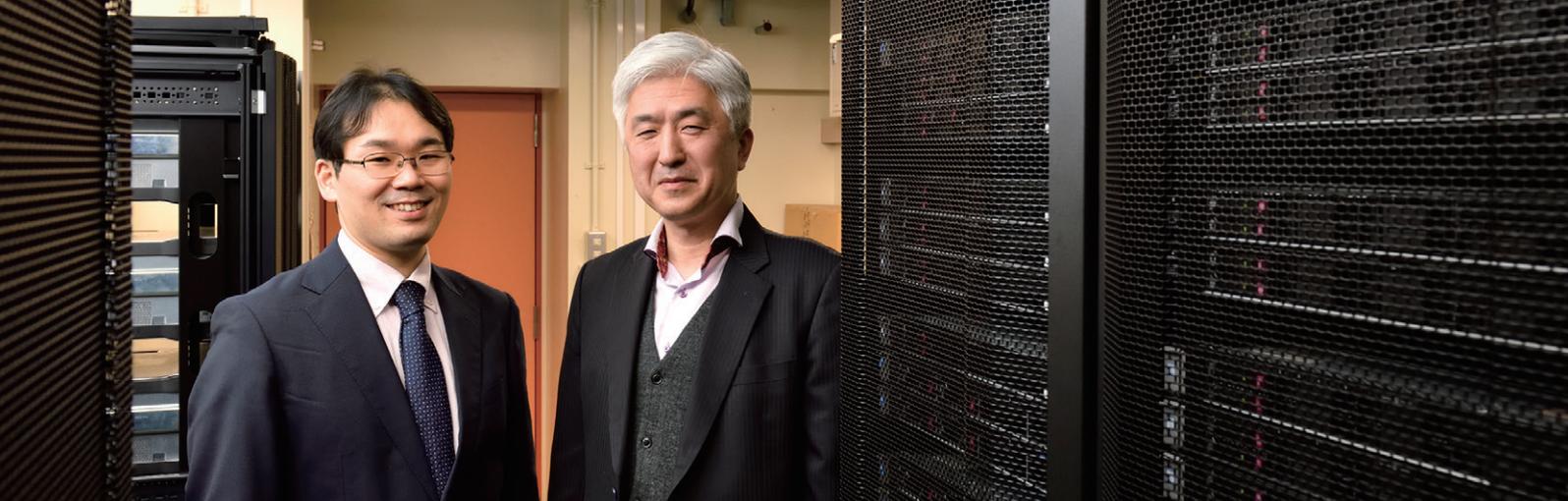


選択された説明変数 (回帰係数)

- (111)面C₂吸着 エネルギーMax (-26.54)
- (111)面C₂吸着 表面高さMin (8.83)
- (111)面CH吸着 C電荷標準偏差 (-1.40)

(表面吸着計算データベースの記述子を用いてMC+法により予測されたメタン水蒸気改質反応の転化率と実験値との相関。スパースモデリングで選択された記述子は、メタン水蒸気改質反応自身には直接関与しないC₂分子の吸着エネルギーであった[2].)

[2] M. Kobayashi, H. Onoda, Y. Kuroda, and T. Taketsugu, J. Comput. Chem. Jpn. 18, 251 (2019).



写真右は、北海道大学 大学院理学研究院化学部門 量子化学研究室 教授
化学反応創成研究拠点 (WPI-ICReDD) PIの武次徹也氏

POINT 05 ▶ インテル® Xeon® スケーラブル・プロセッサ搭載サーバーを100台導入

小林氏の研究室では、2021年1月までに100台規模のHPE ProLiant DL360 Gen10サーバーを導入した。インテル® Xeon® Gold 6136 プロセッサ(24.75M キャッシュ/3GHz)を2CPU/24コア搭載する高性能サーバーである。



HPE ProLiant DL360 Gen10サーバー

「ハイスループット量子化学計算を高速化するために、最適な構成を慎重に検討しました。最も重視したのはCPUのコア数とクロック数のバランスです。シネックスジャパンの技術者からの情報を参考にすることで、結果として非常にコストパフォーマンスに優れた計算機システムを構築できたと思っています」(小林氏)

研究室では、GRRMをはじめGaussian、Turbomole、SIESTAなど様々なプログラムを利用している。最も多くの計算リソースを使うのは、膨大な件数の量子化学計算を実行してデータベースを拡充させる工程だ。100台規模のサーバーによる計算結果は、ファイルサーバーに次々と自動格納されていく。

「私たちが取り組んでいる触媒開発のための量子化学計算では、クラスター型並列計算機よりも高性能サーバー1台に1つの計算を割り当てる方法が合理的です。膨大な数の計算対象から、膨大な量の計算結果を得るハイスループット計算だからこそ100台という規模が必要で、サーバーCPUの選定にもこだわったのです」(小林氏)

実験よりも安価に豊富な計算リソースを利用できるようになった現在、ハイスループット量子化学計算+データサイエンスは、ひとつの大きな潮流になりつつある。研究室では、若い研究者たちによる新しい着想でGRRMを活用するチャレンジも始まっているという。小林氏は次のように話して締めくくった。

「今回の取り組みでは、量子化学計算で得られる結果を記述子として実験結果を回帰することに成功しました。この研究をさらに進めることで、量子化学計算を活用した高性能な材料・触媒予測が可能になる日も遠くはないでしょう。量子化学計算は新しい活用へ、新しいステージに立とうとしていることを日々実感しています。今後は、計算と実験を融合させた領域にも挑戦していく考えです。シネックスジャパンには、計算機の専門家として私たちの研究を支え続けてくれることを期待します」

Intel、インテル、Intel ロゴ、Ultrabook、Celeron、Celeron Inside、Core Inside、Intel Atom、Intel Atom Inside、Intel Core、Intel Inside、Intel Inside ロゴ、Intel vPro、Itanium、Itanium Inside、Pentium、Pentium Inside、vPro Inside、Xeon、Xeon Phi、Xeon Inside、Intel Optane は、アメリカ合衆国および / またはその他の国における Intel Corporation またはその子会社の商標です。

●お問合せ・お見積りは下記までお願い致します。



シネックスジャパン株式会社

Email : pr@synnex.co.jp

※掲載されている社名又は製品名は、各社の商標又は登録商標です。

©2021 SYNNEX Japan Corp.