

# 情報・データ科学との連携・融合による 物性物理・量子化学の新展開

1st AICS materials informatics school, March 22-23, 2017 Kobe, Japan

## 開催趣旨

計算科学研究機構に設置されている「京」コンピュータを始めとした大規模並列計算機による材料設計は、今後の科学技術の発展に対して非常に重要な研究課題の一つとなっています。今回、大規模並列計算機の利用によって今後の材料設計を含む物性・量子化学分野の発展に寄与することが期待されている分野の一つである「機械学習」に焦点を当て、当該分野で活躍されている研究者の方々を講師としてお招きしました。本研究会では以下のような話題に関して、基礎的事項のレクチャーから最近注目を集めている研究課題への応用までの話が展開される予定です。皆さまのご参加をお待ちしております。

- 深層学習・ボルツマン機械学習
- スパースモデリング
- 材料設計への応用（マテリアルズインフォマティクス）
- 量子多体系のためのシミュレーション手法への応用
- 実験データ解析への応用

## 日時・場所

- **開催日時**：2017年3月22日 10:00 - 17:40、23日 10:00 - 17:00
- **開催場所**：理化学研究所計算科学研究機構  
兵庫県神戸市中央区港島南町7-1-2
- **会場**：計算科学研究機構 1階セミナー室
- **参加費**：無料
- **定員**：80名程度

※本研究会はワークショップ「2nd Kobe workshop for material design on strongly correlated electrons in molecules and materials」（3月22-25日@理研AICS）の一部として開催されますが、国内会議であり講演はすべて日本語で行われます。

## 主催・共催

---

- **主催**：理化学研究所計算科学研究機構  
量子系分子科学研究チーム／量子系物質科学研究チーム
- **共催**：理化学研究所計算科学研究機構

## 招待講演者

---

- 安田宗樹（山形大学）
- 大関真之（東北大学）
- 大槻純也（東北大学）
- 世古敦人（京都大学）
- 徳田悟（東京大学）
- 津田宏治（理化学研究所革新知能統合研究センター）
- 畑中美穂（近畿大学）
- 小林正人（北海道大学）

## 懇親会

---

産学を交え、情報・物理・化学・生物を含む多分野の研究者の方々からのご参加を頂くこの機会を受け、参加者間の研究交流・情報交換を目的とした有志の懇親会を下記の日程で開催いたします。

日時：3月22日(水) 18:30 ～ 20:30

会場：ホテル北野プラザ六甲荘 HP

住所：〒650-0002 神戸市中央区北野町1-1-14 ( ☎ 078-241-2452 )

会費：5000円（現地徴収）

\* 3/22の研究会終了後、送迎バスで会場に向かいます。

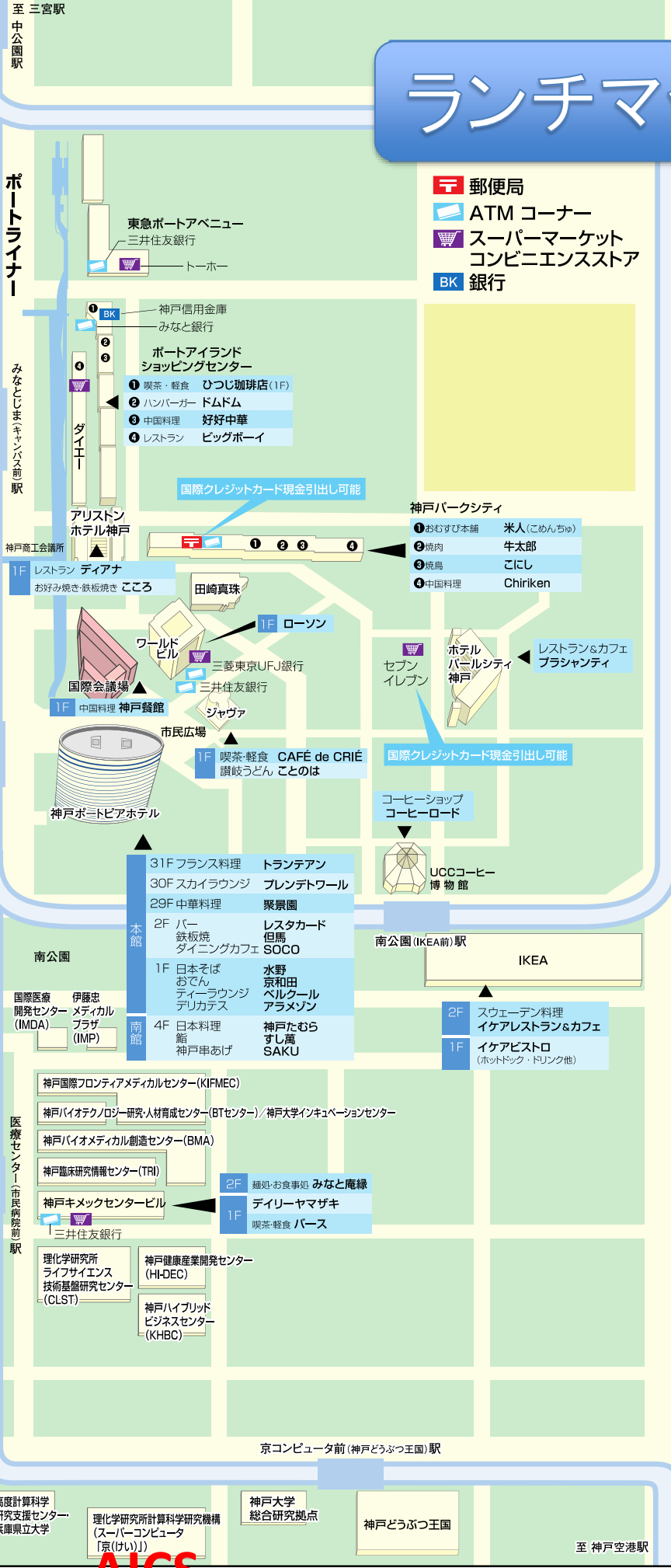
\* 懇親会の終了後に三宮駅・新神戸駅への送迎バス運行があります。

# ランチマップ



- 郵便局
- ATM コーナー
- スーパーマーケット  
コンビニエンスストア
- 銀行

- 神戸パークシティ
- ① おむすび本舗 米人(こめんち)
  - ② 焼肉 牛太郎
  - ③ 焼鳥 こにし
  - ④ 中国料理 Chiriken



至 三宮駅

ポートライナー

みなとじまキャンパス前駅

南公園

医療センター市立病院前駅

京コンピュータ前(神戸どうぶつ王国)駅

- 3F 手打ちうどんそば 屋島
- 2F ティラウンジ ヌベール

- 東急ポートアベニュー  
三井住友銀行
- トーホー

- 神戸信用金庫  
みなと銀行
- ポートアイランド  
ショッピングセンター
- ① 喫茶・軽食 ひつじ珈琲店(1F)
  - ② ハンバーガー ドムドム
  - ③ 中国料理 好好中華
  - ④ レストラン ビッグボーイ

- 国際クレジットカード現金引出し可能
- ①
  - ②
  - ③
  - ④

- アリスドン  
ホテル神戸
- 1F レストラン ティアナ  
お好み焼き 鉄板焼き ころこ

- 田崎真珠
- 1F ローソン

- ワールドビル
- 1F 中国料理 神戸餐館

- 市民広場
- 1F 喫茶・軽食 CAFÉ de CRIÉ  
讃岐うどん ことのは

- 本館
- 31F フランス料理 トランテアン
  - 30F スカイラウンジ プレンテウォール
  - 29F 中華料理 聚景園
  - 2F バー 鉄板焼 ダイニングカフェ SOCO
  - 1F 日本そば 水野 おでん 京和田 ベルクルール アラメゾン
  - 4F 日本料理 神戸たむら ずし屋 SAKU
- 南館

- ホテル  
パニールシティ  
神戸
- レストラン&カフェ  
プラシヤンティ

- 国際クレジットカード現金引出し可能

- コーヒージュップ  
コーヒーロード
- UCCコーヒー  
博物館

- 南公園 (IKEA前) 駅
- IKEA

- 2F スウェーデン料理  
イケアレストラン&カフェ
- 1F イケアビストロ  
(ホットドック・ドリンク他)

- 神戸国際フロントメディアセンター(KIFMEC)
- 神戸バイオテクノロジー研究・人材育成センター(BTセンター)/神戸大学インキュベーションセンター
- 神戸バイオメディカル創造センター(BMA)
- 神戸臨床研究情報センター(TRI)
- 神戸キメックセンタービル
- 2F 麺処・お食事処 みなと庵縁
- 1F デイリーヤマザキ  
喫茶・軽食 パース
- 三井住友銀行
- 理化学研究所  
ライフサイエンス  
技術基盤研究センター  
(CLST)
- 神戸健康産業開発センター  
(HI-DEC)
- 神戸ハイブリッド  
ビジネスセンター  
(KHBC)

- 高度計算科学  
研究支援センター  
兵庫県立大学
- 理化学研究所計算科学研究機構  
(スーパーコンピュータ  
[京(けい)])

- 神戸大学  
総合研究拠点
- 神戸どうぶつ王国

- ファミリーマート
- ポートアイランド病院

- ポートピアプラザ
- 1F ステーキ 桜井  
中国料理 華苑

- ワールド記念  
ホール
- 3号館
- 国際展示場
- 2号館 1号館
- 1F レストラン Kitchen Planet

- 神戸低慢費がん医療センター
- 西記念ポートアイランド  
リハビリテーション病院
- チャイルド  
ケモハウス

- 神戸市立医療センター  
中央市民病院

- 理化学研究所  
多細胞システム  
形成研究センター  
(CDB)
- 先端医療センター  
(IBRI)

- 2F そばうどん  
家族亭
- 1F 焼菓子処  
ばどど
- 神戸国際  
ビジネスセンター  
(KIBC)

- 甲南大学

ローソン

ファミリーマート

神戸  
インキュベーション  
オフィス(KIO)

# プログラム

2017年3月22日（水）

09:30- 10:00	<b>Registration</b>
10:00- 10:10	<u>柚木清司</u> , 理研 A I C S <b>はじめに</b>
	<b>セッション 1</b> （座長：上田宏）
10:10- 11:40	<u>安田宗樹</u> , 山形大学 <b>統計的機械学習理論とボルツマン機械学習</b>
11:40-13:30	 <b>昼食</b>
	<b>セッション 2</b> （座長：安田宗樹）
13:30- 15:00	<u>大関真之</u> , 東北大学 <b>今日から始めるスパースモデリング</b>
15:00- 15:45	<u>大槻純也</u> , 東北大学 <b>スパースモデリングを応用した量子モンテカルロ 虚時間データの実振動数への解析接続</b>
15:45-16:10	 <b>Break</b>
	<b>セッション 3</b> （座長：畑中美穂）
16:10- 16:55	<u>徳田 悟</u> , 東京大学 <b>ベイズ的スペクトル分解の数理 ー測定ノイズによる推定の相転移ー</b>
16:55- 17:40	<u>世古敦人</u> , 京都大学 <b>材料科学データに対する機械学習手法の応用</b>
18:30- 20:30	  <b>懇親会</b> (ホテル北野プラザ六甲荘)


# プログラム

2017年3月23日（木）


## セッション 4（座長：米原丈博）

10:00- 津田宏治, 東京大学 / NIMS / 理研 A I P

11:30 人工知能技術による機能分子・物質設計

11:30-13:00  昼食

13:00-15:00 ポスターセッション

15:00-15:20  Break

## セッション 5（座長：大槻純也）

15:20- 畑中美穂, 近畿大学

16:05 自動反応経路探索を用いる触媒・発光材料の機構解析と機械学習の利用

16:05- 小林正人, 北海道大学

16:50 データ科学を利用した量子化学計算結果の解析と触媒への応用

16:50- 中嶋隆人, 理研 A I C S

17:00 おわりに

## ゲスト用無線 LAN の設定情報

SSID	aics-guest
ネットワークキー	0123456789012
暗号化方式	WPA2-PSK(AES)

## お問い合わせ

上田 宏 理研 A I C S 量子系物質科学研究チーム h\_ueda@riken.jp  
米原丈博 理研 A I C S 量子系分子科学研究チーム takehiro.yonehara@riken.jp

# 統計的機械学習理論とボルツマン機械学習

安田 宗樹

山形大学大学院理工学研究科

$n$  個のデータ要素  $x_i$  をもったデータ  $\mathbf{x} = \{x_i \mid i = 1, 2, \dots, n\}$  が複数個あるとする。そして、データの背景にある確率分布  $P_{\text{gen}}(\mathbf{x})$  あって、データはその分布から確率的に生成されたものであると考える。  $P_{\text{gen}}(\mathbf{x})$  はデータを生成する源であり、生成モデル (generative model) と呼ばれる。もちろん、一般に生成モデルは未知の分布である。生成モデルがデータを作り出しているのだから、そこにはデータの根源的なメカニズムが記述されていると考えられる。したがって、生成モデルを把握したいという欲求が生まれるのである。生成モデルは未知分布であるため、我々は生成モデルに対する直接的な情報をもっていない。我々が持っているのは手元にあるデータのみであるが、この手元のデータは生成モデルを通して作られているわけだから生成モデルに対する何らかの情報をもっているはずである。データに潜在する間接的な情報を活用して生成モデルへアプローチするための理論が統計的機械学習理論 (statistical machine learning theory) である。

統計的機械学習をはじめめるために、まず、チューニング可能なパラメータ  $\theta$  をもった学習モデル  $P_{\text{train}}(\mathbf{x} \mid \theta)$  を定義する。我々はデータを利用してこの学習モデル (のパラメータ  $\theta$ ) をチューニングし、学習モデルを  $P_{\text{gen}}(\mathbf{x})$  に近づけて未知の生成モデルの近似分布を得る。生成モデルを確率分布と仮定しているのだから、もちろん、定義する学習モデルも確率分布を表現する数理モデルとなる。より良い生成モデルの再現を得るためにはより良い学習モデルを利用する必要があるため、どのような学習モデルを用いるかが非常に重要なポイントとなる。グラフィカルモデル (graphical model) が良質な学習モデルの有力候補として知られる。グラフィカルモデルは確率変数間の関連性をグラフ  $G(V, E)$  で表現する確率モデルである。本講演では、グラフィカルモデルの中でも特に、変数間の関連性が無向グラフで表現されるマルコフ確率場 (Markov random field) に注目する。マルコフ確率場は長い歴史をもち、様々な課題に応用されている。本講演のメインテーマの一つであるボルツマン機械 (Boltzmann machine) [1] はマルコフ確率場の一種である。

本講演では、統計的機械学習理論の基礎から出発し、ボルツマン機械を用いた統計的機械学習の理論と応用へと至る。応用例としては画像処理 (ノイズ修復, 画像補修) [2, 3], 道路交通ネットワークのナウ・キャスト推定 [4], グラフマイニング等を取り上げる予定である。時間があれば、ボルツマン機械学習に関する最新の話 [5, 6] も取り上げたい。

- [1] D. H. Ackley, G. E. Hinton and T. J. Sejnowski: A Learning Algorithm for Boltzmann Machines, *Cognitive Science*, Vol.9, No.1, pp.147–169, 1985.
- [2] K. Tanaka: Statistical-mechanical approach to image processing, *Journal of Physics A: Mathematical and General*, Vol.35, No.37, pp.R81–R150, 2002.
- [3] M. Yasuda, J. Ohkubo and K. Tanaka: Digital Image Inpainting based on Markov Random Field, *Proceeding in CIMCA-IAWTIC'05*, pp.747–752, 2005.
- [4] S. Kataoka, M. Yasuda, C. Furtlehner and K. Tanaka: Traffic data reconstruction based on Markov random field modeling, *Inverse Problems*, Vol.30, pp.025003, 2014.
- [5] M. Yasuda: Monte Carlo Integration Using Spatial Structure of Markov Random Field, *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol.84, No.3, pp.034001, 2015.
- [6] C. Takahashi and M. Yasuda: Mean-Field Inference in Gaussian Restricted Boltzmann Machine, *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol.85, No.3, pp.034001, 2016.

# 今日から始めるスパースモデリング

大関 真之

東北大学大学院情報科学研究科

世界中で隆盛を極める人工知能、機械学習の発展、そのブームに乗り遅れてはいけな  
いと慌てている人もいるかもしれない。特に機械学習のブレイクスルーとして有名な、深層学習。  
興味を持っている人々も多いだろう。そのコンセプトを簡単に紹介して、それだけではない機  
械学習の威力、そしてさらに重要な要因を抜き出すスパースモデリングと呼ばれる方法論に  
ついて紹介する。数少ない本質的に重要な部分を抽出する変数選択や、少ない情報から  
本質的な部分を明らかにすることで、大きな情報利得を得るのに役立つ圧縮センシングの  
根幹をなすものだ。

これによる計測革命は驚異的な成果を上げている。私がこれまでに関係してきた共同研究  
の成功例を紹介したのち、計測が実験的に情報を取得することに限らず、シミュレーションに  
よって得られた大量のデータからの知見の抽出であると拡張すれば、この方法が物性物理に  
おける数値計算における病的な問題の解決策を与えることができることがわかる。最近成功  
した研究の成果についても紹介したいと思う。

どれも難しい数式を利用することなく、簡単な例とイメージから 0 から始めることで  
明日から、いや今日から始めることのできる衝撃を与えたい。多数の来聴を歓迎する。

# スパースモデリングを応用した量子モンテカルロ虚時間データの実振動数への解析接続

東北大学大学院理学研究科 大槻純也

多体電子系やスピン系に対する量子モンテカルロシミュレーションにおいて、一粒子励起スペクトルや磁気励起スペクトルなどの動的物理量を得るには、シミュレーションで計算される虚時間データを実振動数へと解析接続する必要がある。しかし、解析接続はノイズに極めて敏感であるため、モンテカルロデータに含まれる統計誤差に敏感に反応し、信頼のあるスペクトルを得ることが困難である。この問題を改善する方法としては、例えば最大エントロピー法など様々な方法が考案されているが、未だ決定的な手法が確立していないのが現状である。

本研究ではスパースモデリングを応用した新しい解析接続法を提案する。スパースモデリングとは機械学習などで必要となる多変数の最適化問題において、本質的でないパラメータを強制的にゼロにすることによって、オーバーフィットを避けつつ有意な情報を取り出し、柔軟な予測を可能とする技術である。我々のアイデアは、虚時間データおよび実振動数スペクトルを最小限の要素数で表現できる基底を探し、その基底でスパース性を課して有意なデータを自動抽出することで、ノイズに強い解析接続が可能になるであろうという考えである。

虚時間データを  $G(\tau)$ 、実振動数スペクトルを  $\rho(\omega)$  とすると、それらは次の式で結ばれる：

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{e^{-\beta\tau}}{1 + e^{-\beta\omega}} \rho(\omega).$$

誤差付きのデータ  $G(\tau)$  を入力として  $\rho(\omega)$  を求める逆問題が解析接続である。この式は変数を離散化すると以下のような行列表示に書き換えられる：

$$\mathbf{G} = \mathbf{K}\boldsymbol{\rho}.$$

行列  $\mathbf{K}$  が悪条件 (ill-conditioned) であるため、この逆問題は数値的に不安定である。

本研究では以下の2つの手順で解析接続を行う。(i) まず、悪条件な行列を扱う標準的な方法である特異値分解を適用する。(ii) そして、特異値分解によって変換された基底において  $L_1$  ノルムを用いた正則化を適用し、スパースな解を選び出す。以上の手順をスペクトル  $\rho(\omega)$  が満たすべき拘束条件（総和則と非負性）の下で実行することによって、誤差を含む虚時間データから有意な情報を抜き出し、安定して物理的に妥当なスペクトルを得ることができる [1]。さらに、この解析接続法によって得られた基底は虚時間データを表現する非常に効率の良い基底となっており、この基底によって、量子モンテカルロ法やダイアグラム展開などの虚時間形式の数値計算そのものを効率化することができる [2]。講演では正則化手法の詳細まで踏み込んで説明する。

本研究は大関真之氏（東北大情報）、品岡寛氏（埼玉大理）、吉見一慶氏（東大物性研）との共同研究である。

[1] J. Otsuki, M. Ohzeki, H. Shinaoka, K. Yoshimi, arXiv:1702.03056.

[2] H. Shinaoka, J. Otsuki, M. Ohzeki, K. Yoshimi, arXiv:1702.03054.



# ベイズ的スペクトル分解の数理—測定ノイズによる推定の相転移—

東京大学大学院新領域創成科学研究科

徳田 悟

## Mathematical Principle of Bayesian Spectral Deconvolution: Phase Transitions of Statistical Estimation by Measurement Noise

*Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo*

**Satoru Tokuda**

物質の持つ量子性からスペクトルはエネルギー準位を中心とする単峰な基底関数の線形和に近似的に還元できる。スペクトルはシュレーディンガー方程式が示唆するように、二つ以上の異なる状態が同様の固有エネルギーに対応する、縮退を反映する。縮退は外的摂動によって系の対称性が破れた際に解け、スペクトルにおいてピークの分裂として観測される。分裂したピーク間のギャップが小さいようなデリケートな状況において、測定ノイズはピークの同定に深刻な影響を与える。測定ノイズが大きいことで分裂しているはずのピークがあたかも「縮退」していると誤認識してしまう状況が存在する。本講演では、分光法に基づくエネルギー準位の間接測定を定式化し、介在する情報処理の側面に着目することで、「縮退」を招く誤認識の機構を説明する。まず、ベイズ的スペクトル分解と呼ばれる、スペクトルからエネルギー準位を推定する逆問題を定式化する [1, 2]。ベイズ推定を導入し、ノイズ分散や準位数が未知の状況において、それらを推定する数理的な機構を説明する。次に、ベイズ推定と統計物理の数理的な共通性に視点を広げ、ベイズ推定の相転移を説明する数理的基盤を整備する [3]。間接測定のシミュレーションを通じて、測定ノイズによる「縮退」の誤認識がベイズ推定の相転移であることを示す。最後に、分散型分光法に着目し、その物理モデル化を考慮することで、この測定法が持つ本質的な測定限界を示す [4]。標準量子限界と呼ばれる、シグナルとノイズの区別がつかなくなる測定限界がこれまでよく知られてきた。測定ノイズによる「縮退」の誤認識が起こる状況では、二つのシグナル各々の区別がつかなくなる、ベイズ推定の相転移に起因する測定限界がこれとは別に存在することを示す。

## 参考文献

- [1] Kenji Nagata, Seiji Sugita and Masato Okada, Bayesian spectral deconvolution with the exchange Monte Carlo method, *Neural Networks*, **28**, 82-89, 2012.
- [2] Satoru Tokuda, Kenji Nagata and Masato Okada, Simultaneous Estimation of Noise Variance and Number of Peaks in Bayesian Spectral Deconvolution, *Journal of the Physical Society of Japan*, **86**(2), 024001, 2016.
- [3] Satoru Tokuda, Kenji Nagata and Masato Okada, *in preparation*.
- [4] Satoru Tokuda, Kenji Nagata and Masato Okada, *in preparation*.

## 材料科学データに対する機械学習手法の応用

京都大学工学研究科材料工学専攻 世古 敦人

近年、材料科学の諸問題に機械学習手法を応用することで、高精度かつ効率的な材料探索が可能になってきている。このような材料探索においては、記述子(物性予測モデル構築のための説明変数)が予測精度の大部分を決定する。本研究では、機械学習による物性予測モデルに適した一般的な記述子を考案した。また、幾つかの物性データに対して考案した記述子を応用し、記述子の予測精度を評価した。考案した記述子をもとに新規化合物発見の指針を得る方法を開発した。

結晶は単位胞および単位胞中の原子により表現されるが、異なる化合物に対しては単位胞中の原子数が異なる。そのため、単位胞中の原子数によらない記述子が望ましい。本研究では、まず化合物中の原子を、その原子種や配位環境を表現する量へと変換し、化合物をその分布として考えた。その後、この分布の重心や分散共分散行列など代表的な量を記述子として採用した。元素を表現する量としては、電気陰性度など 21 種の物理量、結晶構造を表現する量としては、三角関数など 40 種を用いた。機械学習手法としては、物性予測にはカーネルリッジ回帰、新規化合物発見の予測モデルについては、ランダムフォレスト分類器などを用いた。物性予測モデル構築のためのデータとして、第一原理計算による凝集エネルギー(18096 化合物)、格子熱伝導率(110 化合物)、実験による融点(248 化合物)を用いた。新規化合物発見のための予測モデルについては、ICSD 収録の 33367 化合物を合成成功データとして、分類予測モデルを構築した。さらに約 130 万通りの化合物から、合成の可能性が高い化合物を予測した。

まず、凝集エネルギー予測モデルの構築を行った。予測モデルの精度は 0.042 eV/atom となり、広く用いられている動径分布関数を用いた場合(0.154 eV/atom)と比べると、大幅に精度が向上した。また、格子熱伝導率や融点についても、高精度なモデルが得られ、本研究の記述子が多くの材料科学データに対して有効であることが示された。さらに、新規化合物発見のための方法により、合成成功データに含まれない候補化合物から、合成可能な化合物を発見する効率について検証した。図には、候補化合物から選んだ構造の中に含まれる ICDD 収録の構造数を示す。ランダムフォレストによるモデルを使うことで、ランダムサンプリングに比べ、約 50 倍の合成可能な化合物を発見することができた。このように、本研究の方法により新規化合物の発見が大幅に加速されると期待される。

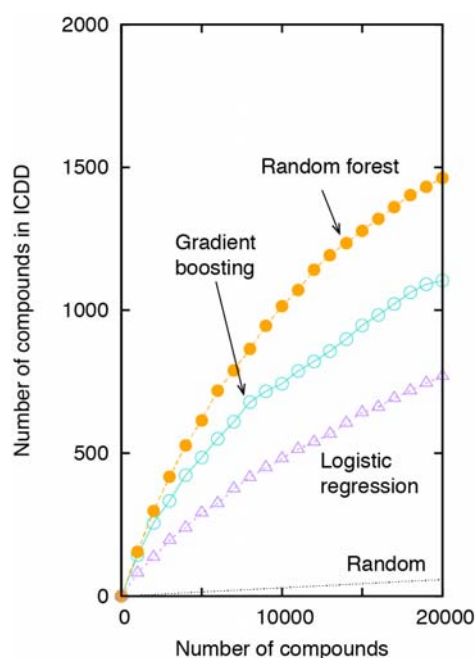


図 約 130 万通りの候補化合物から選択した構造の中に含まれる ICDD 収録の構造数.

# 人工知能技術による機能分子・物質設計

東大/物材機構/理研

津田 宏治

**Automatic design of functional molecules and materials by artificial intelligence techniques**

*University of Tokyo/ NIMS/ RIKEN*

**Koji Tsuda**

望みの機能を持つ新たな分子・物質を設計することは、科学的・産業的に大きな意義を持つ。重要な対象としては、核酸・タンパク質などの生体高分子や、金属・セラミック・ナノ粒子などの無機物質、創薬で重要な低分子有機化合物などが挙げられる。ベイズ最適化やモンテカルロ木探索などの人工知能技術を用いた自動設計は、近年注目を集めているが、未だ科学界・産業界に浸透しているとは言えない。本講演では、様々な対象の設計問題が、ブラックボックス最適化という共通した数理基盤の上で扱えることを指摘する。さらに、データからの機械学習、膨大な空間を効率的に探索する離散アルゴリズム、物理法則から物性値を正確に予言する第一原理計算の強力な組み合わせにより、様々な分子・材料設計問題が解けることを示す。具体的には、金属界面の構造最適化、複雑なナノ構造を持つシリコン・ゲルマニウム合金の自動設計、モンテカルロ木探索による RNA 配列設計などの適用例を述べる。

# 自動反応経路探索を用いる触媒・発光材料の 機構解析と機械学習の利用

(近畿大学理工学部・JST さきがけ) 畑中 美穂

近年、自動反応経路探索技術の発達に伴い、基底状態だけでなく励起状態における反応経路を網羅的に探索することが可能になり、中間体や遷移状態(TS)、ポテンシャルの交差点におけるエネルギーや分子構造の情報が比較的簡単に得られるようになってきた。[1] 本講演では、二種の材料(触媒・発光材料)を例に挙げ、自動反応経路探索を用いるメカニズムの解明や、機械学習を利用した高効率な解析について述べる。

## 【1】 亜鉛触媒を用いる不斉アルドール反応の立体選択性発現機構の解明

生体内で C-C 結合生成を促進する酵素の一つにアルドラーゼがある。アルドラーゼを模倣した不斉亜鉛錯体を触媒として用いることで、水存在下でのアルドール反応が高収率・高立体選択的に進行することが報告されている。[2] そこで、本反応の立体選択性発現機構を明らかにするため、自動反応経路探索の一つである「人工力誘起反応法」を用い、C-C 結合生成段階の TS を網羅的に探索した。その結果、253 個の TS 構造が得られた。ここで、網羅的探索によって、全ての重要な遷移状態構造が得られるという保証はないため、得られた全ての構造を検証し、重要な構造を見逃していないか確認する必要がある。この手順を効率化するため、TS 構造を教師なし学習の一つである K-means 法を用いてクラスタリングしたところ、構造の違いを特徴付ける原子間距離を抽出することができた。

## 【2】 ランタノイド発光材料の配位子設計指針の構築

ランタノイド三価陽イオン( $\text{Ln}^{3+}$ )の f-f 遷移による発光は、周囲環境の変化に対して、発光波長は変わらないが、発光強度が大きく変化するという特徴を持つ。そこで、 $\text{Ln}^{3+}$ 錯体の発光強度を決める因子の一つである一重項基底状態(S0)と三重項状態(T1)のポテンシャルの交差点に着目し、様々な配位子を持つ  $\text{Ln}^{3+}$ 錯体について計算した結果をデータベース化した。その結果、T1 の局所安定構造から S0, T1 の交差点への構造変化は局所的であるため、fingerprint がよい記述子となることが分かった。講演では、データベースから、どのような配位子設計の指針が抽出できるか議論する。

## 【参考文献】

- [1] S. Maeda, K. Ohno, K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 3683 (2013).  
[2] S. Itoh, T. Tokunaga, S. Sonoike, M. Kitamura, A. Yamane, S. Aoki, *Chem. Asian J.* **8**, 2125 (2013).

# データ科学を利用した量子化学計算結果の解析と触媒への応用

(北大院理・JST さきがけ・京大 ESICB) 小林 正人

最近のコンピュータとプログラムの発展により、量子化学計算の適用範囲が大規模系へと拡大し、また長時間ダイナミクスシミュレーションや広大なコンフォメーション空間の探索が可能となってきた。例えば我々も、大規模分子系の量子化学計算を可能とする分割統治法の開発を行ってきた[1,2]。このような状況を背景に、量子化学計算とデータ科学の手法を組み合わせた解析や予測に注目が集まっている。大規模量子化学計算の実行結果であっても、最も重要なプロパティであるエネルギーは単一の値であり、また波動関数そのものの情報は逆に膨大で意味が薄すぎて、データ科学の手法で扱って意味のある結果を得るのは難しい。そこで、本講演ではまず、大規模量子化学計算から局所的な情報を抽出する方法とその応用について述べる。

次に、実際に量子化学計算の結果とデータ科学的手法を用いて、触媒の活性を評価する最近の試みについて紹介する。具体的には、反応経路の系統的探索[3]から得られた遷移状態 (TS) データベースと、LASSO [4]や MC+法[5]に代表されるスパースモデリングの手法を組み合わせることによって、Cu および Au ナノクラスター触媒の活性因子の抽出を行った。スパースモデリングでは、目的変数  $y$  に対して、説明変数  $X$  を用いた最小二乗推定に正則化項  $p$  を加えた以下の目的関数  $l$  を最小化する。

$$l(\beta) = (y - \beta X)^T (y - \beta X) + p(\beta) \quad (1)$$

特に MC+法による活性因子の抽出により、Cu クラスター触媒による NO 解離反応では LUMO の寄与が大きいものに対して、Au クラスター触媒による H<sub>2</sub> 解離反応では HOMO の寄与が大きいことが分かった。

発表では、もう一つの適用例として、遷移金属触媒によるメタン水蒸気改質反応の触媒活性について、報告を予定している。

[1] M. Kobayashi and H. Nakai, in *Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics* (Springer, 2011), pp. 97-127.

[2] M. Kobayashi and T. Taketsugu, *Chem. Lett.* **45**, 1268-1270 (2016).

[3] S. Maeda, T. Taketsugu, and K. Morokuma, *J. Comput. Chem.* **35**, 166-173 (2014).

[4] R. Tibshirani, *J. Roy. Stat. Soc. B* **58**, 267-288 (1996).

[5] C.-H. Zhang, *Ann. Stat.* **38**, 894-942 (2010).

# POSTER PRESENTATIONS

2<sup>nd</sup> Kobe Workshop (3/22 - 25, 2017)

Sasagawa Yoshinori (笹川 佳則) 神戸大学(Kobe Univ.) (3/23, 24)

TEBD を用いた+-J ランダムイジングモデルのエンタングルメント・エントロピー解析

Analysis of Entanglement Entropy of the +-J Ising model using TEBD

Kenta Kanamori (金森 研太) 名古屋工業大学 (3/23)

固体内イオン伝導キャリアの低エネルギー領域同定の為の選択的サンプリング手法の開発

Kosuke Nakano (中野 晃佑) 旭硝子 先端技術研究所 (3/23)

第一原理計算と機械学習を利用した、無機材料の光学物性予測

Tomohiro Yonezu (米津 智弘) 名古屋工業大学 (3/23)

マルチタスクガウス過程によるコスト考慮型粒界構造探索

Unpei Nagashima (長嶋 雲兵) 計算科学振興財団 FOCUS (3/23, 24)

Molecular mining by highly accurate molecular property estimation using a Supercomputer Aided Molecular Design with a Deep Learning on a Big Data and an AI technique.

Motomichi Tashio (田代 基慶) 東洋大学 (3/23)

PCBM/PCPDTBT 界面における電荷分離・再結合過程の

分子配向依存性に関する理論的考察

Michihiro Okuyama (奥山 倫弘) コニカミノルタ(Konica Minolta) (3/24)

Adiabatic electronic motion in forming covalent bond

Tomomi Shimazaki (島崎 智美) 理化学研究所 (3/23, 24)

有機薄膜太陽電池デバイスのための電荷移動状態と次元性の影響に関する理論的研究

Theoretical study on hot charge transfer state and dimensional effect for organic photocell device

Kazuo Kitauta (北浦 和夫) 京都大学 (Kyoto Univ.) (3/23, 24)

Group Molecular Orbital Method For Large Molecular Systems

Keisuke Sawada (澤田 啓介) RIKEN (3/24)

Fast evaluations of two-electron repulsive integrals using pseudo-spectral methods

William Dawson (ういりあむ どーそん) RIKEN (3/24)

Large Scale Matrix Polynomial Computation for Linear Scaling Quantum Chemistry

Rahul Maitra (らうーる まいとら) RIKEN (3/24)

A Single Reference Coupled Cluster Theory with Iterative Triple Excitation

for Ground State and Associated Equation of Motion Formulation for the Excited / Ionized State

Zi-Hong Liu Chinese Academy of Sciences (3/24)

Quantum phase transition of frustrated triangle lattice Ising model coupled to a fermi surface

Takehiro Yonehara (米原 丈博) 理化学研究所(RIKEN) (3/23, 24)

Characterization of non-adiabatic electron wave packets in densely quasi-degenerate excited states

Yuichi Otsuka (大塚 雄一) 理化学研究所(RIKEN) (3/23, 24)

Universal quantum criticality in two-dimensional interacting Dirac electrons

Shigetoshi Sota (曾田 繁利) 理化学研究所(RIKEN) (3/23, 24)

時間依存 DMRG 法と量子アニーリング

Time dependent DMRG method and its application to quantum annealing

Shirakawa Tomonori (白川 知功) 理化学研究所(RIKEN) (3/23, 24)

Local multiplets around the single vacancy in graphene

Mohammad Khazaei 理化学研究所(RIKEN) (3/24)

MXenes: promising platforms for fundamental research and device application

Ahmad Ranjbar 理化学研究所(RIKEN) (3/24)

Structural, electronic and magnetic properties of Cr<sub>2</sub>AX (A= Al, Ge, Ga: and X=C, N, B) MAX phases

次ページ以降： ご用意頂いた方の要旨

after this page: submitted abstracts

# TEBDを用いた $\pm J$ ランダムイジングモデルの エンタングルメント・エントロピー解析

笹川佳則<sup>A</sup>、上田宏<sup>B</sup>、西野友年<sup>A</sup>  
神戸大理<sup>A</sup>、理研AICS<sup>B</sup>

スピングラスなど相互作用がランダムな系の理論的モデルとして Edwards-Anderson モデルがある [1]。ハミルトニアンは、 $\mathcal{H} = -\sum_{ij} J_{ij} \sigma_i \sigma_j$  で与えられ、近接相互作用の強さ  $J_{ij}$  が確率分布に従う。特に、確率  $p$  で  $J_{ij} = +J$ 、 $(1-p)$  で  $J_{ij} = -J$  であるものは  $\pm J$  Ising モデルと呼ばれる。Figure 1 に示す相図中の破線は西森ラインである [2]。この曲線上では、内部エネルギーが解析的であり、数値計算による相境界の検出には内部エネルギー以外の熱力学量を観測しなければならない。

本研究では、量子古典対応を通じてエンタングルメント・エントロピーを2次元正方格子  $\pm J$  Ising モデルに導入し、西森ライン上の相境界を検出できるかを調べた。

$d$ 次元の量子系は  $d+1$ 次元の古典統計系と量子古典対応を通じて結びつくため、次のようにして古典統計系にエンタングルメント・エントロピーを導入することが可能である。系の境界条件を表す  $\Psi^{(1)}$  に対して、ランダムネスを反映した転送行列  $\mathbf{T}^{(1)}$  を作用させ、新しい状態  $\Psi^{(2)} = \mathbf{T}^{(1)}\Psi^{(1)}$  を得る。そして、 $\mathbf{T}$  を新たに作りつつ、次々と  $\Psi^{(3)} = \mathbf{T}^{(2)}\Psi^{(2)}$ ,  $\Psi^{(4)} = \mathbf{T}^{(3)}\Psi^{(3)}$ , ... を得る。系を中央で分割し、左半分のスピン配列を行、右半分を列として  $\Psi^{(n)}$  を特異値分解し、特異値  $\lambda_i^n$  を用いてエンタングルメント・エントロピーを  $S^n = -\sum_i (\lambda_i^n)^2 \log(\lambda_i^n)^2$  と定義した。

系の拡張には TEBD [3] を用いた。初期状態  $\Psi^{(1)}$  に転送行列を作用させ、その度に行われる  $S^n$  の平均  $S$  をランダムネスの平均とみなした。Figure 2 は西森ライン上で  $S$  の温度依存性を、系のサイズ  $N$  ごとに示したものである。ピーク周辺で、有限サイズスケールリングを行うと、臨界温度が  $T_c = 0.959(1)$  ( $p_c = 0.889(1)$ ) と推定された。これは Queiroz [4] の結果 ( $p_c = 0.89061(6)$ ) とよく一致している。 $\pm J$  Ising モデルだけでなく、相互作用がガウス分布で与えられるようなモデルにおいても、本手法による相転移解析を今後進めていきたい。

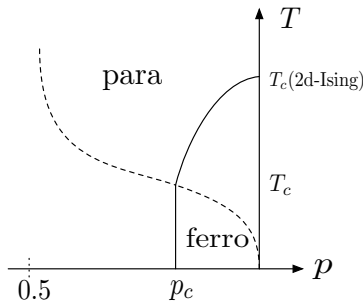


Figure 1:  $\pm J$  Ising モデルの相図

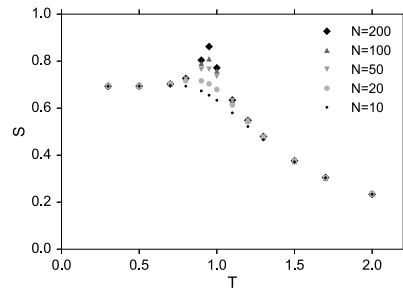


Figure 2: エンタングルメント・エントロピーの温度依存性

- [1] S. F. Edwards and P. W. Anderson, J. Phys. F **5**, 965 (1975).
- [2] H. Nishimori, Prog. Theor. Phys. **66**, 1169 (1981).
- [3] G. Vidal, Phys. Rev. Lett. **91**, 147902 (2003).
- [4] S. L. A. de Queiroz, Phys. Rev. B **79**, 174408 (2009).



# Analysis of entanglement entropy of $\pm J$ Ising model using TEBD

Yoshinori Sasagawa<sup>A</sup>, Hiroshi Ueda<sup>B</sup>, and Tomotoshi Nishino<sup>A</sup>  
Kobe University<sup>A</sup>, RIKEN AICS<sup>B</sup>

Edwards-Anderson model [1], which is an Ising model for discussing the spin glass phase, has been the subject of numerous studies over many years. The Hamiltonian is  $\mathcal{H} = -\sum_{ij} J_{ij} \sigma_i \sigma_j$  where  $\sigma_i$  takes the values  $\pm 1$ . The nearest-neighbor couplings  $J_{ij}$  are independent random variables. For the  $\pm J$  Ising model,  $J_{ij}$  takes  $+J$  with probability  $p$  and takes  $-J$  with probability  $1-p$ . The phase diagram of the 2-dimensional  $\pm J$  Ising model is sketched in Figure 1. The dashed curve is Nishimori line[2]. The internal energy has a simple analytic expression and several exact results have been derived along the line.

In this research, we investigate whether it is possible to detect the phase boundary on Nishimori line using the entanglement entropy. This entropy is introduced to  $\pm J$  Ising model through the quantum-classical correspondence. Let us consider a strip of the 2-dimensional  $\pm J$  Ising model of the width  $N$  sites with free boundary conditions. The transfer matrix  $\mathbf{T}^{(1)}$  including the bond randomness is applied to the boundary state  $\Psi^{(1)}$  to generate the next state  $\Psi^{(2)}$ . The entanglement entropy is defined as  $S = -\sum_i (\lambda_i)^2 \log(\lambda_i)^2$  where  $\lambda_i$  is singular values of  $\Psi^{(2)}$ . We estimate  $S$  in each  $\Psi^{(n)}$  and use the average of  $S$  for the analysis.

The numerical calculation is operated by means of time evolving block decimation (TEBD)[3] method. Our result is Figure 2. It is confirmed that the entanglement entropy shows a peak structure around a critical temperature. The critical temperature is estimated at 0.959(1) by a finite size scaling method in agreement with the previous work[4].

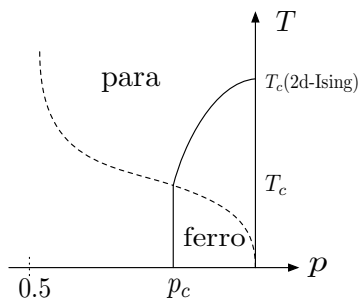


Figure 1: Phase diagram of  $\pm J$  Ising model.

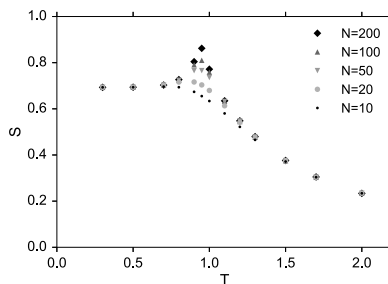


Figure 2: Entanglement Entropy  $S$  with respect to the temperature  $T$ .

- [1] S. F. Edwards and P. W. Anderson, J. Phys. F **5**, 965 (1975).
- [2] H. Nishimori, Prog. Theor. Phys. **66**, 1169 (1981).
- [3] G. Vidal, Phys. Rev. Lett. **91**, 147902 (2003).
- [4] S. L. A. de Queiroz, Phys. Rev. B **79**, 174408 (2009).

## 第一原理計算と機械学習を利用した、無機材料の光学物性予測

中野 晃佑<sup>1,\*</sup>、田中 厚<sup>1</sup>、榎本 康太郎<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 旭硝子株式会社 先端技術研究所 共通基盤 Gr.

\*e-mail: kosuke.nakano@agc.com

近年、計算機の急激な発達と情報科学技術の浸透により、マテリアルズ・インフォマティクスの重要性が増している。今回我々は、無機材料の光学物性である、バンドギャップ ( $E_g$ )、可視光域の屈折率 ( $n$ )、及び減衰係数 ( $k$ ) に対する第一原理計算の予測精度を網羅的に検証するとともに、それらの物性を cif ファイルから簡便に計算するための回帰式の算定を試みた。

通常の GGA (PBE) 汎関数は  $E_g$  を小さく見積もる傾向にあるため、Wien2k に実装されている modified Becke-Johnson (mBJ) 型の汎関数<sup>[1]</sup>を用いた。誘電関数の計算時には、計算コストの観点から励起子を考慮するような計算手法 (Bethe-Salpeter 方程式)は利用していない。このような計算条件で、光学物性データベース<sup>[2]</sup>に記載の材料から約 60 種の化合物を選択し、第一原理計算の精度検証を行い、 $E_g, n, k$  の値が計算値と実験値で良く一致することを確認した。なお、mBJ 汎関数を利用して求めた  $E_g$  が実験値と一致することに関しては、既に多くの報告例がある<sup>[3,4]</sup>。

次に、光学物性データベース<sup>[2]</sup>に収録されている約 60 種の化合物の他に、ICSD から約 150 個の化合物を抽出し、同様の条件で  $E_g, n, k$  を計算した。その後、cif ファイルから抽出した情報 (原子量、電気陰性度など)を記述子とし、計算結果である  $E_g, n, k$  の回帰を試みた。回帰方法としては、Lasso, Elastic Net, SVM, Neural Net 等、いくつかの一般的な手法を用いた。結果及び今後の展開についてはポスターで報告する。なお、cif ファイルから、 $E_g, n, k$  を用いて計算する手順は完全に自動化し、社内的大型計算機及び FOCUS スパコンにより計算を実行した。

[1] F. Tran and P. Blaha, Phys. Rev. Lett. 102, 226401 (2009).

[2] E. D. Palik, Handbook of Optical Constants of Solids. Academic Press, Burlington (1998).

[3] D. Koller, F. Tran, and P. Blaha, Physical Review B, 83, 195134 (2011).

[4] J. Lee, *et al.*, Physical Review B, 93, 115104 (2016).

Molecular mining by highly accurate molecular property estimation using a Supercomputer Aided Molecular Design with a Deep Learning on a Big Data and an AI technique.

Umpei Nagashima, Sumie Tajima

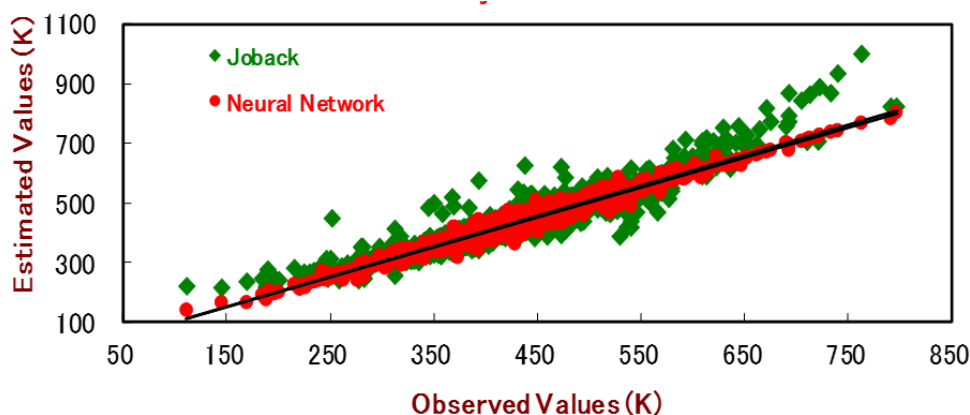
Foundation for Computational Science, FOCUS  
Keisankagaku Center bldg.7-1-28 Minatojima minami,  
Tyuoku, Kobe, 650-0047 Hyogo, Japan.

We have developed a novel property estimation equation with the group contribution scheme for molecular properties: boiling points, in the standard condition using a three layers perceptron type neural network

For deep learning, 1727 groups are newly defined as a set to reproduce the difference of isomers and to realize more reliable prediction than usual methods. 765 data of molecular boiling point are selected for education of the neural network. 953 data were applied to evaluate the efficiency of the equation.

The correlation of observed and predicted molecular boiling points by this work is better than the values by the classical technique as shown in Figure. The equation is applicable to estimate wide thermal range, namely high and low temperature region. Furthermore, the equation well reproduces the difference of boiling points for not only ortho-, meta-, and para- isomers but also cis- and trans-isomers.

Figure the correlation of observed and predicted molecular boiling points



## PCBM/PCPDTBT 界面における電荷分離・再結合過程の 分子配向依存性に関する理論的考察

○田代 基慶<sup>1</sup>, 河東田 道夫<sup>2</sup>, 今村 穰<sup>3</sup>  
( 1 東洋大, 2 理研 AICS, 3 首都大 )

有機薄膜型太陽電池では、ドナー・アクセプター界面の性質が太陽電池の機能に対して重要な役割を果たす。この点において cychlopentadithiophene-benzothiadiazole コポリマー (PCPDTBT) は興味深い性質を実験で示している。PCPDTBT の側鎖が 2-ethylhexyl (EH) の場合、界面に対して PCPDTBT は “face-on” 的な配置が支配的である。一方で、側鎖が n-dodecyl (C12) や n-hexadecanyl (C16) の場合、界面での配向は “edge-on” 的なものが支配的となる。大阪大の佐伯らは時間分解マイクロ波伝導度法 (TRMC) を用いた PCBM / PCPDTBT (EH, C12, C16) 界面の測定を行い、側鎖が EH である方が C12, C16 の場合よりも電荷分離・電荷再結合が早くなることを見出している。我々はこの TRMC の実験結果を解釈するため PCBM / PCPDTBT 界面に対する分子動力学計算、モノマー対に対する電子状態計算などを行い界面での電荷分離・電荷再結合率を推定した。計算結果によると “face-on” 配置の方が “edge-on” 配置に比べてドナー・アクセプター間の距離が短くなる傾向が見られ、このことが電荷分離・電荷再結合効率の違いに影響していると考えられる。

Adiabatic electronic motion in forming covalent bond  
Okuyama Michihiro  
KONICA MINOLTA, Inc., 2970 Ishikawa-machi, Hachioji-shi  
Tokyo 192-8505, Japan

To explore the mechanism of chemical reactions, it is vital to examine the electronic motion in molecules. To this end, there have been many extensive theoretical studies of electronic motion. Among these, the study of electronic current density should be a useful approach in examining the time-evolving electronic motion. Defining an electronic wavefunction  $\psi$ , the electronic current density within quantum mechanics is expressed by

$$\mathbf{j} = \frac{1}{2i}(\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*). \quad (1)$$

However, when calculated within the Born-Oppenheimer approximation, as is useful for quantum and mixed quantum-classical dynamics, there holds  $\mathbf{j} = \mathbf{0}$  because of the real-valuedness of the electronic wavefunction [1, 2]. Although some ways to solve this problem have been suggested [1, 2, 3, 4], how to describe the electronic current density is still open to improvement within the mixed quantum-classical theory.

In our study, in order to describe the electronic current density within the Born-Oppenheimer molecular dynamics, we introduce Maxwell's displacement current density to extract the current density related to bonding formation, which we call the electronic sharing current density. In the poster presentation, we apply this quantity to the covalent bonding formation in the  $\text{H}_2$  system and thus, show the usefulness of this electronic sharing current density and reveal the reaction mechanism of the covalent bonding formation of the  $\text{H}_2$  molecule.

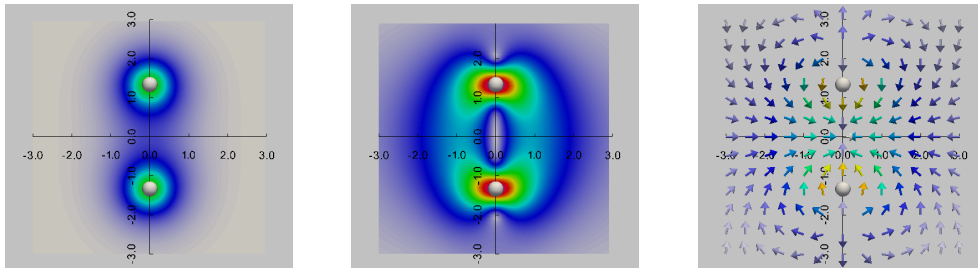


Figure 1: Electronic density (left panel), the absolute value of electronic current density (central panel) and electronic current density (right panel).

- [1] M. Okuyama and K. Takatsuka, Chem. Phys. Lett. **476**, 109 (2009).
- [2] I. Barth *et al.*, Chem. Phys. Lett. **481**, 118 (2009).
- [3] T. Sun and R. M. Wentzcovitch, Chem. Phys. Lett. **554**, 15 (2012).
- [4] V. Pohl and J. C. Tremblay, Phy. Rev. A. **93**, 012504 (2016).

## Theoretical study on hot charge transfer state and dimensional effect for organic photocell device

Tomomi Shimazaki and Takahito Nakajima

*RIKEN, Advanced Institute for Computational Science*

*7-1-26 Minatogima-minami-machi, Chuo-ku, Kobe, Hyogo 650-0047, Japan*

Organic photocells using  $\pi$ -conjugated oligomers and polymers have been gathering much attention as one of renewable natural power resources. The manufacturing of organic semiconductors does not need high-temperature processes unlike inorganic semiconductors. Low-temperature processes help to reduce the production costs of organic photocells. In addition, the unique features of organic semiconductors, such as versatility of functionalization, thin film flexibility, and easy processing, are attractive to create devices. However, at present the conversion efficiency of organic photocells remains lower compared with inorganic photocells. In order to improve the efficiency, the mechanisms of photocurrent generation in organic semiconductors have been actively investigated. The dissociation of electron-hole pair (exciton) generated by adsorbed photon energy is a key process.

We theoretically investigate the exciton dissociation process through hot states at the donor-acceptor interface of organic photocells. We expanded the formalism of Rubel et al. (*Phys. Rev. Lett.*, **100**, 196602, 2008.), and adopted the theoretical concept of Arkhivov et al. (*Phys. Rev. Lett.*, **82**, 1321, 1999.) to consider hot charge transfer (CT) states. The hot CT state effect is effective to raise the probability to separate electron-hole pair. We also found that cooperative behaviors between the hot CT state and the dimensional effects are essential for efficient exciton dissociations. In the workshop, we will discuss the details of our theoretical study for organic photocells.

- [1] T. Shimazaki, T. Nakajima, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 27554 (2016).
- [2] T. Shimazaki, T. Nakajima, *J. Chem. Phys.*, **144**, 234906 (2016).
- [3] T. Shimazaki, T. Nakajima, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **17**, 12538 (2015).
- [4] T. Shimazaki, T. Nakajima, *J. Chem. Phys.*, **142**, 074109 (2015).
- [5] T. Shimazaki, T. Nakajima, *J. Chem. Phys.* **141**, 114109 (2014).

## Group Molecular Orbital Method For Large Molecular Systems

Tomomi Shimazaki(RIKEN,AICS), Kazuo Kitaura(RIKEN,AICS),  
Dmitri G. Fedorov(AIST,CD-FMat), Takahito Nakajima(RIKEN,AICS)

An algorithm to solve the Huzinaga subsystem self-consistent field equations[1] is proposed using two approximations: a local expansion of subsystem molecular orbitals and a truncation of the projection operator. Test calculations are performed on water and ammonia clusters, and *n*-alkane and poly-glycine. The errors were 2.2 and -0.6 kcal/mol for (H<sub>2</sub>O)<sub>40</sub> and C<sub>40</sub>H<sub>82</sub>, respectively, at the Hartree-Fock level with the 6-31G basis set.

[1] S. Huzinaga and A. A. Cantu, J. Chem. Phys. **55**, 5543 (1971).

# Fast evaluations of two-electron repulsive integrals using pseudospectral methods

Keisuke Sawada

RIKEN Advanced Institute for Computational Science

A fast estimation of two-electron repulsive integrals (ERIs) is an important and imperative subject in any *ab-initio* quantum chemical calculations. Since the computational cost of the ERIs formally increases as  $N^4$ , where  $N$  is the number of basis functions, we often suffer from much time-consuming estimations in large molecular systems.

In order to address the tough problem, several methodologies have been developed to date. Among them, the pseudospectral (PS) method is a strong candidate for a quick and efficient evaluation of the ERIs. In the PS method, one analytical integral is replaced by a numerical summation consisting of discrete grid points and the computational cost is reduced from  $O(N^4)$  to  $O(MN^2)$ , where  $M$  is the number of grid points. Because of the discretization of a continuous integral space, the PS method is not only a fast method for estimations of the ERIs but also suitable for recent massively parallel computations using numerous CPU cores.

In this study, we implement the PS and PS-GAP methods into NTChem program and investigate the performances of these methods using the Flat-MPI and MPI/OpenMP hybrid parallelized codes. The PS-GAP method is further accelerated method that the PS and Gaussian-and-plane-wave (GAPW) methods are combined. In large molecular system which includes more than 8,000 basis sets, we find that the PS and PS-GAP methods show a good scaling with respect to used CPU cores and become much faster than the analytic integral methods. Moreover, the PS-GAP method exhibits the low-dimensional scaling in terms of the number of basis sets and achieve less than  $O(N^2)$  computational costs.



# Large Scale Matrix Polynomial Computation for Linear Scaling Quantum Chemistry

William Dawson

RIKEN Advanced Institute for Computational Science

Self-consistent field cycles in quantum chemistry calculations usually require computing the eigendecomposition of a matrix, an approach that has been aided by the development of large scale eigenvalue libraries. However, the cubic scaling cost associated with computing the eigendecomposition has become a bottleneck as researchers try and investigate larger and larger systems. In the case where the operator can be represented as a sparse matrix, however, there exist methods for computing the density matrix in linear time. In particular, methods based on matrix polynomials have been shown to efficiently approximate the matrix functions used in linear-scaling quantum chemistry. Recently, our group has begun development of a highly parallel library for computing polynomials of sparse matrices on the K computer. This library will be able to accelerate quantum chemistry calculations across a number of different codes. In this session, I will present the parallel algorithms at the basis of this library, and our current progress and insights.

A Single Reference Coupled Cluster Theory with Iterative Triple Excitation  
for Ground State and Associated Equation of Motion Formulation for the  
Excited / Ionized State

Rahul Maitra<sup>1</sup>, Yoshinobu Akinaga<sup>1,2</sup> and Takahito Nakajima<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Computational Molecular Science Research Team,  
RIKEN Advanced Institute for Computational Science

<sup>2</sup> VINAS Co. Ltd.

In this poster, I shall present our recent efforts towards development of a single reference coupled cluster theory which is capable of including the effect of connected triple and higher excitations in an iterative manner within singles and doubles framework. The most salient feature of our formulation is that the computational cost increases only marginally than the traditional Coupled Cluster Singles and Doubles. I shall also present the corresponding Equation of Motion (EOM) formalism for accurately predicting the excitation and ionization energies. Some preliminary numerical examples of our formalism will be presented and our results will be compared and contrasted to other variants of traditional single reference theory.

[1] Y. Akinaga and T. Nakajima, *J. Phys. Chem. A*, 2017, 121(4), pp.827-835

# Characterization of non-adiabatic electron wave packets in densely quasi-degenerate excited states

Takehiro Yonehara

RIKEN Advanced Institute for Computational Science

The present study of characterizing non-adiabatic electron wave packet dynamics in a highly quasi-degenerate excited electronic states is intended to explore and design a new chemical functionality by using a superposition of electronic excited states created by external laser fields and molecular environment. Inspired by the remarkable advances in the experimental measurements of ultrafast dynamics including electron dynamics in molecules [1,2], we have developed a theory of non-adiabatic electron wave packet dynamics as a tool to achieve the goal [3,4].

We demonstrate following five types of characterization of complex excited electron wave packet [3,4,5,6] with use of

- (a) electronic state density [3]
- (b) unpaired electron, bond order spatial distribution and current [3,4,5,6]
- (c) two electron correlation of unpaired electron [3]
- (d) state diffusion dynamics [3]
- (e) reactivity depending on laser polarization. [4]

Necessities of characterization of electron wave packet are discussed with related to a possibility of a novel chemical reaction field induced in the boron cluster via external/internal state couplings.

[1] *Attosecond Physics*, (Eds.) L. Plaja, R. Torres and A. Zaier (2013) Springer.

[2] *Quantum Dynamic Imaging*, (Eds.) A. D. Bandrauk and M. Ivanov (2011) Springer.

[3] T. Y. and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **144**, 164304 (2016)

[4] 米原丈博 “高擬縮重励起状態を介する外場駆動化学反応電子動力学”  
アンサンブル Vol. 18 , No. 4 , 10 月号 (2016) (通巻第 76 号)

[5] T. Y., K. Hanasaki and K. Takatsuka, *Chem. Rev.* **112**, 499 (2012).

[6] *Chemical Theory beyond the Born-Oppenheimer Paradigm*,  
K. Takatsuka, T. Y., K. Hanasaki, and Y. Arasaki (2015) World Scientific

The studies in this presentation were mainly carried out at the previous laboratory in Univ. of Tokyo with Prof. K. Takatsuka (now in Kyoto Univ. FIFC).