

インシリコ・ケミストリーの確立：

大規模量子化学計算手法の高精度化・高速化・汎用化

研究代表者 中井 浩巳
(理工学研究所 教授)

1. はじめに

本重点教員研究では、材料設計・開発を目的としたインシリコ・ケミストリーの確立を目指す。実践的なインシリコ・ケミストリーを確立するために、量子化学計算の高精度化・高速化・汎用化を目的の一つとする。ただし計算手法の開発だけでは、実践的なインシリコ・ケミストリーを様々な材料開発の分野へ浸透させるには不十分である。そこで、高度化された量子化学計算をどのように用いるのかという実践的な『レシピ』作りも本研究における目的の一つとする。本重点教員研究の学術的な研究成果は、プロジェクト研究「相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計」と共通であり、同年次報告を参照されたい。

一方、重点教員研究としては、学術的な活動に加えて、以下の5点の目標を設定した。(i)「京」コンピュータに関する国家プロジェクトへの参加、(ii)世界標準の量子化学プログラムパッケージへの公開、(iii)理論化学に関する国際会議の開催、(iv)「実践的化学知」への積極的貢献、(v)外部資金の獲得。以下に具体的な成果を示す。

2. 主な活動実績

(i) 「京」コンピュータに関する国家プロジェクトへの参加

2015年度から文部科学省「ポスト「京」で重点的に取り組むべき社会的・科学的課題に関するアプリケーション開発・研究開発」に対して、分子研を研究拠点とした「重点課題⑤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」が始動した。早稲田大学は分担機関と位置づけられており、平成31年度まで本プロジェクトを遂行する。

本年度は、「京」コンピュータプロジェクトで開発してきた化学反応シミュレータ、『分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学計算プログラム (DC-DFTB-K)』の高機能化・高効率化・汎用化を行い、詳細な内容を論文に発表した。同時に、水溶液中での水酸化物(OH⁻)の拡散に適用し、vehicular拡散とGrotthuss拡散ともに高精度に拡散係数を求めることに成功した。

(ii)世界標準の量子化学プログラムパッケージへの公開

世界的な量子化学計算プログラム GAMESS において、CREST プロジェクトで開発した実用的な厳密2成分相対論法(LUT-IOTC)が公開された。また、「京」コンピュータプロジェクトで開発したDC-DFTB法は、量子化学計算プログラム ADF への実装を開始した。

(iii)理論化学に関する国際会議の開催

本研究代表者は、2016 年 8 月 28 日-9 月 2 日に開催された理論化学の国際会議 Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC2016)において、招待講演を行った。さらに、次回の TACC2020 に関して日本（北海道大学）での開催を誘致し、成功した。

(iv)「実践的化学知」への積極的貢献

本研究代表者は、GCOE の後継プロジェクトである「卓越した大学院拠点形成支援補助金」にもナノ・エネルギー材料の PI として活動している。さらに、理工学研究所に 2018 年度に設置される「先端化学知の社会実装研究所」の提案に加わった。

(v) 外部資金の獲得

本研究代表者は、平成 24 年 9 月から科学技術振興機構(JST)の戦略的創造研究推進事業(CREST)プロジェクトの「相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計」を推進している。同時に、他大学の 6 グループとの連携を計り、より大きな成果へ繋げる努力をしている。

また、本研究代表者は、平成 24 年度から京都大学触媒・電池元素戦略拠点(ESICB)の拠点教授として、プロジェクトに参画している。本年度は、本予算により特定研究員を 1 名雇用し、研究のさらなる進展を計った。

平成 26 年度から推進している科学研究費 基盤研究(A)「ユビキタス水素の機能とダイナミクスに関する理論的研究」においても次席研究員を 1 名雇用し、研究のさらなる進展を計った。本年度から科研費 挑戦的萌芽研究「凝縮系の熱力学量に対する高精度量子化学計算法の開発」にも採択され、研究分担者の石川研究員（理工研次席研究員）と協力して、研究を推進した。

NEDO『戦略的省エネルギー技術革新プログラム』の「次世代省エネルギー型 CO₂回収技術の実用化開発」に研究分担者として参画し、IHI 社との共同研究を推進した。

3. 共同研究者

石川 敦之（理工学術院・理工学研究所・理工研次席研究員）
 菊池 那明（理工学術院・理工学研究所・次席研究員）
 清野 淳司（理工学術院・理工学研究所・次席研究員）
 王 祺（理工学術院・理工学研究所・次席研究員）
 西村 好史（理工学術院・理工学研究所・次席研究員）
 周 建斌（理工学術院・理工学研究所・次席研究員）
 五十幡 康弘（理工学術院・化学・生命化学科・次席研究員）
 小野 純一（理工学術院・化学・生命化学科・次席研究員）
 吉川 武司（理工学術院・化学・生命化学科・助教）
 中嶋 裕也（理工学術院・化学・生命化学科・助手）
 大越 昌樹（京都大学・特定研究員、理工学研究所・招聘研究員）

4. 研究業績

4-1 学術論文

1. “Implementation of analytical energy gradient of spin-dependent relativistic scheme based on infinite-order Douglas–Kroll–Hess Hamiltonian with local unitary transformation”, Y. Nakajima, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Theory Comput.*, **12** (5), 2181–2190 (2016). (DOI: [10.1021/acs.jctc.5b00928](https://doi.org/10.1021/acs.jctc.5b00928))
2. “Quantum chemistry beyond Born-Oppenheimer approximation on a quantum computer: a simulated phase estimation study”, L. Veis, J. Višňák, H. Nishizawa, H. Nakai, J. Pittner, *Int. J. Quantum Chem.*, **116** (18), 1328–1336 (2016). (DOI: [10.1002/qua.25176](https://doi.org/10.1002/qua.25176))
3. “Three pillars for achieving quantum mechanical molecular dynamics simulations of huge systems: Divide-and-conquer, density functional tight-binding, and massively parallel computation”, H. Nishizawa, Y. Nishimura, M. Kobayashi, S. Irle, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **37** (21), 1983–1992 (2016). (DOI: [10.1002/jcc.24419](https://doi.org/10.1002/jcc.24419))
4. “Quantum chemical approach for condensed-phase thermochemistry (IV): Solubility of gaseous molecules”, A. Ishikawa, M. Kamata, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **655-656**, 103–109 (2016). (DOI: [10.1016/j.cplett.2016.05.041](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2016.05.041))
5. “Assessment of self-consistent field convergence in spin-dependent relativistic calculations”, M. Nakano, J. Seino, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **657**, 65–71 (2016). (DOI: [10.1016/j.cplett.2016.05.047](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2016.05.047))
6. “Informatics-based energy fitting scheme for correlation energy at complete basis set limit”, J. Seino, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **37** (25), 2304–2315 (2016). (DOI: [10.1002/jcc.24455](https://doi.org/10.1002/jcc.24455))
7. “The divide-and-conquer second-order proton propagator method based on nuclear orbital plus molecular orbital theory for the efficient computation of proton binding energies”, Y. Tsukamoto, Y. Ikabata, J. Romero, A. Reyes, H. Nakai, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **18** (39), 27422–27431 (2016). (DOI: [10.1039/C6CP03786K](https://doi.org/10.1039/C6CP03786K))
8. “Efficient pole-search algorithm for dynamic polarizability: Towards alternative excited-state calculation for large systems”, H. Nakai, T. Yoshikawa, Y. Nonaka, *J. Comput. Chem.*, **38** (1), 7–14 (2017). (DOI: [10.1002/jcc.24507](https://doi.org/10.1002/jcc.24507))
9. “Relativistic frozen core potential scheme with relaxation of core electrons”, Y. Nakajima, J. Seino, M. Hayami, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **663**, 97–103 (2016). (DOI: [10.1016/j.cplett.2016.09.069](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2016.09.069))
10. “Theoretical analysis of interactions between potassium ions and organic electrolyte solvents: A comparison with lithium, sodium, and magnesium ions”, M. Okoshi, Y. Yamada, S. Komaba, A. Yamada, H. Nakai, *J. Electrochem. Soc.*, **164** (2), A54–A60 (2017). (DOI: [10.1149/2.0211702jes](https://doi.org/10.1149/2.0211702jes))
11. “Development of spin-dependent relativistic open-shell Hartree-Fock theory with time-reversal symmetry (I): The unrestricted approach”, M. Nakano, J. Seino, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **117** (10), e25356 (9 pages) (2017). (DOI: [10.1002/qua.25356](https://doi.org/10.1002/qua.25356))
12. “Divide-and-conquer-type density-functional tight-binding simulations of hydroxide ion diffusion in bulk water”, A. W. Sakti, Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Phys. Chem. B*, **121** (6), 1362–1371 (2017). (DOI: [10.1021/acs.jpcc.6b10659](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b10659))
13. “Systematic investigation of thermodynamic properties of amine solvents for CO₂ chemical absorption Using the cluster-continuum model”, K. Teranishi, A. Ishikawa, H. Sato, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **90** (4), 451–460 (2017). (DOI: [10.1246/bcsj.20160375](https://doi.org/10.1246/bcsj.20160375))
14. “Unveiling a new aspect of simple aryboronic esters: Long-lived room-temperature phosphorescence from the heavy atom-free molecules”, Y. Shoji, Y. Ikabata, Q. Wang, D. Nemoto, A. Sakamoto, N. Tanaka, J. Seino, H.

- Nakai, T. Fukushima, *J. Am. Chem. Soc.*, **139** (7), 2728–2733 (2017). (DOI: [10.1021/jacs.6b11984](https://doi.org/10.1021/jacs.6b11984))
15. “Relativistic effect on enthalpy of formation for transition-metal complexes”, Y. Nakajima, J. Seino, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **673**, 24–29 (2017). (DOI: [10.1016/j.cplett.2017.01.072](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2017.01.072))
 16. “Development of spin-dependent relativistic open-shell Hartree-Fock theory with time-reversal symmetry (II): The restricted open-shell approach”, M. Nakano, Nakamura, J. Seino, H. Nakai *Int. J. Quantum Chem.*, **117** (10), e25366 (12 pages) (2017). (DOI: [10.1002/qua.25366](https://doi.org/10.1002/qua.25366))
 17. “Universal formulation of second-order generalized Møller-Plesset perturbation theory for a spin-dependent two-component relativistic many-electron Hamiltonian”, M. Nakano, J. Seino, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **675**, 137–144 (2017). (DOI: [10.1016/j.cplett.2017.03.027](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2017.03.027))
 18. “Development of an excited-state calculation method for large systems using dynamical polarizability: A divide-and-conquer approach at the time-dependent density functional level”, H. Nakai, T. Yoshikawa, *J. Chem. Phys.*, **146** (12), 124123 (12 pages) (2017). (DOI: [10.1063/1.4978952](https://doi.org/10.1063/1.4978952))

4-2 著書（総説を含む）

1. “CO₂ 化学吸収法に対する計算化学研究：エネルギー・環境問題への挑戦” (Computational chemistry studies on CO₂ chemical absorption technique: Challenge on energy and environmental issue), 寺西 慶, 石川 敦之, 中井 浩巳, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **15** (2), A15–A29 (2016). (DOI: [10.2477/jccj.2016-0010](https://doi.org/10.2477/jccj.2016-0010))
2. “核・電子軌道法における原子核軌道エネルギーとプロトン束縛エネルギー計算” (Nuclear orbital energy in nuclear orbital plus molecular orbital method and proton binding energy calculation), 五十幡 康弘, 中井 浩巳, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **15** (5), 148–154 (2016). (特集号：量子水素の科学) (DOI: [10.2477/jccj.2016-00??](https://doi.org/10.2477/jccj.2016-00??))
3. “量子化学計算情報を記述子とした機械学習に基づく反応予測手法の開発” (Development of reaction prediction scheme based on machine learning with quantum chemical descriptors), 藤波 美起登, 清野 淳司, 中井 浩巳, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **15** (3), 63–65 (2016). (DOI: [10.2477/jccj.2016-0040](https://doi.org/10.2477/jccj.2016-0040))
4. “Implementation of efficient two-component relativistic method using local unitary transformation to GAMESS program”, Y. Nakajima, J. Seino, M. W. Schmidt, H. Nakai, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **15** (3), 68–70 (2016). (DOI: [10.2477/jccj.2016-0029](https://doi.org/10.2477/jccj.2016-0029))
5. “インフォマティクスによる反応の設計と予測—コンピュータを用いた化学反応の予言を目指して”, 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, *化学*, **71** (11), 68–69 (2016).
6. 人工知能を用いた化学反応の予測 -新材料開発のスピードアップに向けて”, 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, *マテリアルステージ*, **16** (11), 70–75 (2017).
7. “A linear-scaling divide-and-conquer quantum chemical method for open-shell systems and excited states”, T. Yoshikawa, H. Nakai, pp. 299–323 in ‘*Fragmentation: Toward Accurate Calculations on Complex Molecular Systems*’, M. Gordon (Eds.) (Wiley, 2017).

4-3 招待講演（国際会議）

1. “Computational study on CO₂ chemical absorption process”, H. Nakai, *2016 International Congress for Innovation in Chemistry (PERCH-CIC Congress IX)*, (Pattaya, Thailand), June 26-29, 2016.
2. “Chemical reaction simulations of large systems”, H. Nakai, *VISTEC Symposium on Novel Chemistry and Engineering*, (Rayong, Thailand), June 30, 2016.

3. “Nuclear orbital plus molecular orbital (NOMO) theory: Overview and recent progress”, H. Nakai, *9th Workshop on Mathematical Methods for Ab Initio Quantum Chemistry (MMAIQC 9)*, (Nice, France), July 5-6, 2016.
4. “Harmonic solvation model (HSM) to evaluate condensed-phase thermochemistry by quantum chemical calculation”, H. Nakai, *2016 Canadian Symposium on Theoretical and Computational Chemistry (CSTCC2016)*, (Regina, Canada), July 10-15, 2016.
5. “Linear-scaling method for nonlocal excited states by dynamical polarizability computations”, H. Nakai, *9th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics(ISTCP-IX)*, (Grand Forks, North Dakota, USA), July 17-22, 2016.
6. “Development of divide-and-conquer type density-functional tight-binding molecular dynamics (DC-DFTB-MD) method and its applications to chemical reaction simulations of large systems”, H. Nakai, *The 2016 Conference of Theory and Application of Computational Chemistry (TACC2016)*, (Seattle, Washington, USA), August 28-September 2, 2016.
7. “Divide-and-conquer density-functional tight-binding molecular-dynamics (DC-DFTB-MD) simulations for nano-scale chemical reaction systems”, H. Nakai, *Japan-France-Spain Joint-Symposium on Theoretical and Computational Science of Complex Systems*, (Fukui Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto University, Kyoto, Japan), October 26-28, 2016.
8. “Recent Advances of DC-DFTB-K Program”, H. Nakai, *International CECAM-Workshop~Approximate quantum methods in the ab initio world*, (Beijing Computational Science Research Center (CSRC), Beijing, China), November 6-13, 2016.
9. “Theoretical study on CO₂ chemical absorption process”, H. Nakai, *Thai-Japan Symposium in Chemistry*, (Chiang Mai University, Chiang Mai, Thailand), November 14-16, 2016.

4-4 招待講演（国内学会）

1. “分割統治（DC）法の理論と応用”，中井浩巳，*近畿化学協会コンピュータ化学部会例会(講演会)*，大阪産業創造館(大阪)，2016年6月13日。
2. “理論化学の最近の発展～個人的な視点から”，中井浩巳，*東北大学 理学部化学教室 一般雑誌会*，東北大学(仙台)，2016年11月25日。
3. “ナノスケール化学反応系に対する分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学(DC-DFTB-MD)シミュレーション”，中井浩巳，*第30回分子シミュレーション討論会*，大阪大学豊中キャンパス(大阪)，2016年11月30日～12月2日。

4-5 表彰

1. 日本化学会第95春季年会(2015) 学生講演賞，中野匡彦(D2)，「時間反転対称性を利用した新規相対論的開殻 Hartree-Fock 法の開発：KUHF 法」（平成 27 年 4 月 13 日）。
2. 第 96 春季年会(2016) 優秀講演賞（学術），吉川武司，「動的分極率を用いた高速な分割統治型非局所励起状態計算手法の開発」（平成 28 年 4 月 13 日）。
3. 第 96 春季年会(2016) 優秀講演賞（学術），清野淳司，「相対論的量子化学計算の高精度化・高効率化を目指した群知能によるパラメータ自動最適化手法の開発」（平成 28 年 4 月 13 日）。
4. 平成 28 年度 科学技術分野の文部科学大臣表彰 科学技術賞，中井浩巳，「元素戦略のための相対論的量子化学の研究」（平成 28 年 4 月 20 日）。

5. 第 39 回ケモインフォマティクス討論会 ポスター賞, 長門澄香, 寺西慶, 清野淳司, 中井浩巳, 「量子化学計算と群知能を用いたアミン・CO₂ 系反応に対する反応シミュレータの開発」(平成 28 年 9 月 30 日).
6. 第 39 回ケモインフォマティクス討論会 最優秀講演賞 (学生), 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, 「量子化学計算とインフォマティクス技術を用いた反応予測システムの開発」(平成 28 年 9 月 30 日).
7. 第 6 回 CSJ 化学フェスタ 2016 優秀ポスター発表賞, 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, 「量子化学計算と機械学習を用いた反応予測システムの開発(2): 量子化学計算条件に対する依存性」(平成 28 年 12 月 8 日).
8. 第 6 回 CSJ 化学フェスタ 2016 優秀ポスター発表賞, 平井貴裕, 石川敦之, 中井浩巳, 「Rh 表面上での NO 還元反応に対する温度及び圧力効果に関する理論的研究」(平成 28 年 12 月 8 日).

4-6 外部資金

1. 科学技術振興機構(JST) 戦略的創造研究推進事業(CREST)『元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出』“相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計”, (研究代表, 平成 24-29 年度) .
2. 日本学術振興会(JSPS) 科学研究費補助金 基盤研究(A), 「ユビキタス水素の機能とダイナミクスに関する理論的研究」(研究代表, 平成 26-30 年度) .
3. 日本学術振興会(JSPS) 科学研究費補助金 挑戦的萌芽研究, 「凝縮系の熱力学量に対する高精度量子化学計算法の開発」(研究代表, 平成 27-29 年度) .
4. 文部科学省 元素戦略プロジェクト 研究拠点形成型『京都大学 実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点』「触媒及び電極の電子状態計算のための理論開発」, (分担研究代表, 平成 28 年度) .
5. 文部科学省 フラッグシップ 2020 プロジェクト 重点課題 5『エネルギーの効率的な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発』, サブ課題 C「エネルギー・資源の有効利用ー化学エネルギー」(サブ課題実施者, 平成 28 年度) .
6. 新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO) 『戦略的省エネルギー技術革新プログラム』, 「次世代省エネルギー型 CO₂ 回収技術の実用化開発」(研究分担者, 平成 27-28 年度) .