

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「材料設計・開発のための実践的なインシリコ・ケミストリー」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) 早稲田大学における理論化学物理に関する国際会議の開催、(iv) グローバル COE 「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

分子研・計算分子科学研究拠点(TCCI)は、文部科学省「革新的ハイパフォーマンス・コンピューティング・インフラ(HPCI)の構築」のHPCI戦略分野2「新物質・エネルギー創成」を担う計算物質科学イニシアティブ(CMSI、代表機関：東大物性研)の一員で、分子研が戦略機関としての活動するための拠点である。本研究代表者は、TCCIの第3部会において特別支援課題「ナノ・生体系の反応制御と化学反応ダイナミクス」の代表として、研究を推進している。本年度は特に、分割統治(DC)法と密度汎関数強束縛(DFTB)法を組み合わせることにより、10万原子程度のエネルギー計算および数万原子の構造最適化および動力学計算を可能とさせた。

(ii)世界標準の量子化学プログラムパッケージへの公開

本研究代表者らは、世界的な量子化学計算プログラム GAMESS に、独自に開発した理論的手法である分割統治(DC)型線形スケーリング法と密度汎関数理論(DFT)に対する局所応答分散力(LRD)法を実装し、公開している。本年度は、前者に対して構造最適化計算のための解析的微分法を開発し、論文発表するとともに、GAMESSプログラムの更新を行った。

(iii) 早稲田大学における理論化学物理に関する国際会議の開催

本研究代表者は、2011年9月に第7回理論化学物理国際会議(ISTCP-VII)を組織委員長とした開催した。その学術的成果として、論文集を国際論文IJQC(International Journal of Quantum Chemistry)の特集号としてまとめ、発行した。特集号には、58報の論文が掲載された。本研究代表者のグループからも5報の論文を発表した。また、特集号の招聘編集員として巻頭言もまとめた。

(iv) グローバル COE「実践的的化学知」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平成24年度「卓越した大学院拠点形成支援補助金」にもPIとして参加した。

(v) 外部資金の獲得

本研究代表者は、科学技術振興機構(JST)が募集する戦略的創造研究推進事業(CREST)の「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」研究領域(玉尾皓平研究総括)に応募し、採択された。研究期間は平成24年9月から平成29年3月までの5年半に及ぶ長期プロジェクトである。採択課題は、「相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計」であり、本研究領域12チームのうち唯一の理論研究者のみからなるチームであり、提案課題に加えて他のチームとの連携などが期待されている。

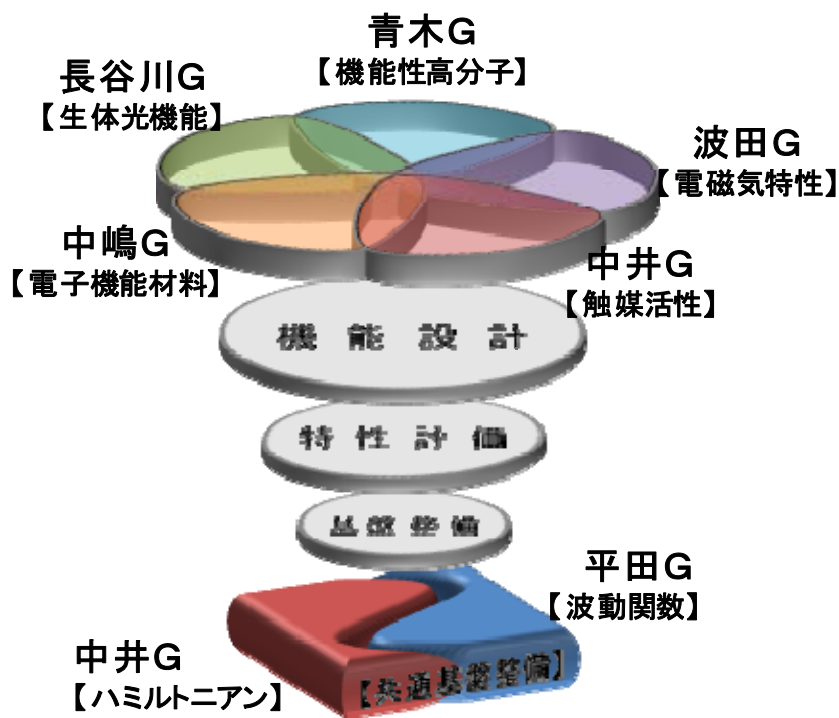


図1. JST-CREST 中井チームのグループ構成と各グループの研究テーマの概念図

3. 共同研究者

- 今村 穰 (理工学術院・客員次席研究員)
- 菊池 那明 (理工学術院・客員研究員)
- 小林 正人 (高等研究所・助教)
- 清野 淳司 (学振 特別研究員)
- サパパコーン パシヤリーナ (理工学術院・助教)
- 五十幡 康弘 (理工学術院・化学・生命化学科・助手)

4. 研究業績

4-1 学術論文

1. “Theoretical analysis of adsorption structure of hydrated hypophosphite ion on Pd (111) surface”, M. Kunimoto, K. Seki, H. Nakai, T. Homma, *Electrochemistry*, **80** (4), 222–225 (2012).
2. “Accelerating convergence in the antisymmetric product of strongly orthogonal geminals method”, M. Tarumi, M. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 239–244 (2013).
3. “Constrained self-consistent field method revisited toward theoretical designs of functional materials under external field”, Y. Yamagata, Y. Imamura, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **530**, 132–136 (2012).
4. “Dynamic hyperpolarizability calculations of large systems: the linear-scaling divide-and-conquer approach”, M. Kobayashi, T. Touma, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136** (8), 084108 (10 pages) (2012).
5. “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (IV): determination of range-determining parameter”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 245–251 (2013).
6. “Divide-and-conquer-based symmetry adapted cluster method: synergistic effect of subsystem fragmentation and configuration selection”, T. Yoshikawa, M. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 218–223 (2013).
7. “Self-consistent field treatment and analytical energy gradient of local response dispersion method”, Y. Ikabata, T. Sato, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 257–262 (2013).
8. “Development of the explicitly correlated Gaussian-nuclear orbital plus molecular orbital theory: incorporation of electron-electron correlation”, H. Nishizawa, Y. Imamura, Y. Ikabata, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **533**, 100–105 (2012).
9. “Divide-and-conquer based quantum chemical study for interaction between HIV-1 reverse transcriptase and MK-4965 inhibitor”, P. Saparpakorn, M. Kobayashi, S. Hannongbua, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (4), 510–517 (2013).
10. “Direct alkoxylation of alkoxy silanes for the synthesis of explicit alkoxy siloxane oligomers”, R. Wakabayashi, M. Tamai, K. Kawahara, H. Tachibana, Y. Imamura, H. Nakai, K. Kuroda, *J. Organometallic Chem.*, **716**, 26–31 (2012).
11. “Local unitary transformation method for large-scale two-component relativistic calculations: case for a one-electron Dirac Hamiltonian”, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136** (24), 244102 (13 pages) (2012).
12. “Divide-and-conquer electronic-structure study on the mechanism of the West Nile Virus NS3 protease inhibitor”, P. Saparpakorn, M. Kobayashi, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **86** (1), 67–74 (2013).
13. “Extension of local response dispersion method to excited state calculation based on time-dependent density functional theory”, Y. Ikabata, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **137** (12), 124106 (9 pages) (2012). (**Top 20 Most Downloaded Articles—October & November 2012; Research Highlight**)
14. “Local unitary transformation method for large-scale two-component relativistic calculations. II. Extension to two-electron Coulomb Interaction”, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **137** (14), 144101 (15 pages) (2012).
15. “Acceleration effect of thiourea on the oxidation reaction of hypophosphite ion on Ni surface”, M. Kunimoto, K. Endo, H. Nakai, T. Homma, *Electrochimica Acta*, *in press* (2013).
16. “Generalized Møller–Plesset multiconfiguration perturbation theory applied to open-shell antisymmetric product of strongly orthogonal geminals reference wavefunction”, M. Tarumi, M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Theory Comp.*, **8** (11), 4330–4335 (2012).
17. “Cristaxenicin A, an antiprotozoan xenicane diterpenoid from the deep sea gorgonian *Acanthoprimnoa cristata*”, S. Ishigami, Y. Goto, N. Inoue, S. Kawazu, Y. Matsumoto, Y. Imahara, M. Tarumi, H. Nakai, N. Fusetani, Y. Nakao, *J. Org. Chem.*, **77** (23), 10962–10966 (2012).
18. “Assessment of local response dispersion method for open-shell systems”, Y. Ikabata, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **556**, 386–392 (2013).

19. “An analytical energy gradient method for divide-and-conquer second-order Møller–Plesset perturbation theory”, M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **138** (4), 044102 (11 pages) (2013).
20. “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (III): Benchmark of total energies”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, in press(2013).

4-2 論文 (査読付きプロシーディング)

1. “Development of divide-and-conquer quantum chemical code for biomolecules and nano materials”, M. Kobayashi, P. Saparpakorn, H. Nakai, *Proceedings of ‘31st Annual Conference of Japan Society for Simulation Technology (JSST 2012)’* (Kobe, Japan, 27-28 September, 2012), 330–333 (2012).
2. “Special Issue: Seventh Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics”, H. Nakai, K. Yoshizawa, K. Ando, T. Nakajima, E.J. Brandas, *Int. J. Quant. Chem. (Preface)*, **113** (3), 171–172 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics)

4-3 著書 (総説を含む)

1. “How does it become possible to treat delocalized and/or open-shell systems in fragmentation-based linear-scaling electronic structure calculation: the case of divide-and-conquer method”, M. Kobayashi, H. Nakai, *Phys. Chem. Chem. Phys. (Perspective)*, **14** (21), 7545–7876 (2012).
2. “化学原理の発見：縮重系励起の対称則”, H. Nakai, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **11** (1), 1–12 (2012). (Special Issue of the 10th Anniversary 2)
3. “Description of core ionized and excited states by density functional theory and time-dependent density functional theory”, Y. Imamura, H. Nakai, pp. 275–308 in ‘*Quantum Systems in Chemistry and Physics: Progress in Methods and Applications*’ *Progress in Theoretical Chemistry and Physics*, **B 26**, K. Nishikawa, J. Maruani, E. J. Brändas, G. Delgado-Barrio, P. Piecuch, (Eds.) (Springer, 2012).

4-4 招待講演

1. “Linear-scaling divide-and-conquer calculations for nonlocal excited states of large systems”, H. Nakai, *17th Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVII)*, (Turku, Finland), August 19-25, 2012.
2. “Symmetry rules for electronic excitations between degenerate orbitals in high-symmetry systems”, H. Nakai, *XXI International Symposium on The Jahn-Teller Effect: Physics and Chemistry of Symmetry Breaking (JT-XXI)*, (Tukuba, Japan), August 26-31, 2012.
3. “Expansion and deepening of quantum chemical methods toward real science”, H. Nakai, *17th International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE17)*, Khon Kaen University (Khon Kaen, Thailand), March 27-29, 2013. (**Keynote**)

4-5 国内学会・国際会議等運営

1. 第6回分子科学会シンポジウム, 2012年6月9日, 早稲田大学・東京, 参加者82名. (理工学研究所第2種行事)
2. 日本化学会第93回春季年会, アジア国際シンポジウム, 2013年3月24日, 立命館大学・滋賀, 参加者約50名.
3. 第1回中日韓三国理論・計算法学ワークショップ(First China-Japan-Korea Tripartite Workshops on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-I)), 運営委員, 2012年7月20-22日, 北京・中国, 参加者約50名.
4. 第17回化学および物理における量子システムに関する国際ワークショップ(XVIIth International Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVII)), 国際科学委員, 2012年8月19-25日, トゥルク・フィンランド, 参加者約100名.