

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インシリコ・ケミストリー」及び「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) 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。そして、超並列な「京」コンピュータ上で高効率に動作する量子動力学計算プログラム DC-DFTB-K を開発してきた。本年度は、さらに高速化と汎用化を進め実践研究を行うための整備を完成させた。そして、これらの準備状況をもとに、「化学反応シミュレーションによる CO₂ 分離回収のためのアミン溶液の探索」という課題で平成 26 年度「京」コンピュータの利用申請を行い、採択された。

(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、前者に対して大規模系の励起状態計算法を開発し、論文発表するとともに、GAMESS プログラムの更新準備を行った。

(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、成功裏に終わった。そして、その業績が高く評価され、2013年8月に開催された第8回会議(ISTCP-VIII)において、理事(Board of Directors)に推挙された。

(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、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5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。そして、その研究の一環として東京大学の山田淳夫研究室との共同研究を実施し、その成果を論文発表した。

3. 共同研究者

- 菊池 那明 (理工学術院・次席研究員)
 ルンティワ チトン (理工学術院・次席研究員)
 清野 淳司 (日本学術振興会 特別研究員)
 石川 敦之 (理工学術院・次席研究員)
 王 祺 (理工学術院・次席研究員)
 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

- “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (III): Benchmark of total energies”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **34** (14), 1218–1225 (2013).
- “Novel approach to excited-state calculations of large molecules based on divide-and-conquer method: Application to photoactive yellow protein”, T. Yoshikawa, M. Kobayashi, A. Fujii, H. Nakai, *J. Phys. Chem. B*, **117** (18), 5565–5573 (2013).
- “Theoretical study on stability of lithium ion battery in charging process: Analysis based on partial charge and partial energy”, Y. Yamauchi, H. Nakai, *J. Electrochem. Soc.*, **160** (9), A1364–A1368 (2013).
- “Local unitary transformation method toward practical electron correlation calculations with scalar relativistic effect in large-scale molecules”, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **139** (3), 034109 (15 pages) (2013).
- “Theoretical analysis of the influence of surface defects on the reactivity of hypophosphite ions”, M. Kunimoto, A. Otomo, N. Takahashi, H. Nakai, T. Homma, *Electrochim. Acta*, **113**, 785–791 (2013).
- “Superphenalenyl: Theoretical design of a π -conjugated planar hydrocarbon radical”, Y. Iwabata, K.-y. Akiba, H. Nakai, *Chem. Lett.*, **42** (11), 1386–1387 (2013).
- “Kinetic energy decomposition scheme based on information theory”, Y. Imamura, J. Suzuki, H. Nakai, *J.*

Comput. Chem., **34** (32), 2787–2795 (2013).

8. “Theoretical analysis on de-solvation of lithium, sodium, and magnesium cations to organic electrolyte solvents”, M. Okoshi, Y. Yamada, A. Yamada, H. Nakai, *J. Electrochem. Soc.*, **161** (11), A2160–A2165 (2013).
9. “Theoretical study on the selective fluorescence of PicoGreen: Binding models and photophysical properties”, M. Okoshi, P. Saparpakorn, Y. Takada, S. Hannongbua, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **87** (2), 267–273 (2014).
10. “Improving quasiparticle second order electron propagator calculations with the spin-component-scaled technique”, J. Romero, J. A. Charry, H. Nakai, A. Reyes, *Chem. Phys. Lett.*, **591**, 82–87 (2014).
11. “Analytical energy gradient based on spin-free infinite-order Douglas-Kroll-Hess method with local unitary transformation”, Y. Nakajima, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **139** (24), 244107 (13 pages) (2013).
12. “Frozen core potential scheme with a relativistic electronic Hamiltonian: theoretical connection between the model potential and all-electron treatments”, J. Seino, M. Tarumi, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **592**, 341–348 (2014).
13. “Acceleration of self-consistent field convergence in ab initio molecular dynamics simulation with multiconfigurational wave function”, M. Okoshi, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, in press (2014).

4-2 著書（総説を含む）

1. “大規模・高精度相対論的量子化学計算手法の開発：元素戦略の理論基盤確立を目指して”，清野淳司，中井浩巳，*J. Comput. Chem. Jpn.*, **13** (1), 1–17 (2014).
2. “10.2.1 量子化学計算”，中井浩巳，*化学便覧 応用化学編 第7版*，日本化学会編 1013–1017 (2013).

4-3 招待講演

1. “Linear-scaling excited-state calculations for large systems”, H. Nakai, *The Sixth Asia-Pacific Conference of Theoretical and Computational Chemistry (APCTCC6)*, (Gyeongju(慶州), Korea), July 10-13, 2013.
2. “Linear-scaling electron-correlation theory for two-component relativistic Hamiltonian”, H. Nakai, *The VIIIth Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ISTCP-VIII)*, (Budapest, Hungary), August 25-31, 2013.
3. “材料科学のための量子化学計算”，中井浩巳，第23回コンピュータショナル・マテリアルズ・デザイン (CMD) ワークショップ，大阪大学豊中キャンパス(大阪)，2013年9月2~6日。
4. “化学的理解のための電子状態理論”，中井浩巳，第7回分子科学討論会，京都テルサ(京都)，2013年9月24~27日。
5. “Density functional study for weakly interacting systems: Recent development of local response dispersion method”, H. Nakai, *The First International Workshop on Computational Science and Engineering (IWCSE 2013)*, National Taiwan University (Taipei, Taiwan), October 14-17, 2013.
6. “New directions of divide-and-conquer electronic-structure calculations”, H. Nakai, *International Symposium on Computational Sciences: Simulations for Material and Biological Systems (ISCS2013)*, (Shanghai, China), November 18-20, 2013. **(Keynote)**
7. “Novel applications of nuclear orbital plus molecular orbital (NOMO) method”, H. Nakai, *The XVIII Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVIII)*, (Paraty, Rio de Janeiro, Brazil), December 1-7, 2013.

4-4 国内学会・国際会議等運営

1. 第16回理論化学討論会, 理論化学研究会・世話人, 2013年5月15日-17日, 福岡市健康づくりサポートセンター(あいれふ), 参加者184名.
2. The VIIIth Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ISTCP-VIII), Board of Directors, 2013年8月25日-31日, ハンガリー・ブダペスト, 参加者約450名.
3. 第7回分子科学討論会, 分子科学会・運営委員, 2013年9月24日-27日, 京都テルサ, 参加者約300名.
4. The XVIII Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVIII), International Scientific Committee, 2013年12月1日-7日, ブラジル・リオデジャネイロ, 参加者約100名.
5. 日本化学会第94回春季年会・アジア国際シンポジウム, 日本化学会 理論化学・情報化学・計算科学ディビジョン・主査, 2014年3月27日-30日, 名古屋大学(東山キャンパス), シンポジウム参加者約50名.