

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) 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、「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「京」コンピュータの利用に採択され、量子動力学計算プログラム DC-DFTB-K のさらなる高並列化・高効率化を行った。同時に、CO₂ の吸収過程及び放散過程のシミュレーションを行い、その反応メカニズムを明らかにした。

また、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」という研究公募に対しても、分子研を研究拠点として「重点課題：□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」に申請し、採択に至った。早稲田大学は分担機関と位置づけられ、今後、最長で平成 31 年度まで本プロジェクトを遂行することとなった。

(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、これらの方法に新たな機能を追加し、GAMESS プログラムの更新準備を行った。また、独自に開発した 2 成分相対論法についても新たに GAMESS プログラムに導入するための準備を行った。

(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、平成 25 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。その他、いくつかの国際会議においても諮問委員(Scientific Board)を務めてきた。これらの功績により平成 26 年 9 月には国際学会 WATOC (World Association of Theoretical and Computational Chemists)の理事(Board of Directors)、平成 26 年 11 月には英国王立化学会(Royal Society of Chemistry)のフェローに選ばれた。

(iv) グローバル COE 「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。

平成 26 年度は、「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」という研究題目で科学研究費 基盤研究(A)に研究代表者として採択され、研究を推進した。

3. 共同研究者

菊池 那明 (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)

西村 好史 (分子科学研究所・拠点研究員、理工学研究所・招聘研究員)

4. 研究業績**4-1 学術論文**

1. “Acceleration of self-consistent field convergence in ab initio molecular dynamics simulation with multi-configurational wave function”, M. Okoshi, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **35** (20), 1473–1480 (2014).
2. “Extension of accompanying coordinate expansion and recurrence relations method for general-contraction basis sets”, M. Hayami, J. Seino, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **35** (20), 1517–1527 (2014).

3. “Theoretical study on excess-electron transfer in DNA based on the Marcus theory”, Y. Takada, M. Okoshi, M. Hoshino, A. Ishikawa, M. Ishikawa, H. Nakai, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **13** (4), 242–249 (2014).
4. “Quantum chemical approach for condensed-phase thermochemistry: Proposal of a harmonic solvation model”, H. Nakai, A. Ishikawa, *J. Chem. Phys.*, **141** (17), 174106 (9 pages) (2014).
5. “Linear-scaling self-consistent field calculations based on divide-and-conquer method using resolution-of-identity approximation on graphical processing units”, T. Yoshikawa, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **36** (3), 164–170 (2014).
6. “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (V): Extension to excited state calculations”, Y. Imamura, K. Suzuki, T. Iizuka, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **618**, 30–36 (2015).
7. “Local response dispersion method in periodic systems: Implementation and assessment”, Y. Ikabata, Y. Tsukamoto, Y. Imamura, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **36** (5), 303–311 (2015).
8. “Effect of Hartree-Fock exact exchange on intramolecular magnetic coupling constants of organic diradicals”, D. Cho, K. C. Ko, Y. Ikabata, K. Wakayama, T. Yoshikawa, H. Nakai, J. Y. Lee, *J. Chem. Phys.*, **142** (2), 024318 (7 pages) (2015).
9. “Quantum chemical approach for condensed-phase thermochemistry (II): Applications to formation and combustion reactions of liquid organic molecules”, A. Ishikawa, H. Nakai, *Chem. Phys. Letters*, **624**, 6–11 (2015).
10. “Revisiting the extrapolation of correlation energies to complete basis set limit”, M. Okoshi, T. Atsumi, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **36** (14), 1075–1082 (2015).
11. “A divide-and-conquer method with approximate Fermi levels for parallel computations”, T. Yoshikawa, H. Nakai, *Theor. Chem. Acc.*, **134** (5), 53 (11 pages) (2015).

4-2 著書（総説を含む）

1. “1-4 相対論的量子化学”，中井浩巳，錯体化学会選書 10 「金属錯体の量子・計算化学」, 70–94 (共立出版, 2014).
2. “Large-scale relativistic quantum-chemical theory: Combination of the infinite-order Douglas-Kroll-Hess method with the local unitary transformation scheme and the divide-and-conquer method”, J. Seino, H. Nakai, *Int. J. Quant. Chem. (Perspective)*, 115 (5), 253–257 (2015). (Special Issue of Theoretical Chemistry in Japan)
3. “Local response dispersion method: a density-dependent dispersion correction for density functional theory”, Y. Ikabata, H. Nakai, *Int. J. Quant. Chem. (Tutorial Review)*, 115 (5), 309–324 (2015). (Special Issue of Theoretical Chemistry in Japan)
4. “キャリアイオンの脱溶媒和過程の理論的解析”，大越昌樹，中井浩巳，*Electrochemistry*, 82 (12), 1098–1101 (2014). (特集: 実験と理論のインタープレイによる新規機能性電解液開発)
5. “Energy expression of the chemical bond between atoms in hydrides and oxides and its application to materials design”, M. Morinaga, H. Yukawa, H. Nakai, pp. 183–213 in ‘*The DV-X α Molecular-Orbital Calculation Method*’, T. Ishii, H. Wakita, K. Ogasawara, Y. Kim (Eds.) (Springer, 2015).

4-3 招待講演

1. “Development of efficient two-component relativistic method for large systems”, H. Nakai, *The 11th International Conference on Relativistic Effects in Heavy-Element Chemistry and Physics (REHE-2014)*, (Smolenice Castle, Slovakia), September 20–24, 2014.

2. “Harmonic solvation model (HSM) for quantum chemical calculation of condensed-phase free energy”, H. Nakai, *The XIX Workshop on Quantum Systems in Chemistry, Physics and Biology (QSCP-XIX)*, (Tamsui, Taipei, Taiwan), November 11-17, 2014.
3. “Efficient two-component relativistic method for large systems”, H. Nakai, *11th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2015)*, (Metropolitan Hotel, Athens, Greece), March 20-23, 2015.
4. “量子化学・統計力学・熱力学：新しい凝縮系の自由エネルギー計算”，中井浩巳，第8回シンポジウム「革新的量子化学の展開」，キャンパスプラザ京都(京都)，2014年5月3日。
5. “凝縮系の熱力学に対する量子化学計算：調和溶媒和モデル(HSM)の開発と応用”，中井浩巳，先端化学・材料技術部会 コンピュータケミストリ分科会 次世代CCWG 次世代計算化学技術セミナー，一碧荘(日本ゼオン保養所)(伊東)，2014年8月21-22日。
6. “凝縮系の熱力学量の高精度量子化学計算”，中井浩巳，第37回情報化学討論会，豊橋商工会議所(豊橋)，2014年11月27-28日。
7. “量子化学における第2量子化の手法”，中井浩巳，第4回量子化学ウィンタースクール～大規模系を目指した基礎理論～，岡崎コンファレンスセンター(岡崎)，2014年12月15~16日。

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，2014年5月22日-24日，名古屋大学，参加者約200名，優秀講演賞・優秀ポスター賞を新設。
2. 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，2015年3月26日-29日，日本大学(船橋キャンパス)，シンポジウム参加者約50名，物理化学ディビジョンと共催。
3. Second China-Japan-Korea Tripartite Workshops on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-II), Steering Committee (Founding Member), 2015年1月20日-23日, RIKEN AICS (Kobe), 参加者約50名。