

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

(先進理工学部 化学・生命科学科 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、最終年度の研究取りまとめを行った。

また、本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：□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、TCCI のプロジェクトで開発してきた化学反応シミュレーションを行うための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 のさらなる高機能化・高効率化を行った。同時に、水溶液中でのプロトン(H^+)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。さらに、拡散係数の温度依存性から拡散障壁を求めることにも成功した。

(ii)世界標準の量子化学プログラムパッケージへの公開

本研究代表者は、世界的な量子化学計算プログラム GAMESS に、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)を実装した。公開予定の GAMESS プログラム・マニュアルでは、「LUT-IOTC 法は最も高精度で高効率な相対論法なので使用を強く推奨する」と紹介され、その評価の高さが伺える。

(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、環太平洋地域の化学会が連合 5 年ごとに開催する Pacificchem2015 において、2 つのシンポジウム(Synergistic Relationships between Computational Chemistry and Experiment (#9)、Practical Strategies for Modeling Non-Covalent Interactions(#372))の組織委員を務め、成功裏に終わった。また、平成 28 年 7 月に開催予定の第 9 回理論化学物理国際会議(ISTCP-VII)では組織委員として、シンポジウムの企画・提案、基調・招待講演者の推薦・決定を行った。

(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 として活動している。

(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。

(株) IHI 社との共同研究を発展させる形で NEDO『戦略的省エネルギー技術革新プログラム』に「次世代省エネルギー型 CO₂ 回収技術の実用化開発」という研究課題が採択され、研究分担者として参画した。

3. 共同研究者

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)

石川 敦之(理工学術院・理工学研究所・理工研が雇用する次席研究員)

王 祺(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)

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)

大越 昌樹(京都大学・特定研究員、理工学研究所・招聘研究員)

吉川 武司(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. “Accompanying coordinate expansion and recurrence relation method using a transfer relation scheme for electron repulsion integrals with high angular momenta and long contractions”, M. Hayami, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **142** (20), 204110 (13 pages) (2015).
2. “Theoretical analysis of the oxidation potentials of organic electrolyte solvents”, M. Okoshi, A. Ishikawa, Y. Kawamura, H. Nakai, *ECS Electrochemistry Letters*, **4** (9), A103–A105 (2015).
3. “Theoretical study of extremely long yet stable carbon-carbon bonds: Effect of attractive C··H interactions and small radical stabilization of diamondoids”, D. Cho, K. Y. Ikabata, T. Yoshikawa, J. Y. Lee, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **88** (10), 1636–1641 (2015). **(Selected Paper)**
4. “Divide-and-conquer-type density-functional tight-binding simulations of proton diffusion in a bulk water system”, H. Nakai, A. W. Sakti, Y. Nishimura, *J. Phys. Chem. B*, **120** (1), 217–221 (2016).
5. “Contrasting mechanisms for CO₂ absorption and regeneration processes in aqueous amine solutions: Insights from density-functional tight-binding molecular dynamics simulations”, H. Nakai, Y. Nishimura, T. Kaiho, T. Kubota, H. Sato, *Chem. Phys. Lett.*, **647**, 127–131 (2016).
6. “Quantum chemical approach for condensed-phase thermochemistry (III): Accurate evaluation of proton hydration energy and standard hydrogen electrode”, A. Ishikawa, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **650**, 159–164 (2016).

4-2 著書（総説を含む）

1. “分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学 (DC-DFTB-MD) 法の最近の展開” (Recent advances in divide-and-conquer density-functional tight-binding molecular dynamics simulations (DC-DFTB-MD)), 西村 好史, 海寶 丈彰, 中井 浩巳, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **14** (3), 43–46 (2015).
2. “大規模量子化学計算が拓く化学イノベーション”, 中井 浩巳, 早稲田理工 PLUS2015, 54–56?? (朝日新聞出版, 2015).
3. “多くの有機高分子に現れる蛍光の電子遷移過程” (Electronic transition process of fluorescence appearing in various organic polymers), 西川 聖也, 殿井 將史, 吉川 武司, 平井 直志, 中井 浩巳, 大木 義路, 電気学会論文誌 A(基礎・材料・共通部門誌)(IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials), **136** (4), 205–211 (2016).
4. “分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学 (DC-DFTB-MD) 法によるナノスケール系化学反応シミュレーション”, 西村 好史, 中井 浩巳, 分子シミュレーション研究会会誌“アンサンブル”, **18** (1), 印刷中 (2016).

4-3 招待講演（国際会議）

1. “Novel Approach for Condensed-Phase Thermochemistry: Proposal and Applications of Harmonic Solvation Model (HSM)”, H. Nakai, *Mini-symposium at Sungkyunkwan University (SKKU)*, Sungkyunkwan University, Suwon, Korea), April 22, 2015.
2. “Quantum Chemical Approach for Condensed-Phase Thermochemistry: Harmonic Solvation Model (HSM)”, H. Nakai, *Recent advances in electronic structure theory (RAEST2015: ICQC-2015 Satellite)*, (Nanjing, China), June 1-6, 2015.

3. “Development of Linear-Scaling Two-Component Relativistic Method with a Small Prefactor”, H. Nakai, *New Frontiers of Relativistic Quantum Chemistry (RQC-2015: ICQC-2015 Satellite)*, (Peking University, Beijing, China), June 13-16, 2015.
4. “Development of linear-scaling divide-and-conquer DFTB method”, H. Nakai, *Development of next generation accurate approximate DFT/B methods - Flagship workshop and tutorial*, (University of Bremen, Bremen, Germany), October 11-15, 2015.
5. “Computational study on CO₂ chemical absorption process: Thermodynamic and dynamic analyses”, H. Nakai, *The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2015)*, ‘Synergistic Relationships between Computational Chemistry and Experiment’ (#9), Honolulu (Hawaii, USA), December 15-20, 2015.
6. “Development of linear-scaling excited-state calculations: Divide-and-conquer approaches”, H. Nakai, *The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2015)*, ‘Recent Progress in Molecular Theory for Excited-state Electronic Structure and Dynamics’ (#142), Honolulu (Hawaii, USA), December 15-20, 2015.
7. “Development of linear-scaling divide-and-conquer based density-functional tight-binding (DC-DFTB) method suitable for massively parallel computation”, H. Nakai, *Seventh Asia-Pacific Conference of Theoretical and Computational Chemistry (APCTCC 7)*, (Kaohsiung, Taiwan), January 25-28, 2016.

4-4 招待講演 (国内学会)

1. “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(hp140164)” (優秀成果賞受賞講演), 中井浩巳, 第2回HPCI利用研究課題成果報告会, 日本科学未来館(東京), 2015年10月26日.
2. “材料機能設計への電子論計算の適用 ～電子論でどこまでわかるのか～”, 中井浩巳, 第2回元素戦略プロジェクト・大型研究施設連携シンポジウム, 東京大学本郷キャンパス伊藤国際学術研究センター(東京), 2016年1月21~22日.
3. “相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計”, 中井浩巳, 元素戦略/希少金属代替材料開発 第10回合同シンポジウム, 東京国際フォーラム(東京), 2016年2月23日.
4. “産業・実験との共同研究から 理論へのフィードバック ～CO₂分離・回収の研究を例に～”, 中井浩巳, 産応協、CMSI、ポスト京重点課題5・6・7合同 産学官連携シンポジウム, ステーションコンファレンス東京(東京), 2016年2月24日.
5. “周期表を網羅する線形スケーリングな相対論的量子化学の構築” (学術賞受賞講演), 中井浩巳, 日本化学会 第96春季年会 (2016), 同志社大学京田辺キャンパス(京都), 2016年3月24~27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. 日本コンピュータ化学会 2014 年度吉田賞(論文賞), 清野淳司, 中井浩巳, 「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」(平成27年5月29日).
3. 第18回理論化学討論会 優秀ポスター賞, 速水雅生(D1), 「重原子化合物の構造最適化計算のための高速な電子反発積分の微分計算アルゴリズムの開発」(平成27年6月10日).

4. 高度情報科学技術研究機構(RIST) 優秀成果賞, 中井浩巳, 「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 (hp140164)」(平成 27 年 10 月 26 日) .
5. Pacificchem 2015 Student Poster Competition Award, 中野匡彦(D2), “Relativistic open-shell Hartree-Fock theory with time-reversal symmetry” (平成 27 年 12 月 18 日) .
6. APCTCC 7 Superior Oral Award, 中嶋裕也(D2), “Implementation of efficient infinite-order two-component relativistic scheme into GAMESS” (平成 28 年 1 月 27 日) .
7. APCTCC 7 Superior Poster Award, 速水雅生(D1), “Efficient evaluation of electron repulsion integral and its derivative for molecules including heavy elements” (平成 28 年 1 月 27 日) .
8. 日本化学会第 33 回学術賞, 中井浩巳, 「周期表を網羅する線形スケーリングな相対論的量子化学の構築」(平成 27 年 3 月 26 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 27 年度) .
5. 文部科学省 HPCI 戦略プログラム 『計算物質科学イニシアティブ(CMSI)』, 第 3 部会 『分子機能と物質変換』, 特別支援課題 3 「ナノ・生体系の反応制御と化学反応ダイナミックス」(特別支援課題代表, 平成 27 年度) .
6. 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 27 年度) .
7. 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) .