

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・生命化学科 教授)

1. 研究課題

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」(16P14)および「計算化学の社会実装」(17P23)の年次報告を参照されたい。

重点教員研究(第2期)としては、学術的な活動に加えて、以下の5点の目標を設定している。

(i) 元素戦略を基軸とした国家プロジェクトの実施, (ii) 早稲田大学発の量子化学計算プログラムの開発・公開・運用, (iii) 産業界における理論化学の普及, (iv) 分子モデリングセンターの設立, (v) 理論化学におけるアジア拠点の形成。以下に具体的な成果を示す。

2. 主な活動実績

(i) 元素戦略を基軸とした国家プロジェクトの実施

研究代表者として、平成24年度よりJST CREST『元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出』において研究課題“相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計”を遂行してきた。今年度は5年半の研究を総括すべく研究総括および研究アドバイザーによる最終審査に臨んだ。そして、最高評価であるA+の評価を平成24年度より受けることができた。

平成24年度より進めている文部科学省 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』においては、第3期を迎えるにあたってセカンドキックオフミーティングに臨み、これまでの研究の総括と今後の研究計画を示した。

(ii) 早稲田大学発の量子化学計算プログラムの開発・公開・運用

JST CRESTで開発を進めてきた相対論的量子化学計算プログラム RAQET を物質科学シミュレーションのポータルサイトである MateriApps にて公開した (<http://ma.cms-initiative.jp/ja/listapps/RAQET>)。また、多くのユーザーが RAQET を容易に使うことができるように、量子化学計算のための Graphical User Interface (GUI)の一つである Winmostar と連携し、インプットファイル作成の補助や計算結果の可視化を可能にした。さらに、現在 RAQET に関する論文を Journal of Computational Chemistry 誌の Software News and Updates に投稿中である。

「京」コンピュータのプロジェクトで開発した大規模量子力学的分子動力学プログラム「DC-DFTB」を GUI である Winmostar と連携し、一般に公開した。さらにこの超並列版プログラムである「DC-DFTB-K」は、ポスト「京」コンピュータのプロジェクトにより、その機能および性

能を向上させるべくプログラム開発・改良を進めている。

(iii) 産業界における理論化学の普及

産業界との共同研究として、CO₂ 分離回収貯蔵 (CCS) に関する研究、水素キャリアーに関する研究、リチウムイオン電池および燃料電池に関する研究を進めた。また、電子材料開発に関する研究に対しては、研究指導を行った。

(iv) 分子モデリングセンターの設立

表記センターの設立に向けて、大学における研究サポート体制の必要性を粘り強くアピールし続けている。

(v) 理論化学におけるアジア拠点の形成

2012 年に設立者の 1 人として立ち上げた中日韓理論・計算化学ワークショップ (China-Japan-Korea Tripartite Workshop of Theoretical and Computational Chemistry; CJK-WTCC) の代表に就任した。今後、開催される中国 (南京)、日本、韓国でのワークショップにおいて中堅・若手研究者が真に交流できるように組織運営に従事していく。

また、2018 年からはアジア環太平洋理論・計算化学者連合 (Asia-Pacific Association of Theoretical & Computational Chemists; APATCC) のボードメンバーに加わった。ここでは、日本、中国、韓国のみならず、オーストラリア、ニュージーランド、インド、シンガポール、タイ、台湾などの研究者との交流に尽力していく。

3. 共同研究者

清野 淳司 (理工学術院・理工学術院総合研究所・理工総研が募集する次席研究員)

五十幡 康弘 (理工学術院・理工学術院総合研究所・次席研究員)

王 祺 (理工学術院・理工学術院総合研究所・次席研究員)

西村 好史 (理工学術院・理工学術院総合研究所・次席研究員)

小野 純一 (理工学術院・理工学術院総合研究所・次席研究員)

周 建斌 (理工学術院・理工学術院総合研究所・次席研究員)

吉川 武司 (理工学術院・化学・生命化学科・助教)

大越 昌樹 (理工学術院・化学・生命化学科・助手)

Toni Maier (日本学術振興会 (JSPS)・外国人特別研究員)

4. 研究業績

4.1 学術論文

- (1) “Relativistic density functional theory with picture-change corrected electron density based on infinite-order Douglas-Kroll-Hess method”, T. Oyama, Y. Iwabata, S. Seino, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **680**, 37-43 (2017). (DOI: [10.1016/j.cplett.2017.05.023](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2017.05.023))
- (2) “Near-infrared absorption of π -stacking columns composed of trioxotriangulene neutral radicals”, Y. Iwabata, Q. Wang, T. Yoshikawa, A. Ueda, T. Murata, K. Kariyazono, M. Moriguchi, H. Okamoto, Y. Morita, H. Nakai, *npj Quantum Materials*, **2**, 27 (2017). (DOI: [10.1038/s41535-017-0033-8](https://doi.org/10.1038/s41535-017-0033-8))
- (3) “Electrocatalytic synthesis of ammonia by surface proton hopping”, R. Manabe, H. Nakatsubo, A. Gondo, K. Murakami, S. Ogo, H. Tsuneki, M. Ikeda, A. Ishikawa, H. Nakai, Y. Sekine, *Chemical Science*, **8** (??), 5434-5439 (2017). (DOI: [10.1039/c7sc00840f](https://doi.org/10.1039/c7sc00840f))
- (4) “Density functional theory analysis of elementary reactions in NO_x reduction on Rh surface and Rh

- clusters”, F. Deushi, A. Ishikawa, H. Nakai, *J. Phys. Chem. C*, **121** (28), 15272-15281 (2017). (DOI: [10.1021/acs.jpcc.7b04526](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.7b04526))
- (5) “Computerized implementation of higher-order electron-correlation methods and their linear-scaling divide-and-conquer extensions”, M. Nakano, T. Yoshikawa, S. Hirata, J. Seino, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **38** (29), 2520-2527 (2017). (DOI: [10.1002/jcc.24912](https://doi.org/10.1002/jcc.24912))
 - (6) “Divide-and-conquer density-functional tight-binding molecular dynamics study on the formation of carbamate ions during CO₂ chemical absorption in amine solutions”, A. Sakti, Y. Nishimura, H. Sato, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **90** (11), 1230-1235 (2017). (DOI: [10.1246/bcsj.20170142](https://doi.org/10.1246/bcsj.20170142))
 - (7) “Parallel implementation of efficient charge–charge interaction evaluation scheme in periodic divide-and-conquer density-functional tight-binding calculations”, Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Comput. Chem.*, **39** (2), 105-116 (2017). (DOI: [10.1002/jcc.25086](https://doi.org/10.1002/jcc.25086))
 - (8) “Catalytic performance of Ru, Os, and Rh nanoparticles for ammonia synthesis: A density functional theory analysis”, A. Ishikawa, T. Doi, H. Nakai, *J. Catal.*, **357**, 213-222 (2017). (DOI: [10.1016/j.jcat.2017.11.018](https://doi.org/10.1016/j.jcat.2017.11.018))
 - (9) “Rigorous pKa estimation of amine species using density-functional tight-binding-based metadynamics simulations”, A. Sakti, Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Chem. Theory Comput.*, **14** (1), 351-356 (2018). (DOI: [10.1021/acs.jctc.7b00855](https://doi.org/10.1021/acs.jctc.7b00855))
 - (10) “Density-functional tight-binding molecular dynamics simulations of excess proton diffusion in ice I_h, Ice I_c, Ice III, and melted ice VI phases”, A. Sakti, Y. Nishimura, C. Chou, H. Nakai, *J. Phys. Chem. A*, **122** (1), 33-40 (2018). (DOI: [10.1021/acs.jpca.7b10664](https://doi.org/10.1021/acs.jpca.7b10664))
 - (11) “Electron-hopping brings lattice strain and high catalytic activity in low temperature oxidative coupling of methane in an electric field”, S. Ogo, H. Nakatsubo, K. Iwasaki, A. Sato, T. Yabe, A. Ishikawa, H. Nakai, Y. Sekine, *J. Phys. Chem. C*, **122** (4), 2089-2096 (2018). (DOI: [10.1021/acs.jpcc.7b08994](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.7b08994))
 - (12) “Semi-local machine-learned kinetic energy density functional with third-order gradients of electron density”, J. Seino, R. Kageyama, M. Fujinami, Y. Iwabata, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **148** (24), 241705 (13 pages) (2018). (DOI: [10.1063/1.5007230](https://doi.org/10.1063/1.5007230))
 - (13) “Theoretical analysis of carrier ion diffusion in superconcentrated electrolyte solutions for sodium-ion batteries”, M. Okoshi, C.-P. Chou, H. Nakai, *J. Phys. Chem. B*, **122** (9), 2600-2609 (2018). (DOI: [10.1021/acs.jpcc.7b10589](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.7b10589))
 - (14) “Gauge-origin independent formalism of two-component relativistic framework based on unitary transformation in nuclear magnetic shielding constant”, M. Hayami, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **148** (11), 114109 (8 pages) (2018). (DOI: [10.1063/1.5016581](https://doi.org/10.1063/1.5016581))
 - (15) “Simulations of synthesis of the boron-nitride nanostructures in a hot, high pressure gas volume”, P. S. Krstic, L. Han, S. Irle, H. Nakai, *Chemical Science*, in press. (DOI: [10.1039/c8sc00667a](https://doi.org/10.1039/c8sc00667a))
 - (16) “Derivative of electron repulsion integral using accompanying coordinate expansion and transferred recurrence relation method for long contraction and high angular momentum”, M. Hayami, J. Seino, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* in press. (DOI: [10.1002/qua.25640](https://doi.org/10.1002/qua.25640))

4.2 総説・著書

- (1) “量子化学計算のコツ（基礎編）”, 中井浩巳, *応用物理*, **86** (8), 720-724 (2017).
- (2) “量子化学計算のコツ（実用編）”, 中井浩巳, *応用物理*, **86** (9), 802-807 (2017).

- (3) “調和溶媒和モデル(HSM)を用いた凝縮系の自由エネルギー計算” (Harmonic solvation model (HSM) for evaluation of condensed-phase free energy), 中井 浩巳, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **16** (4), 83-88 (2017). (DOI: [10.2477/jccj.2017-0038](https://doi.org/10.2477/jccj.2017-0038))
- (4) “基礎研究と応用研究～理論化学の社会実装に向けて”, 中井浩巳, 化学と工業, **70** (10), 928-930 (2017).
- (5) “インフォマティクスとの融合による理論化学研究”, 清野淳司, 中井浩巳, 化学工業, **69** (1), 53-58 (2018).
- (6) “ジブチルヒドロキシトルエンにおける遠赤外吸収 ～測定と量子化学計算によるスペクトル同定～”, 遠藤滉士, 香西拓哉, 吉川武司, 中井浩巳, 大木義路, 電気学会誘電・絶縁材料研究会資料, **DEI-17-100**, 23-28 (2017)
- (7) “分割統治型密度汎関数強束縛 (DC-DFTB) 法に対する最近の開発と応用”, 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”, **20** (1), 18-23 (2018).
- (8) “A perspective on density-functional tight-binding parameterization towards transition metals”, C.-P. Chou, H. Nakai, 分子シミュレーション研究会会誌“アンサンブル”, **20** (1), 8-17 (2018).
- (9) “特集「DFTB」:「特集にあたって」”, 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”, **20** (1), 7 (2018).

4.3 招待講演

(海外学会)

- (1) “Chemical Reaction Simulations treated by Linear-Scaling Divide-and-Conquer type Density-Functional based Tight-Binding Molecular Dynamics (DC-DFTB-MD) Method”, H. Nakai, *253rd ACS National Meeting & Exposition*, San Francisco (California, USA), April 2-7, 2017.
- (2) “Large-Scale Chemical Reaction Simulations by Divide-and-Conquer Density-Functional Tight-Binding Molecular Dynamics Method”, H. Nakai, *2017 Korea-Japan Molecular Science Symposium ‘Frontiers in Molecular Science: Structure, Dynamics, and Function of Molecules and Complexes’*, Haeundae Tivoli Hotel (Busan, Korea), July 10-12, 2017.
- (3) “Relativistic density functional theory with picture-change corrected electron density based on infinite-order Douglas-Kroll-Hess method”, H. Nakai, *17th International Conference on Density-Functional Theory and its Applications (DFT2017)*, Tällberg (Dalarna, Sweden), August 21-25, 2017.
- (4) “Chemical Reaction Simulations on CO₂ Chemical Absorption Process”, H. Nakai, *11th Triennial Congress of the World Association of Theoretical and Computational Chemists (WATOC 2017)*, (Munich, Germany), August 27-September 1, 2017.
- (5) “Quantum Chemistry Meets Artificial Intelligence”, H. Nakai, *Eighth Asia-Pacific Conference of Theoretical and Computational Chemistry (APCTCC 8)*, (Mumbai, India), December 15-17, 2017.

(国内学会)

- (1) “インフォマティクスとの融合による理論化学研究の推進”, 中井浩巳, 日本化学会関東支部主催講演会「マテリアルズ・インフォマティクスとAIを用いたものづくり」, 化学会館(お茶の水), 2017年9月29日.

- (2) “データ科学は理論化学に何をもたらすか”, 中井浩巳, 日本コンピュータ化学会 2017 秋季年会 プレシンポジウム, 熊本大学黒髪キャンパス(熊本), 2017 年 10 月 20 日.
- (3) “元素戦略のための相対論的量子化学”, 中井浩巳, MEXT-JST 元素戦略合同シンポジウム ～元素戦略研究の歩みと今後～, JP タワーホール(東京), 2018 年 2 月 20 日.

4.4 受賞・表彰

- (1) 日本化学会第 97 春季年会 優秀講演賞(学術), 西村 好史(次席研究員), “Linear-scaling quantum mechanical molecular dynamics simulations with divide-and-conquer density-functional tight-binding method”.
- (2) 日本コンピュータ化学会 2017 春季年会, 日本コンピュータ化学会(SCCJ)奨学賞, Aditya Wibawa Sakti (D3), "Accurate pKa Evaluation by Metadynamics Simulation at the Density-Functional Tight-Binding Level".
- (3) 第 11 回分子科学討論会 2017 分子科学会優秀講演賞, 大山 拓郎 (M2)「局所ユニタリー変換を用いた効率的な 2 成分相対論的密度汎関数理論の開発」.
- (4) 第 7 回 CSJ 化学フェスタ 2017 優秀ポスター発表賞, 影山 棕 (M1)「Orbital-free 密度汎関数理論のための機械学習を用いた運動エネルギー汎関数の開発」.
- (5) 第 31 回分子シミュレーション討論会 学生優秀発表賞, 河本奈々 (B4)「分割統治型励起状態密度汎関数強束縛法を用いた光活性イエロータンパク質に関する理論的研究」.
- (6) APCTCC8, Best Poster Award (ACS Omega) Minori Imai (M2), “DC-DFTB-metadynamics simulations for the primary proton transfer of bacteriorhodopsin”.
- (7) 早稲田大学先進理工学部化学・生命化学科 2017 年度卒業研究発表賞, 河本奈々 (B4)「光受容タンパク質の機構解明に向けた分割統治型時間依存密度汎関数強束縛法の開発」.
- (8) 第 121 回触媒討論会 学生ポスター発表賞, 平井貴裕 (M2)「Rh 表面での NO-CO 反応の温度・圧力依存性に関する理論的検討」.

4.5 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 29 年度).