

# 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  
(理工学術院総合研究所 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

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(ESICB)』においては、最終の第3期に入った。触媒研究では、田中庸裕教授(京都大学 ESICB 拠点長, 触媒 GL)との共同研究を開始すべく、講演会を含む意見交換会(2019年2月28日)を実施した。電池研究では、山田淳夫教授(東京大学 ESICB 電池 GL)との共同研究を4月より開始した。開始にあたって、東京大学化学システム工学専攻公開セミナーで講演を行った。その後、月1回程度のペースで山田研究室のメンバーとの打ち合わせを行った。その成果は論文としてまとめ、学術誌(*Angew. Chem. Int. Ed.*)に投稿した。

#### (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

「京」およびポスト「京」コンピュータのプロジェクトで開発中の超並列計算により大規模量子化学計算を実現するプログラム DC-DFTB-K を分子動力学シミュレーション向けにカスタマイズしたプログラム DCDFTBMD を開発・整備した。そして、2018年11月よりアカデミックフリーとして DCDFTBMD プログラムの公開を開始した。特に、プログラム入手のための専用ホームページを開設し、登録・ダウンロード・環境設定などユーザーの利便性を考慮した内容とした。2019年3月末時点で40件以上の利用希望登録があり、審査後、国内外の約20の学術機関にプログラムを配布した。また、DCDFTBMD プログラムの理論的背景、プログラムの性能、計算の具体例を英語および日本語の解説論文としてまとめた。

JST CREST “相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計”(平成24-29年度)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 についても、アカデミックフリーとして公開すべく準備を進めた。また、RAQET プログラムの理論的背景、プログラムの性能、計算の具体例を英語の解説論文としてまとめた。

### (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、CO<sub>2</sub> 分離回収貯蔵 (CCS) に関する研究に関する研究を進めた。また、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

表記センターの機能が物性計測センター内に展開されるようになり、必要に応じて意見交換などを行っている。

### (v) 理論化学におけるアジア拠点の形成

代表を務めている中日韓理論・計算化学ワークショップ(China-Japan-Korea Tripartite Workshop of Theoretical and Computational Chemistry; CJK-WTCC)では、第4回会合を南京大学で実施した(2019年1月9-12日)。会議の最後にパネルディスカッションを行い、本ワークショップの今後の活動方法、3ヶ国の協力体制の在り方、ダイバーシティの問題などを議論した。

ボードメンバーを務めているアジア環太平洋理論・計算化学者連合(Asia-Pacific Association of Theoretical & Computational Chemists; APATCC)では、2019年9月に開催される第9回会議の招待講演者について推薦を行った。

今後も、これらの活動を通して、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はかり、理論化学におけるアジア拠点の形成に寄与していきたいと考えている。

## 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・理工総研次席研究員)

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・講師)

大越 昌樹 (理工学術院・化学・生命化学科・助教)

Toni Maier (日本学術振興会 (JSPS)・外国人特別研究員)

Aditya Wibawa Sakti (京都大学・触媒・電池元素戦略ユニット (ESICB)・特定研究員)

## 4. 研究業績

### 4.1 学術論文

- (1) M. Tarumi, H. Nakai, Quantum chemical approach for condensed-phase thermochemistry (V): Development of rigid-body type harmonic solvation model, *Chem. Phys. Lett.*, **700**, 149-155 (2018). (DOI: 10.1016/j.cplett.2018.04.006)
- (2) M. Kunimoto, D. Bothe, R. Tamura, T. Oyanagi, Y. Fukunaka, H. Nakai, T. Homma, Spectroscopic and computational analyses of liquid-liquid interfacial reaction mechanism of boric acid esterification with 2,2,4-trimethyl-1,3-pentanediol in boron extraction processes, *J. Phys. Chem. C*, **122**, 10423-10429 (2018). (DOI: 10.1021/ace.jpcc.8b01086)

- (3) Y. Ikabata, R. Aiba, T. Iwanade, H. Nishizawa, F. Wang, H. Nakai, Quantum chemical approach for positron annihilation spectra of atoms and molecules beyond plane-wave approximation, *J. Chem. Phys.* **148**, 184110 (2018). (DOI: 10.1063/1.5019805)
- (4) M. Hayami, J. Seino, Y. Nakajima, M. Nakano, Y. Ikabata, T. Yoshikawa, T. Oyama, K. Hiraga, S. Hirata, H. Nakai, RAQET: Large-scale two-component relativistic quantum chemistry program package, *J. Comput. Chem.*, **39**, 2333-2344 (2018). (DOI: 10.1002/jcc.25364)
- (5) S. Manabe, T. Yabe, A. Nakano, S. Nagatake, T. Higo, S. Ogo, H. Nakai, Y. Sekine, Theoretical investigation on structural effects of Pt-Mn catalyst on activity and selectivity for methylcyclohexane dehydrogenation, *Chem. Phys. Lett.*, **711**, 73-76 (2018). (DOI: 10.1016/j.cplett.2018.09.026)
- (6) T. Yoshikawa, H. Nakai, Fractional-occupation-number based divide-and-conquer coupled-cluster theory, *Chem. Phys. Lett.*, **712**, 184-189 (2018). (DOI: 10.1016/j.cplett.2018.09.056)
- (7) H. Nakai, M. Inamori, Y. Ikabata, Q. Wang, Unveiling controlling factors of the  $S_0/S_1$  minimum energy conical intersection: A theoretical study, *J. Phys. Chem. A*, **122**, 8905-8910 (2018). (DOI: 10.1021/acs.jpca.8b07864)
- (8) K. Murakami, Y. Tanaka, R. Sakai, K. Toko, K. Ito, A. Ishikawa, T. Higo, T. Yabe, S. Ogo, M. Ikeda, H. Tsuneki, H. Nakai, Y. Sekine, The important role of  $N_2H$  formation energy for low-temperature ammonia synthesis in an electric field, *Catal. Today*, in press (2018). (DOI: 10.1016/j.cattod.2018.10.055)
- (9) N. Komoto, T. Yoshikawa, J. Ono, Y. Nishimura, H. Nakai, Development of large-scale excited-state calculations based on the divide-and-conquer time-dependent density functional tight-binding method, *J. Chem. Theory Comput.*, **15**, 1719-1727 (2019). (DOI: 10.1021/acs.jctc.8b01214)
- (10) Y. Nishimura, H. Nakai, DCDFTBMD: Divide-and-conquer density functional tight-binding program for huge-system quantum mechanical molecular dynamics simulations, *J. Comput. Chem.* **40**, 1538-1549 (2019). (DOI: 10.1002/jcc.25804)
- (11) Y. Onabuta, M. Kunimoto, H. Nakai, T. Homma, First-principle study of the oxidation mechanism of formaldehyde and hypophosphite for copper and nickel electroless deposition process, *Electrochim. Acta*, **307**, 536-542 (2019). (DOI: 10.1016/j.electacta.2019.03.150)
- (12) Y. Ikabata, T. Oyama, M. Hayami, J. Seino, H. Nakai, Extension and acceleration of relativistic density functional theory based on transformed density operator, *J. Chem. Phys.* **150**, 164104 (2019). (DOI: 10.1063/1.5090523)

## 4.2 総説・著書

- (1) 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, “理論化学とインフォマティクスの融合による反応設計”, *化学と工業*, **71**, 653-655 (2018).
- (2) 稲森真由, 五十幡康弘, 王祺, 中井浩巳, “ポテンシャルエネルギー曲面の交差構造に関する理論的研究”, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **17**, 124-126 (2018). (DOI: 10.2477/jccj.2018-0021)
- (3) 河本奈々, 吉川武司, 小野純一, 中井浩巳, “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”, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **17**, 127-129 (2018). (DOI: 10.2477/jccj.2018-0032)
- (4) C.-P. Chou, A. W. Sakti, Y. Nishimura, H. Nakai, “Development of divide-and-conquer density-functional tight-binding method for theoretical research on Li-ion battery”, *Chem. Rec.*, **19**,

746-757 (2019). (DOI: 10.1002/tcr.201800141)

- (5) 平井貴裕, 大越昌樹, 石川敦之, 中井浩巳, “Rh 表面における NO-CO-O<sub>2</sub> 反応の温度および圧力に対する依存性の理論的解析”, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **18**, 70-77 (2019). (DOI: 10.2477/jccj.2018-0035)
- (6) 西村好史, 吉川武司, 中井浩巳, “DCDFTBMD プログラムの公開”, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **17**, A21-A27 (2018). (DOI: 10.2477/jccj.2018-0052)
- (7) 土井俊輝, 吉川武司, 中井浩巳, “分割統治法に基づく有限温度型単参照静的相関手法”, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **17**, 212-214 (2018). (DOI: 10.2477/jccj.2018-0057)
- (8) 安藤耕司, 中井浩巳, “化学の基本シリーズ③物理化学”, 化学同人 (2019).
- (9) 藤波美起登, 清野淳司, 中井浩巳, “人工知能を用いた化学反応の予測と反応条件の最適化”, マテリアルズインフォマティクスによる材料開発と活用集, 第 8 章第 1 節, 379-384, 技術情報協会 (2019).

### 4.3 招待講演

#### (海外学会)

- (1) “What is the Best Choice of Embedding-Fragmentation Scheme for Practical Quantum Chemical Simulation?”, H. Nakai, 16th International Congress of Quantum Chemistry (16-ICQC), Menton, France, June 18-23, 2018.

#### (国内学会)

- (1) “大規模化学反応シミュレーション手法の開発とその応用～分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学 (DC-DFTB-MD) 法を中心に～”, 中井浩巳, 東京大学第 319 回化学システム工学専攻公開セミナー, 東京大学本郷キャンパス(東京), 2018 年 4 月 10 日.
- (2) “大規模化学反応シミュレーション手法の実現に向けて～分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学(DC-DFTB-MD)法の開発と応用～”, 中井浩巳, 東工大講演会, 東京工業大学すずかけ台キャンパス (東京), 2018 年 6 月 12 日.
- (3) “計算化学とインフォマティクスに関する基礎講座”, 中井浩巳, 顔料物性講座, 東京塗料会館 (東京), 2018 年 11 月 17 日.
- (4) “表面触媒反応に対する大規模シミュレーション”, 中井浩巳, 2018 年日本表面真空学会学術講演会, 神戸国際会議場 (兵庫), 2018 年 11 月 20 日.
- (5) “大規模化学反応シミュレーションプログラム DCDFTBMD の開発と応用”, 中井浩巳, スーパーコンピュータワークショップ 2018 「理論・計算科学の挑戦: 量子化学とシミュレーションからの展望」, 分子科学研究所岡崎コンファレンスセンター (愛知), 2019 年 1 月 17 日.
- (6) “データ科学と理論・計算化学の融合”, 中井浩巳, 日本化学会第 99 春季年会, 甲南大学岡本キャンパス (兵庫), 2019 年 3 月 17 日.

### 4.4 受賞・表彰

- (1) 第 21 回理論化学討論会 最優秀ポスター賞, 河本奈々(M1), “分割統治型時間依存密度汎関数強束縛法に基づく大規模励起状態ダイナミクス”.
- (2) 日本コンピュータ化学会 2018 春季年会 日本コンピュータ化学会(SCCJ)奨学賞, 河本奈々(M1), “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”.

- (3) 新化学技術推進協会 第7回新化学技術研究奨励賞, 吉川武司(講師), “光受容タンパク質の機能解明を目指した大規模励起状態ダイナミクス手法の開発とその応用”.
- (4) 第41回ケモインフォマティクス討論会 ポスター賞, 藤波美起登(D2), “反応予測に寄与する量子化学的記述子の解析”.
- (5) 第32回分子シミュレーション討論会 学生優秀発表賞, 岡田千果(B4), “バクテリオロドプシンの長距離プロトン移動過程に対する DC-DFTB-MD シミュレーション”.
- (6) 早稲田大学稲化会 2018 年度関根吉郎賞, 影山椋(M2), “機会学習型運動エネルギー汎関数による軌道非依存密度汎関数理論の開発”.

#### 4.5 外部資金

- (1) 日本学術振興会(JSPS) 科学研究費補助金 基盤研究(Step ), 「光受容タンパク質の量子的分子動力学シミュレーションによる遍在プロトンの機能解明」(研究代表, 2018-2022 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, 2014-2018 年度).
- (3) 日本学術振興会(JSPS) 科学研究費補助金 特別研究員奨励費, 「相対論的2成分法に対する新しいハイブリッド密度汎関数の開発」(研究代表, 2017-2019 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, 2018 年度).