

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2007～2010

課題番号：19350007

研究課題名(和文) 次世代分子理論による超分子科学の展開

研究課題名(英文) An Application of Next-Generation Molecular Theory to Supramolecular Science

研究代表者

中嶋 隆人 (Nakajima Takahito)

独立行政法人理化学研究所・次世代分子理論特別研究ユニット・副ユニットリーダー

研究者番号：10312993

研究代表者の専門分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：理論化学, 超分子科学, 次世代分子理論, 大規模分子理論, プログラム開発, 次世代スーパーコンピュータ

1. 研究計画の概要

従来の分子理論に対してブレイクスルーを達成することで、大規模分子系である超分子を化学的精度で定量的に取り扱える分子理論を展開し、この「次世代分子理論」に先導された超分子の分子設計と反応制御を実現する。「理論超分子科学」という理論先導の超分子科学を開拓する。具体的には、大規模分子計算を実現するため、系のサイズの増加に対しスケラブルに計算可能な第一原理分子理論を新たに開発する。さらに、開発した大規模系分子理論を用いて超分子系の自己集合、分子認識、機能発現のメカニズムを解明し、その一般的な指導原理を実験に先行して確立する。

2. 研究の進捗状況

(1) 大規模分子計算のための線形スケリング計算法の開発

大規模な分子系の計算を実現するために、分子の大きさに対して Coulomb 積分の計算時間が線形スケリングで比例する Gauss 型-有限要素 Coulomb (GFC) 法という方法を開発した。また、超分子系の化学反応の解明を行うために、その解析的エネルギー微分法を開発した。超分子系では重原子を含むことで面白い機能を発現するが、大規模な重原子分子系の大規模計算を実現するために、GFC 法を相対論的分子理論へと拡張している。これにより、重原子効果とスピン-軌道効果のふたつの相対論効果を同時に取り扱いながらも、大規模な重原子分子計算を可能にすることができる。

(2) 大規模分子計算のための高速計算法の開発

大規模な分子計算を高速に実現するため、dual-level 密度汎関数法 (DFT) とよぶ DFT 計算の新しい近似理論を開発した。dual-level DFT は、計算時間を要する SCF の手続きを避ける新しい近似理論である。大幅な高速計算が実現できる一方で、得られる結果は従来の DFT の結果と遜色がない。さらに、この方法の相対論への拡張や超分子系の化学反応の解明を行うために、その解析的エネルギー微分法も開発した。

(3) 大規模分子計算の解析法の開発

超分子のような大規模分子系の分子軌道計算の結果を効率的に解析することのできる理論的なアプローチを開発した。この方法は、フロンティア分子軌道論を拡張したものである。フロンティア軌道法の立場から大規模な分子系の化学反応に対する理論的解釈を与えるだけでなく、分子論から新規物質の創出を実現することができる。

(4) 固体 NMR 計算のための新しい理論的アプローチの開発

超分子の構造決定には固体 NMR がしばしば用いられる。しかしながら、固体 NMR は幅広く複雑な形状のスペクトルをもつため、同定に曖昧さが残る。実験を補うため、NMR 計算に対する量子化学と固体物理のアプローチを融合させ、両者の欠点を補い、長所を活かすことにより、固体 NMR に対する信頼性の高い理論的計算スキームを提案した。

(5) 次世代分子理論プログラム「NTChem」の開発

上記の独自の分子理論をもとにして、次世代スーパーコンピュータ上で十分な性能を発揮できるプログラムパッケージ「NTChem」を開発している。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

大規模分子理論の開発とそのプログラムの作成は順調にすすんでいる。また、超分子における機能発現の機構を分子論から解明するための方法も開発済みである。さらに、最近、スピン軌道相互作用を含む十分な相対論効果を考慮することのできる大規模分子理論もほぼ完成しており、期間内での完成のめどがたった。

4. 今後の研究の推進方策

これまでわれわれが独自に開発をすすめてきた大規模分子理論をさらに発展させ展開することで、次世代スーパーコンピュータの性能を十分引き出すことのできる大規模分子理論とそのプログラムパッケージを完成させる。目標は、数千原子から数万原子を含む超分子のような大規模な分子系の第一原理計算を可能にすることである。大規模な分子計算の実現には、計算機の並列化計算が必要となってくる。われわれが開発してきた大規模分子理論は、系のサイズの増加に対しリニアなスケールリングを示す理論である。それと同時に並列化効率が悪い直接対角化などの計算が不要であるため、理論上計算機の並列化効率が非常によいものになっている。例えば、現在のところGFC法はSMP計算機に対するOpen MPによる並列化しか実装していないが、得られている結果から外挿すると、600残基のタンパク質であるインスリンの12量体(9522原子)のDFT計算を32CPUの並列化により2日、512CPUの並列化では3時間で計算することが可能になる。この大きさの分子計算は、これまでに第一原理計算されたもっとも大きな分子の2倍にあたり、その計算が32CPUで3週間程度かかっていることを考えると大規模分子のシミュレーションに大きな進歩をもたらすことになる。massiveな並列計算機に対するGFC法およびDual-level DFT法の並列アルゴリズムを完成させ、プログラムに実装することで、数万原子系の超分子の第一原理計算という未踏の理論計算を実現したい。また、残りの期間中にこれらの方法論をさらに進展させ、実際の超分子系での化学反応の解明を試みる。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計11件)

Kurashige, Y.; Nakajima, T.; Kurashige, S.; Hirao, K.; Nishikitani, Y.,

“Theoretical investigation of the Excited States of Coumarin Dyes for Dye-Sensitized Solar Cells”, J. Phys. Chem. A, 111, 5544-5548 (2007). (査読有)
Watson, M. A.; Kurashige, Y.; Nakajima, T.; Hirao, K., “Linear-scaling multipole-accelerated Gaussian and finite-element Coulomb method”, J. Chem. Phys. 128, 054105 (2008). (査読有)
Ishikawa, S.; Nakajima, T., “The reaction of N_2O_5 with H_3O^+ : A first-principles direct molecular dynamics study of acid-catalyzed reactive uptake of N_2O_5 ”, Int. J. Quantum Chem. 109, 2143 (2009). (査読有)

Tsuji, T.; Onoda, M.; Otani, Y.; Ohwada, T.; Nakajima, T.; Hirao, K., “Theoretical Study on the Excited States of Heteroarene Chromophores: Comparison of Calculated and Experimental Values”, Chem. Phys. Lett. 473, 196 (2009). (査読有)

Nakatsuka, Y.; Nakajima, T.; Nakata, M.; Hirao, K., “Relativistic quantum Monte Carlo method using zeroth-order regular approximation Hamiltonian”, J. Chem. Phys. 132, 054102 (2010). (査読有)

[学会発表] (計11件)

中嶋隆人, “次世代分子理論 - 相対論効果と大規模計算 -”, Dmol3アドバンスドトレーニング, 東京, 2008年1月。

中嶋隆人, 第14回理論化学シンポジウム「次世代理論・実験化学者からの提言」, “次世代量子化学”, 静岡, 2008年8月。

Nakajima, T., “Recent development of large-scale molecular theory”, ICCMSE2008, Greece, Sep. 2008.

中嶋隆人, “大規模分子理論の開発と化学への展開”, 東京工業大学国際高分子基礎センター講演会, 東京, 2009年7月。

Nakajima, T., “Solid-State NMR Chemical Shifts from ONIOM Calculations”, The 3rd Japan-Czech-Slovakia Joint Symposium for Theoretical / Computational Chemistry, Bratislava, Sep. 2009.

[図書] (計1件)

中嶋隆人, 量子化学 - 分子軌道法の理解のために (化学の指針シリーズ), 裳華房, 240ページ, 2009年。

[その他]

平成19年度文部科学大臣表彰若手科学者賞。
「理論化学分野における相対論的分子理論の研究」