

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 27日現在

機関番号：32689

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2012

課題番号：22655008

研究課題名（和文） 実時間発展形式の分子理論の開発および非平衡過程への実践的応用

研究課題名（英文） Development of Real-Time Formula of Molecular Theory and Its Applications to Nonequilibrium Processes

研究代表者

中井 浩巳 (NAKAI HIROMI)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：00243056

研究成果の概要（和文）：本研究では、ガウス型軌道(GTO)基底を用いた実時間発展形式-時間依存密度汎関数理論(RT-TDDFT)の計算手法を開発した。特に、高次の非線形過程にも対応した一般式を導出し、また、原子核の時間発展も考慮した定式化も行った。さらに、単に理論・プログラム開発だけでなく、高次の非線形励起過程や励起状態の超高速な緩和過程についても理論的に解明した。

研究成果の概要（英文）：The present study developed the real-time time-dependent density functional theory (RT-TDDFT) calculations with the Gaussian-type orbital (GTO) basis. In particular, the general formula corresponding to higher-order nonlinear processes was derived and the formulation of time developing processes of both electrons and nuclei. These methodologies were applied to higher-order nonlinear excited processes and ultrafast relaxation processes of the excited-state molecules.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	0	1,300,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,000,000	510,000	3,510,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：

1：RT-TDDFT法 2：電子・核軌道理論 3：非定常状態 4：非平衡状態 5：量子化学計算

1. 研究開始当初の背景

量子化学計算は、原子・分子およびその集合体の構造・機能・物性・反応性などを定量的に評価する一種の測定装置としての地位を築きつつある。計算結果を元に、材料設計や反応設計なども試みられている。しかしながら、広く用いられている量子化学計算は、

電子状態に対する時間に依存しない Schrödinger 方程式を高精度に解く方法である。励起状態や動的平衡を求めるときの TDDFT 法は時間に依存した Schrödinger 方程式の近似解法であるが、一定の周波数が定常的に印加されている状態であり、決して非平衡過程に対する取り扱いではない。近年、物

性物理の分野では、TDDFT 法に対する実時間(RT)発展形式の解法が研究されるようになってきた。最大の理由は、物性物理で用いられる平面波(PW)(あるいは数値)基底の場合、量子化学計算で行われる周波数ドメインで TDDFT 法を解くことが困難なためである。しかし、結果として RT-TDDFT 計算により電子の非平衡過程を取り扱えることは大きな可能性を示唆している。原子核の運動に対しては、古くから分子動力学(MD)シミュレーションなどにより、非平衡過程に対する研究が盛んに行われている。ただこの場合、原子核は古典粒子として取り扱われているため、量子効果が重要な現象には適用できない。

PW 基底を用いる利点は、固体など周期系に対する計算コストの低さが挙げられるが、内殻電子を取り扱いにくいという問題がある。ガウス型軌道(GTO)を用いる利点は、内殻電子のあらわに取り扱える他、高精度なハイブリッド DFT 計算が可能であること、軌道描像・局所物性に基づく解析の容易さなど多数ある。

2. 研究の目的

本研究では、GTO 基底を用いた RT-TDDFT 計算手法の開発を目的とした。特に、高次の非線形過程にも対応した一般式の導出、原子核(古典粒子)の時間発展も考慮した定式化などのより高度な理論・プログラム開発を目指した。また、核の量子効果を考慮するために、本研究代表者が開発してきた NOMO 法への拡張も目指した。さらに、単に理論・プログラム開発だけでなく、高次の非線形励起過程や励起状態の超高速な緩和過程を解明することを目指した。

3. 研究の方法

本研究では、理論・プログラム開発と実践的応用の研究テーマを並行して行った。2010 年度は、(1-1)非線形応答に対応した RT-TDDFT 法の開発および(1-2)2次元紫外・可視分光法への応用研究を行った。2011 年度は、2010 年度までに開発した非線形応答に対応した RT-TDDFT 法を用いて、(2-1)多次元紫外・可視分光法への応用研究を行った。また、RT-TDDFT 法の高精度化・汎用化を目指した研究も展開した。具体的には、(2-2)内殻励起が関与する現象にも対応できる新しい DFT 交換汎関数の提案、(2-3)原子核の量子効果を高精度に考慮できる新しい核・電子軌道(NOMO)理論の開発、(2-4)分割統治型(DC)線形スケールリング法を構造最適化・周波数依存超分極率計算・開殻系 MP2 計算の開発である。2012 年度は、より実践的な応用を目指した研究を実行した。具体的には、(3-1)分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学(DC-DFTB-MD)シミュレーション法の開発、(3-2)Li イオン電

池負極電極上での表面電解質膜(SEI)の形成過程の解明、(3-3)アミン溶液による CO₂ 分離・回収(CCS)法の反応機構の解明である。

4. 研究成果

2010 年度

(1-1)非線形応答に対応した RT-TDDFT 法の開発：本研究の予備的段階で完成している線形応答に対する RT-TDDFT 計算のプログラムをもとに、非線形項を考慮したプログラムの実装を行った。また、摂動展開に基づく上記の理論とは別に高次項まですべて含む

RT-TDDFT 計算プログラムも開発した。

(1-2)2次元紫外・可視分光法への応用研究：

(1-1)で開発した RT-TDDFT 計算プログラムを用いて、紫外・可視領域の多次元分光法に対するシミュレーションを行った。分子の振動状態間の相関を観測できる分光法として2次元赤外・ラマン分光は理論と実験の両面から研究が行われてきたが、紫外・可視領域の多次元分光法に対する実験報告は未だに存在しない。すなわち本研究テーマは理論先行で多次元紫外・可視分光法の特長を検討した。その結果、励起状態間のエネルギー緩和過程の観測にこの分光法が有効であることが示された。また、高次高調波の実時間発生メカニズムについても検討した。

2011 年度

(2-1)多次元紫外・可視分光法への応用研究：2010 年度の研究より、分子の振動状態間の相関を観測できる2次元赤外・ラマン分光と同様に、2次の応答を調べることにより、励起状態間の相関を観測できることが理論的に示された。2011 年度はさらに、3次の応答を系統的に調べた。その結果、励起状態におけるエネルギー緩和過程を3次分光法により観測できることを示した。

(2-2)内殻励起が関与する現象にも対応できる新しい DFT 交換汎関数の提案：従来の DFT 交換汎関数では内殻励起状態の記述が非常に悪い。そこで、本研究テーマでは、軌道エネルギーが満たすべき物理条件を課すことで内殻軌道の記述を改善することに成功した。この新しい汎関数は、内殻・価電子軌道の特有の振る舞いに対応できることから軌道特定型(OS)汎関数と名付けた。

(2-3)原子核の量子効果を高精度に考慮できる新しい核・電子軌道(NOMO)理論の開発：NOMO 法において高精度化への妨げとなっていたのは、電子-核相関であった。本研究テーマでは、あらわに相関を考慮したガウス基底(ECG)を部分的に取り込むことにより、NOMO 法の高精度化に成功した。この ECG-NOMO 法は、エネルギーだけでなく、波動関数の記述にも優れており、電子と原子核の運動がカップルした状態の記述に適している。

(2-4)分割統治型(DC)線形スケーリング法を構造最適化・周波数依存超分極率計算・開殻系MP2計算の開発:本研究テーマでは、研究代表者らが開発してきた線形スケーリング法であるDC法をさまざまな計算手法に発展させた。特に、構造最適化法の開発は、大規模系の動力学研究には不可欠な技術である。2012年度

(3-1)分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学(DC-DFTB-MD)シミュレーション法の開発:本研究テーマでは、結合の生成・開裂を伴う複雑系の非平衡過程を取り扱うために、密度汎関数強束縛(DFTB)法に基づく分子動力学(MD)シミュレーション法を開発した。さらに、本研究開発者が開発したDC法を組み合わせることで、系の大きさに対する計算時間の線形スケーリングを達成し、シミュレーション時間の大幅な短縮に成功した。たとえば、20,000原子系のエネルギー計算が、従来法では45時間かかっていたのに対して、1分程度で終了するようになった。これにより、適用範囲が格段に拡張した。

(3-2)Liイオン電池負極電極上での表面電解質膜(SEI)の形成過程の解明:本研究テーマでは、作成したDC-DFTB-MD法を用いて、Liイオン電池の負極電極上でのSEIの形成過程を検討した。その結果、SEIの形成には負極表面上に蓄積された電子が電解質溶媒に電子移動することが重要であることが示された。さらに電解質の分解物が電極表面に結合する様子も再現することができた。また、グラファイトのエッジ面がジグザグ端よりもアームチェア端の方が高活性であることが示された。

(3-3)アミン溶液によるCO₂分離・回収(CCS)法の反応機構の解明:本研究テーマでは、DC-DFTB法を用いて、CO₂分離・回収(CCS)技術の一つであるアミンによる化学吸収法の動的過程を検討した。これまで、熱力学的(静的)な観点から反応機構を検討してきたが、DC-DFTB-MDシミュレーションにより、CO₂-アミン-水系の複雑な動的過程が明らかとなった。特に、CO₂の吸収過程と放散過程では、反応の鍵となるプロトン移動の様子が異なることがはじめて明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(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 42 件) 【すべて査読有】

・論文

(1) “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (III): Benchmark of total energies”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *J. Compt. Chem.*, in press (2013).

(DOI: 10.1002/jcc.23243)

- (2) “An analytical energy gradient method for divide-and-conquer second-order Møller–Plesset perturbation theory”, M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **138** (4), 044102 (11 pages) (2013). (DOI: 10.1063/1.4776228)
- (3) “Assessment of local response dispersion method for open-shell systems”, Y. Iwabata, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **556**, 386–392 (2013). (DOI: 10.1016/j.cplett.2012.11.088)
- (4) “Generalized Møller–Plesset multi-configuration perturbation theory applied to open-shell antisymmetric product of strongly orthogonal geminals reference wavefunction”, M. Tarumi, M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Theory Comp.*, **8** (11), 4330–4335 (2012). (DOI: 10.1021/ct300789a)
- (5) “Local unitary transformation method for large-scale two-component relativistic calculations. II. Extension to two-electron Coulomb Interaction”, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **137** (14), 144101 (15 pages) (2012). (DOI: 10.1063/1.4757263)
- (6) “Extension of local response dispersion method to excited state calculation based on time-dependent density functional theory”, Y. Iwabata, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **137** (12), 124106 (9 pages) (2012). (**Top 20 Most Downloaded Articles—October & November 2012; Research Highlight**) (DOI: 10.1063/1.4754508)
- (7) “Divide-and-conquer electronic-structure study on the mechanism of the West Nile Virus NS3 protease inhibitor”, P. Saparpakorn, M. Kobayashi, H. Nakai, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **86** (1), 67–74 (2013). (DOI: 10.1246/bcsj.20120165)
- (8) “Local unitary transformation method for large-scale two-component relativistic calculations: case for a one-electron Dirac Hamiltonian”, J. Seino, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136** (24), 244102 (13 pages) (2012). (DOI: 10.1063/1.4729463)
- (9) “Divide-and-conquer based quantum chemical study for interaction between HIV-1 reverse transcriptase and MK-4965 inhibitor”, P. Saparpakorn, M. Kobayashi, S. Hannongbua, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (4), 510–517 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics) (DOI: 10.1002/qua.24164)
- (10) “Development of the explicitly correlated Gaussian-nuclear orbital plus molecular orbital theory: incorporation of

- electron-electron correlation”, H. Nishizawa, Y. Imamura, Y. Iwabata, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **533**, 100–105 (2012). (DOI: 10.1016/j.cplett.2012.02.070)
- (11) “Self-consistent field treatment and analytical energy gradient of local response dispersion method”, Y. Iwabata, T. Sato, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 257–262 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics) (DOI: 10.1002/qua.24092)
- (12) “Divide-and-conquer-based symmetry adapted cluster method: synergistic effect of subsystem fragmentation and configuration selection”, T. Yoshikawa, M. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 218–223 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics) (DOI: 10.1002/qua.24093)
- (13) “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (IV): determination of range-determining parameter”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 245–251 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics) (DOI: 10.1002/qua.24093)
- (14) “Dynamic hyperpolarizability calculations of large systems: the linear-scaling divide-and-conquer approach”, M. Kobayashi, T. Touma, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136** (8), 084108 (10 pages) (2012). (DOI: 10.1063/1.3687341)
- (15) “Constrained self-consistent field method revisited toward theoretical designs of functional materials under external field”, Y. Yamagata, Y. Imamura, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **530**, 132–136 (2012). (DOI: 10.1016/j.cplett.2012.01.065)
- (16) “Accelerating convergence in the antisymmetric product of strongly orthogonal geminals method”, M. Tarumi, M. Kobayashi, H. Nakai, *Int. J. Quantum Chem.*, **113** (3), 239–244 (2013). (the Special Issue for the 7th Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics) (DOI: 10.1002/qua.24045)
- (17) “Theoretical analysis on catalytic activity of metal surfaces on reaction of hypophosphite ion”, M. Kunimoto, H. Nakai, T. Homma, *Electrochemistry*, **80** (3), 126–131 (2012). (**Paper Award**) (DOI: 10.5796/electrochemistry.80.126)
- (18) “Evaluation of electron-repulsion integral of the explicitly correlated Gaussian-nuclear orbital plus molecular orbital theory”, H. Nishizawa, M. Hoshino, Y. Imamura, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **521**, 142–149 (2012). (DOI: 10.1016/j.cplett.2011.11.023)
- (19) “Bond energy analysis revisited and designed toward a rigorous methodology”, H. Nakai, H. Ohashi, Y. Imamura, Y. Kikuchi, *J. Chem. Phys.*, **135** (12), 124105 (12 pages) (2011). (DOI: 10.1063/1.3636387)
- (20) “Linearity condition for orbital energies in density functional theory (II): application to global hybrid functional”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **513** (1–3), 130–135 (2011). (DOI: 10.1016/j.cplett.2011.07.061)
- (21) “Linear-scaling divide-and-conquer second-order Møller-Plesset perturbation calculation for open-shell systems: implementation and application”, T. Yoshikawa, M. Kobayashi, H. Nakai, *Theor. Chem. Acc.*, **130** (2–3), 411–417 (2011). (Nagase Festschrift Issue) (DOI: 10.1007/s00214-011-1008-7)
- (22) “Rigorous non-Born-Oppenheimer theory: combination of explicitly correlated Gaussian method and nuclear orbital plus molecular orbital theory”, M. Hoshino, H. Nishizawa, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **135** (2), 024111 (13 pages) (2011). (DOI: 10.1063/1.3609806)
- (23) “Density functional theory analysis of reaction mechanism of hypophosphite ions on metal surfaces”, M. Kunimoto, T. Shimada, S. Odagiri, H. Nakai, T. Homma, *J. Electrochem. Soc.*, **158** (9), D585–D589 (2011). (DOI: 10.1149/1.3609000)
- (24) “Finite-field evaluation of static (hyper)polarizabilities based on the linear-scaling divide-and-conquer method”, T. Touma, M. Kobayashi, H. Nakai, *Theor. Chem. Acc.*, **130** (4–6), 701–709 (2011). (Imamura Festschrift Issue) (DOI: 10.1007/s00214-011-0964-2)
- (25) “Two-level hierarchical parallelization of second-order Møller-Plesset perturbation calculations in divide-and-conquer method”, M. Katouda, M. Kobayashi, H. Nakai, S. Nagase, *J. Comput. Chem.*, **32** (13), 2756–2764 (2011). (DOI: 10.1002/jcc.21855)
- (26) “Energy expression of the chemical bond between atoms in metal oxides”, Y. Shinzato, Y. Saito, M. Yoshino, H. Yukawa, M. Morinaga, T. Baba, H. Nakai, *J. Phys. Chem. Solids*, **72**, 853–861 (2011). (DOI: 10.1016/j.jpcs.2011.03.014)

- (27) “Linearity condition for orbital energies in density functional theory: Construction of orbital-specific hybrid functional”, Y. Imamura, R. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **134** (12), 124113 (6 pages) (2011). (DOI: 10.1063/1.3569030)
- (28) “Interpretation of intermolecular geometric isotope effect in hydrogen bonds: nuclear orbital plus molecular orbital study”, Y. Ikabata, Y. Imamura, H. Nakai, *J. Phys. Chem. A*, **115** (8), 1433–1439 (2011). (DOI: 10.1021/jp111062n)
- (29) “Reconsidering an analytical gradient expression within a divide-and-conquer self-consistent field approach: exact formula and its approximate treatment”, M. Kobayashi, T. Kunisada, T. Akama, D. Sakura, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **134** (3), 034105 (11 pages) (2011). (DOI: 10.1063/1.3524337)
- (30) “Divide-and-conquer self-consistent field calculation for open-shell systems: implementation and application”, M. Kobayashi, T. Yoshikawa, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **500** (1–3), 172–177 (2010). (DOI: 10.1016/j.cplett.2010.10.005)
- (31) “Local response dispersion method II. Generalized multicenter interactions”, T. Sato, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **133** (19), 194101 (9 pages) (2010). (**Top 20 Most Downloaded Articles—November 2010**) (DOI: 10.1063/1.3503040)
- (32) “Generalized Møller–Plesset partitioning in multiconfiguration perturbation theory”, M. Kobayashi, Á. Szabados, H. Nakai, P. Surján, *J. Chem. Theory Comp.*, **6** (7), 2024–2033 (2010). (DOI: 10.1021/ct1001939)
- (他 10 件)
- [学会発表] (計 154 件)
- (1) H. Nakai, Expansion and deepening of quantum chemical methods toward real science, 17th International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE17), 2013/3, Khon Kaen, Thailand, 基調講演.
- (2) H. Nakai, Symmetry rules for electronic excitations between degenerate orbitals in high-symmetry systems, XXI International Symposium on The Jahn-Teller Effect: Physics and Chemistry of Symmetry Breaking (JT-XXI), 2012/8, Tukuba, Japan, 招待講演.
- (3) H. Nakai, Linear-scaling divide-and-conquer calculations for nonlocal excited states of large systems, 17th Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVII), 2012/8, Turku, Finland, 招待講演.
- (4) 中井浩巳, 非局所励起状態に対する分割統治(DC)型線形スケーリング法の開発, 第6回分子科学討論会, 2012/9, 東京(東京大学).
- (5) 中井浩巳, 核・電子軌道(NOMO)法における振動波動関数の解析, 第15回理論化学討論会, 2012/5, 宮城(仙台福祉プラザ).
- (6) H. Nakai, Challenges toward practical quantum chemical method, The 5th Asian Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry (APCTCC-5), 2011/12, Rotorua, New Zealand, 招待講演.
- (7) H. Nakai, Two-component relativistic quantum theory for large systems, Recent Advances in Many-Electron Theories II (RAMET-II), 2011/12, Puri, India, 招待講演.
- (8) 中井浩巳, 電子状態理論と高次系分子科学, 分子研研究会『実験と理論による高次分子システムの機能発現の分子論的理解』, 2011/11, 岡崎, 招待講演.
- (9) H. Nakai, Relativistic quantum theory for large systems, 16th Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XVI), 2011/9, Kanazawa, Japan, 招待講演.
- (10) H. Nakai, Novel approaches in density functional theory to treat core excitations and weak interactions, The 9th Congress of the World Association of Theoretical and Computational Chemists (WATOC2011), 2011/7, Santiago de Compostela, Spain, 招待講演.
- (11) 中井浩巳, 理論化学の新展開” (学会賞受賞講演), 日本コンピュータ化学会 2011 春季年会&10 周年記念シンポジウム, 2011/6, 大岡山, 招待講演.
- (12) H. Nakai, M. Kobayashi, Linear-scaling electronic structure calculation program based on divide-and-conquer method, International Conference on Computational Science (ICCS2011), 2011/6, Singapore, 招待講演.
- (13) 平塚暁裕、赤間知子、矢ヶ崎琢磨、斎藤真司、中井浩巳, 2次元紫外・可視分光法の3次応答への拡張, 日本コンピュータ化学会 2011 春季年会&10 周年記念シンポジウム, 2011/6, 東京工業大学・東京.
- (14) Hiromi Nakai, Development of linear-scaling electronic-structure calculation based on divide-and-conquer approach, ACS Spring 2011 National meeting & Exposition., 2011/3, Anaheim (USA), 招待講演.
- (15) 中井浩巳, 電子状態理論の理論開発とプログラム公開: 分割統治(DC)法の GAMESS 実装を例に, スーパーコンピュ

- ータワークショップ 2011, 2011/1, 岡崎, 招待講演.
- (16) Hiromi Nakai, Meso-scale Quantum Chemistry, The 5th Global COE International Symposium on 'Practical Chemical Wisdom', 2011/1, Tokyo (Japan), 招待講演.
- (17) Hiromi Nakai, Theoretical study on the electronic structure and catalytic activity of metal complex, cluster, and surface, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), 2010/12, Honolulu (USA), 招待講演.
- (18) Hiromi Nakai, Recent development of divide-and-conquer electronic structure calculation: Application to open-shell system, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), 2010/12, Honolulu (USA), 招待講演.
- (19) Hiromi Nakai, Linear-Scaling Divide-and-Conquer Electronic Structure Theory, Workshop on Simulation and Modeling of Emerging Electronics (SMEE), 2010/12, Hong Kong (China), 招待講演.
- (20) 中井浩巳, 大規模電子相関計算手法に対する最近の発展, 日本物理学会秋季大会 2010, 2010/9, 堺, 招待講演.
- (21) Hiromi Nakai, Novel Approaches for Core Excitations and Weak Interactions in Density Functional Theory (II), The Fifteenth International Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics (QSCP-XV), 2010/8-9, Cambridge (UK), 招待講演.
- (22) 中井浩巳, 実在系の電子状態理論: 成果と課題, 科研費特定領域「実在系の分子理論」シンポジウム, 2010/7, 岡崎, 招待講演.

(他 132 件)

[図書] (計 8 件・総説を含む)

- (1) "Description of core ionized and excited states by density functional theory and time-dependent density functional theory", Y. Imamura, H. Nakai, pp. 275-308 in 'Quantum Systems in Chemistry and Physics: Progress in Methods and Applications' *Progress in Theoretical Chemistry and Physics*, **B 26**, K. Nishikawa, J. Maruani, E. J. Brändas, G. Delgado-Barrio, P. Piecuch, (Eds.) (Springer, 2012).
- (2) "化学原理の発見: 縮重系励起の対称則", H. Nakai, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **11** (1), 1-12 (2012). (Special Issue of the 10th Anniversary 2)
- (3) "How does it become possible to treat delocalized and/or open-shell systems in

fragmentation-based linear-scaling electronic structure calculation: the case of divide-and-conquer method", M. Kobayashi, H. Nakai, *Phys. Chem. Chem. Phys.*

- (4) "巨大分子系の量子化学法", 中井浩巳, *CSJ カレントレビュー・シリーズ第 8 巻* 「巨大分子系の計算化学—超大型計算機時代の理論化学の新展開」, 52-60 (2012).
- (5) "量子化学に基づく原子・分子のシミュレーション", 中井浩巳, 大越昌樹, 日本シミュレーション学会誌「シミュレーション」, **30** (4), 5-12 (2011).
- (6) "理論化学における理論の革新", 中井浩巳, 「化学のブレークスルー」, 159-163 (化学同人, 2011).
- (7) "炭素原子の電子配置", 中井浩巳, 「炭素学」, 田中一義, 東原秀和, 篠原久典編, 19-38 (化学同人, 2011).
- (8) "ナノ科学のための分割統治量子化学計算法", 小林正人, 中井浩巳, ナノ学会会報「次世代スパコン特集」, **9** (2), 85-89 (2011).

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.chem.waseda.ac.jp/nakai/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中井 浩巳 (NAKAI, Hiromi)
早稲田大学・理工学術院・教授
研究者番号: 00243056

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

斉藤 真司 (SAITO, Shinji)
分子科学研究所・理論・計算分子科学研究
領域・教授
研究者番号: 70262847
(2010 年度)