

相対論的電子論 NEWS

vol.7



CREST「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」研究領域
研究課題「相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計」 ニュースレター

高次電子関連プログラムに相対論を組み合わせ、 世界の人々が使えるものをリリースしたい！

フロリダ大学のR. J. Bartlett教授の研究室にポスドクとして渡米して以来、アメリカで研究を続けている平田聡教授。

新しいプログラムを開発するために、1ヶ月半ほど日本に滞在されたのを機に、これまでの研究生活や研究の進捗をお聞きした。



イリノイ大学
アーバナ・シャンペン校 教授
平田 聡
So Hirata

－ポスドクからずっとアメリカで研究されています。

カリフォルニア大学バークレー校、フロリダ大学、パシフィック・ノースウェスト国立研究所、イリノイ大学で研究をしてきました。博士を取った当時は、みんな外国でポスドクをやるのが当たり前で、特権であり楽しみでした。2、3年くらい行って帰ってくるつもりだったのが居座ってしまって。尊敬していたフロリダ大学のBartlett教授に認めていただき、研究室に入れてもらえたという喜びがありましたし、非常に自由に研究ができました。

－理論化学を専攻した理由を教えてください。

教養課程で勉強した中で量子化学と統計力学を美しい面白いと思って、化学科に進んだんです。卒研はタンパク質の分光学をやろうと考えて、田隅三生(たすみみつお)先生の研究室を選んだんですが、夏休み中に故近藤保先生に「量子化学に興味がある」と話したら「Szabo-Ostlundの本(新しい量子化学)を読めば？」って教えていただいて。それを読んだらもう非常にハマってしまって。もともとコンピュータが好きで、中学生くらいの時、父にせがんで買ってもらったのが、個人向けの8ビットのパソコン。今のコンピュータと違って自分でプログラムを書かないと使えません。それでゲームや家計簿のプログラムを書いていたんです。だから、コンピュータを使って化学ができるというのがもう非常に楽しくて。巻末



早稲田大学にて
中井浩巳研究代表と



イリノイ大学アーバナ・シャンペン校 キャンパス

のプログラムをコンピュータに入れて自分で量子化学計算を走らせて、もう大興奮でした。夏休みが終わって、田隅先生に「気が変わりました。量子化学をやりたいくなりました」って言ったら、先生は5分くらい沈黙されて……。『怒られる!』と思ったらおもむろに『君みたいなタイプの人は理論化学をやるのは悪くないかもしれない。』とおっしゃっていただいて。それがスタートでした。

－研究成果のひとつ、「テンソル縮約エンジン(TCE)」について教えてください。

非相対論のプログラムですが、すでにHPでも公開して誰でも使えるようになっています。量子化学の基本方程式は原理的には、分子の中で何が起きているか、どういう物性が現れるか、化学反応がどう起こるかなど、全て説明できます。それをいかに正確に解くかが、我々の究極的な目的です。より厳密に、正確に計算コストをかけずにということでは方法論がいくつか確立されているんですが、高次になると式がものすごく長くなる。人間が手で導出するのがほとんど不可能くらい長い。世界に数人、職人技で式を書ける人がいるんですが、僕には真似できない。それをコンピュータにやらせてもらおうと考えたのがTCEです。式の導出方法をシステム化し、ルールさえ教えればコンピュータがひたすらやってくれます。さらに、導出させた式を分割して人間と同じくらいのクオリティのプログラムを書けるようにして、これまでできなかった高次のプログラムと方法論を短期間で作り出した。「量子化学の人工知能」というようなタイト

ルで発表したところ、化学の人だけでなくコンピュータ関係の人からも喜ばれました。式を書く職人さんには恨まれましたけど(笑)。数値計算ではなく、式を出すプログラムを書くというプロセスが非常に楽しい研究でした。

一本CREST研究でも、TCEは重要なテーマですね。

TCEの研究を中井先生が非常に評価してくださって、「うちの相対論の研究とTCEを組み合わせませんか?」と誘っていただいてCRESTに参加することになりました。お話を聞いてすぐ「これは行けそうだな!」と思いました。中井先生にかなり研究の蓄積がありましたし、僕の自動合成のプログラムも原理的に十分可能だと証明されていたからです。「組み合わせる」というのが鍵だったんですけど、2015年に中井グループのメンバー、中野さんと吉川さんにアメリカに2週間くらい来ていただいて、同じ部屋と一緒にプログラムを作りました。それで組み合わせの第一段階をやり遂げ、プログラムがちゃんと動くことを確認しました。それまでは遅々としていたんですが、一気に開発が進みましたね。作ったプログラムは、誰もが使える形でリリースすることを目標としています。

それは楽しみですね! CREASTで進めているテーマは他にもありますか?

ひとつは乱数を使って基本方程式を解く「モンテカルロ法」という方法。非常に新しい流れで楽しい研究です。これは京コンピュータなど、並列型のスパコンにとっても向いている計算方法です。もうひとつは巨大な分子や系を小さなフラグメントに分割して個々を正確に計算し、組み合わせで全体を再構築する「フラグメント法」です。これは日本で開発されたもので、日本が最先端を進んでいます。それを応用して、無限に大きいもの、例えば地球上で重要な物質である水や氷などをかなり正確に計算できます。

研究を進める上で、グループ間でどのような連携を行っていますか?

中井グループとは先ほど言ったように、一緒にプログラムを書くなど密接に連携しています。乱数のプログラムでは、中嶋グループの神谷さんに協力いただいています。メールで打ち合わせしてプログラムの破片をもらったりして、相対

論との組み合わせを進めています。今回帰国したのは、分子科学研究所の柳井先生にお願いして、その組み合わせを完成させるためです。相対論のプログラムは、もともとは柳井先生が作られたもので、神谷さんが2つのプログラムを組み合わせるインターフェースのプログラムを書いてくれました。この1ヶ月半の滞在の間に組み合わせを完成させたいと思っています。僕には到底できないことがいっぱいあるので、みなさんの得意分野を合わせて、協力いただきながら研究を進めています。

研究にける夢を教えてください。

僕のキャリアも20年目に入ったので、自分の研究グループオリジナルの大規模な量子化学のソフトウェアを作って、世界の人々に使っていただきたい。中井グループはRAQETを作って先行しておられる。柳井さんの作ったプログラムも、UTChemとしてまとめられ、世界に発信されています。ノーベル賞を取ったPople博士にはGaussianがあり、Bartlett先生にはACESあり。そういうものがないと一流ではないと、僕の前のボスも言っていました。僕のグループはこまごましたプログラムはあるんですが、まだ人様に使っていただけるほど安定しておらずスピードやパフォーマンスも良いとはいえない。「この有用なプログラムは、平田グループで作られたんだ!」と言われるようなものを作らなければと思っています。

最後に、研究者として心がけていることを教えてください。

常に第一線にありたいと思っているので、自分に鞭を打って、自分の手で理論を書いたり、プログラムを書いたりしています。コンピュータやプログラムの世界は進歩が無茶苦茶に早いですから、すぐ時代遅れになってしまいます。日々勉強ですね。一生懸命努力しているポストドクや学生に負けないよう、戦っていきたく思います。



イリノイ大学で中野さん、吉川さんとディスカッション



左から、中野さん、平田教授、吉川さん



大学のグループメンバーや親しい研究者たちと



平田研究室のある建物

若手研究者より

今回は、神谷 宗明さん(中嶋グループ)、中山 哲さん(長谷川グループ)からメッセージをいただきました。



神谷 宗明

Muneaki Kamiya

中嶋グループ

岐阜大学地域科学部 准教授
理化学研究所計算科学研究機構 客員研究員

PROFILE

出身地 愛知県

学歴

東京大学工学部 卒業
東京大学大学院工学系研究科
修士課程修了
東京大学大学院工学系研究科
博士課程修了 博士(工学)

職歴

フロリダ大学化学科 博士研究員
北海道大学大学院理学研究院
博士研究員
岐阜大学地域科学部 助教

趣味 楽器演奏(ヴァイオリン)

好きなもの Florida Gators

“2成分相対論的時間依存密度汎関数理論に携わって”

私は現在岐阜大学地域科学部という、教養部改組でできた学部において、哲学、歴史、文学などのいわゆる文系の専門の先生たちにも囲まれながら、研究、授業、その他さまざまな管理業務等をおこなっています。

私がCREST「相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計」に参加することになったそもそものきっかけは、2010年にたまたまイリノイ大学の平田先生を訪問していた時の、(おそらく国際電話と自覚していない)中嶋先生からの深夜の電話でした。これにより理化学研究所計算科学研究機構の客員研究員にいただき、その後始まったCRESTでも中嶋グループの研究に参加させていただいています。

現在CRESTの研究として、2成分相対論的時間依存密度汎関数理論(TDDFT)の研究をおこなっています。

TDDFTは基底状態の2成分相対論的密度汎関数理論からの線型応答によって、励起エネルギーなどの応答物性を計算する方法です。

密度汎関数理論の交換相関汎関数により電子相

関を、2成分法によりスピン軌道相互作用(SO)を考慮することができ、応答物性をほどほどの計算量で精度よく計算します。しかしながらこの方法を実装するには、スピン軌道相互作用由来のスピン反転励起の考慮による複雑な行列要素の実装や複素行列に対応したアルゴリズムの再検討が必要となります。私たちは、Tamm-Dancoff近似(TDA)を使い密度汎関数理論の行列要素は自動実装することで、SO-TDDFT/TDA法をNTChemに並列実装しました。このプログラムを使って、現在首都大の今村先生と一緒に、次世代太陽電池の色素増感太陽電池材料の解析に取り組みました。

現在、SO-TDDFT/TDA法を発展させ、励起状態のエネルギー勾配等の物性や、より並列コンピュータに向けた解法等、より広く材料設計に貢献できる理論、プログラムの開発を進めています。本プロジェクトにより、岐阜から出てさまざまな学会、研究会に参加し発表等する機会をいただき本当に感謝しております。



中山 哲

Akira Nakayama

長谷川グループ

北海道大学触媒科学研究所 准教授

PROFILE

出身地 富山県

学歴

東京大学工学部 卒業
東京大学大学院工学系研究科
修士課程修了
東京大学大学院工学系研究科
博士課程修了 博士(工学)

職歴

イリノイ大学アーバナ・シャンペン校
博士研究員
北海道大学大学院理学研究院 助教

趣味 子供と遊ぶこと

好きな食べ物 甘いもの

“不均一系触媒反応の理解と設計にむけて”

私は現在、北海道大学触媒科学研究所に勤務しており、長谷川グループに所属しています。最近触媒をキーワードに研究活動を行っていますが、学生の時から助教の最初の頃までは、「化学」という名のついた学科に所属していたものの、正直あまり化学を勉強せず、原子核の量子効果やダイナミクスに関連した方法論の開発や数値計算ばかりに取り組んでいました。少し漫然となりがちだった時に、文科省委託事業「元素戦略プロジェクト」に北大の化学部門4研究室がチームを組んで参画することとなり、その中の武次グループのメンバーとして触媒開発研究に携わる機会を与えられました。毎月のチームミーティングやディスカッションを通して、計算化学の対象として触媒は非常にチャレンジングであり、大いに興味を持つようになりました。

今では研究の半分くらいは実験研究者との共同研究です。特に、固体酸化物を中心とした不均一

系触媒の計算を行っていますが、反応系が複雑で計算で取り組むには課題が山積みです。実環境下では、活性点がどこで、どのような形状で、何が反応に効いているのか分からないことばかりです。実環境に近い計算モデルで第一原理計算ができるようになりましたが、その計算モデルが妥当かも十分な検証が必要です。実験研究者との議論はとても重要です。共同研究では、実験のベースが速いため計算がなかなか追いつかず、実験結果の補助的な役割になりがちですが、各論的な説明だけで終わらず、現象を理解し、本プロジェクトが目指す元素の特徴を生かした触媒材料の理論設計へ向けて取り組んでいきたいと思っています。

最後に宣伝ですが、北大触媒研は共同利用・共同研究拠点としての活動を行っております。研究所のホームページをご覧ください。共同研究に是非ご応募ください。お待ちしております。

寄稿

CREST

「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」

研究領域

領域アドバイザーより

徳永 雅亮

Masaaki Tokunaga

元日立金属(株) 副技師長



相対論的電子論の化学が創出する未来

学生時代小谷正雄先生の量子力学の講義を受けたものの、卒論および修士論文のテーマである「超電導Nbの超音波吸収」の内容を量子論によって理解していたとは言い難かった。超高純度の単結晶Nbの作製が難しく、BCS理論や真木和美先生の超音波吸収理論を完全に理解するよりも、実験試料作製が優先すると信じていたからである。

卒業後の永久磁石との日常生活には「相対論的量子力学」はまったく存在しなかったが、玉尾皓平領域代表が率いるCREST「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」のアドバイザーを拝命して、化学における相対論的電子論を意識するようになった。三元触媒を構成するPtの触媒反応は相対論的電子論が主役を演じる舞台であり、Ptの最内殻電子の速度が光速の57%に達すると言われる。

中井浩巳先生のCRESTテーマは「相対論的電子論が拓く革新的機能材料の設計」である。相対論的量子化学計算プログラム「RAQET」の開発が最優先課題になっている。素晴らしいのは、次の3点が同時進行している点である。

1. Zの大きい相対論の対象となる元素だけでなく、周期律表にある全元素を扱える量子化学計算プログラムを開発し、公開する
2. 厳密解から乖離しない種々の計算手法の実装
3. 本プログラムを適用して触媒設計、電磁気特性評価、電子機能材料設計、機能性高分子設計の手法を開発する

手段としてのプログラム構築とそのプログラムを適用した設計手法開発の同時進行は手段と設計間の相互作用によって双方にとって新しい切り口が現れる可能性が大きいのではないだろうか？

京大北川宏先生の「元素融合」に見られる金属系ナノ粒子の固溶状態は相対論的電子論の問題として大変興味深い。バルクでは固溶しない相対論で議論すべきPd-Ru系と相対論での議論が不要なFe-Cu系の対比は典型的な相対論と非相対論対比の舞台になるのではないかと？表面エネルギーを評価し、相対論的電子論によって、ナノ粒子径をパラメータとした時、どのような固溶状態がPredictできるか？

「相対論的電子論」が新しい物質科学のパラダイムを創出して、元素戦略の具体的な目標を実現して行く輝かしい未来に期待したい。

● 受賞者情報

■ 日本化学会第96春季年会(2016)

【優秀講演賞(学術)】

清野 淳司

早稲田大学
中井グループ 次席研究員

「相対論的量子化学計算の高精度化・高効率化を目指した群知能によるパラメータ自動最適化手法の開発」

吉川 武司

早稲田大学 中井グループ 助教

「動的分極率を用いた高速度分割統治型非局所励起状態計算手法の開発」

このたび日本化学会第96春季年会にて優秀講演賞(学術)を頂きまして、大変光栄です。また、本研究課題においては多くの皆様にご協力頂きました。この場を借りて御礼を申し上げます。今後は、今回の受賞を励みとし、日々の研究開発を通じて、本CREST課題だけでなく理論化学全体の発展に少しでも貢献できるよう努力していく所存です。(清野・吉川)

— 受賞日 2016年5月19日

■ 第39回ケモインフォマティクス討論会

【最優秀講演賞(学生)】

藤波 美起登

早稲田大学 中井グループ M1

「量子化学計算とインフォマティクス技術を用いた反応予測システムの開発」

【ポスター賞】

長門 澄香

早稲田大学 中井グループ B4

「量子化学計算と群知能を用いたアミン-CO₂系反応に対する反応シミュレータの開発」

ケモインフォマティクス討論会は日本化学会情報化学部会が主催する学会です。理論化学を背景とする私どもの研究が、情報化学分野の方々からこのような評価を受けたことは大変光栄であり、かつ大きな自信となりました。インフォマティクスが理論化学や計算化学にどのように活用できるのか、その接点を探るべく今後も研究に邁進したいと思っております。(藤波・長門)

— 受賞日 2016年9月30日



■ 第6回CSJ化学フェスタ2016

【優秀ポスター発表賞】

平井 貴裕

早稲田大学 中井グループ M1

「Rh表面上でのNO還元反応に対する温度及び圧力効果に関する理論的研究」

藤波 美起登

早稲田大学 中井グループ M1

「量子化学計算と機械学習を用いた反応予測システムの開発(2): 量子化学計算条件に対する依存性」

宮崎 かすみ

お茶の水女子大学
森グループ M2

「第一原理分子シミュレーションによるサブナノサイズ合金クラスターの酸素還元反応触媒活性評価」

このたび第6回CSJ化学フェスタで優秀ポスター賞をいただいたことは大変光栄なことと思います。化学フェスタは産学官の全ての分野から、また様々な研究背景を持つ方々が来場されます。そのような学会において私どもの研究内容をお伝えし、評価していただけたのはこの上ない喜びです。いただいたコメント・アドバイスを糧に今後も精進していきたいと思っております。(平井・藤波) — 受賞日 2016年12月15日

● イベント情報

・CREST公開シンポジウム「相対論的量子化学の新しい発展: 元素戦略の基盤理論の構築と革新的機能材料設計」
2016年12月13日(火) 北海道大学 創成科学研究棟

・平成29年度CREST領域全体会議
2017年6月29日(木) 科学技術振興機構 東京本部別館

・CREST中井チーム第9回チームミーティング
2017年9月11日(月) 早稲田大学 西早稲田キャンパス

相対論的電子論NEWS



発行日: 2017年6月20日(vol.7)

発行: 早稲田大学 先進理工学部 化学・生命化学科 中井研究室

住所: 〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1 63号館4-10

TEL: 03-5286-3452 E-mail: nakai@waseda.jp

FAX: 03-3205-2504 WEB: http://www.chem.waseda.ac.jp/nakai/crest