

ナノ・生体系の反応制御と化学反応ダイナミクス

早大先進理工¹、九大先導研²、北大院理³、名大院理⁴、早大高等研⁵、分子研⁶
中井浩巳¹、吉澤一成²、武次徹也³、イレ・ステファン⁴、小林正人⁵、西澤宏晃^{1,6}

我々は、電子状態理論計算によりナノスケールの反応系を化学的精度で取り扱うことを可能とし、この結果を精密に解析することによって、反応経路の探索や反応制御、反応場設計をインシリコで行うための学術的基盤の確立に向けて研究を進めてきた。本目的を達成するためのツールとして、これまでに、分割統治(DC)法[1,2]や密度汎関数強束縛(DFTB)理論[3]を完成させ、また Global Reaction Route Mapping (GRRM)プログラムと連携した研究を行ってきた。本講演では、特に DC 法および DC-DFTB 計算プログラムの「京」への実装状況をまとめ、これらを利用した応用計算の現状と展望について述べる。

DC 法は、大規模系の量子化学計算を系の大きさに対して線形の計算時間で実行可能とする線形スケールリング計算法の一つである。DC 法では、全系をいくつかの部分系に分割して計算を行い、その結果を組み合わせて系全体のプロパティを評価する。その特徴として、

- (1) 部分系の計算を分散することで高並列化が可能
- (2) フェルミ準位を使って全体を統一する仕組みにより、部分系の電子数を指定する必要がない
- (3) 平均場理論だけでなく、高精度な電子相関理論にも適用可能

といった点が挙げられる。また、エネルギー計算だけでなく、ダイナミクスの計算に必要な原子に働く力[4,5]や非線形光学応答物性[6]の計算にも適用してきた。

DC 法により、大規模系の高精度電子状態計算が可能となったが、その反応ダイナミクスを追うためには、非常に高い計算コストが必要となる。そこで最近、二電子積分の求積が不要な DFTB 理論と DC 法を組み合わせ、数万分子を含む巨大系のダイナミクスを追跡するためのプログラム「DC-DFTB-K」を開発している。このプログラムは、「京」での超並列計算を念頭に置き、西澤が中心となってフルクラッチで開発を進めている。プログラムの詳細は、西澤によるポスター発表を参照されたいが、水 40,000 分子系の 1 ステップの計算が「京」5000 ノードを利用して 0.7 秒以下、対ピーク実行効率 16%以上で実行できることを確認している。

現在、CO₂の分離回収において CO₂の固定に用いられるアミン溶液の反応メカニズムを、このプログラムを用いて詳細に解明することを目指している。発表では、この研究に対する現在の予備的検討についても言及したい。

[1] M. Kobayashi, H. Nakai; in *Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics* (Springer, 2011), pp. 97-127.

[2] M. Kobayashi, H. Nakai; *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **14**, 7626 (2012).

[3] M. Elstner *et al.*; *Phys. Rev. B*, **58**, 7260 (1998).

[4] M. Kobayashi *et al.*; *J. Chem. Phys.*, **134**, 034105 (2011).

[5] M. Kobayashi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **138**, 044102 (2013).

[6] M. Kobayashi, T. Tsuma, H. Nakai, *J. Chem. Phys.*, **136**, 084108 (2012).