

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名：超精密予測と巨大分子設計を実現する革新的量子化学と計算科学基盤技術の構築

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

中辻 博 (特定非営利活動法人量子化学研究協会 理事長・研究所長)

主たる共同研究者

波田 雅彦 (首都大学東京大学院理工学研究科 教授)

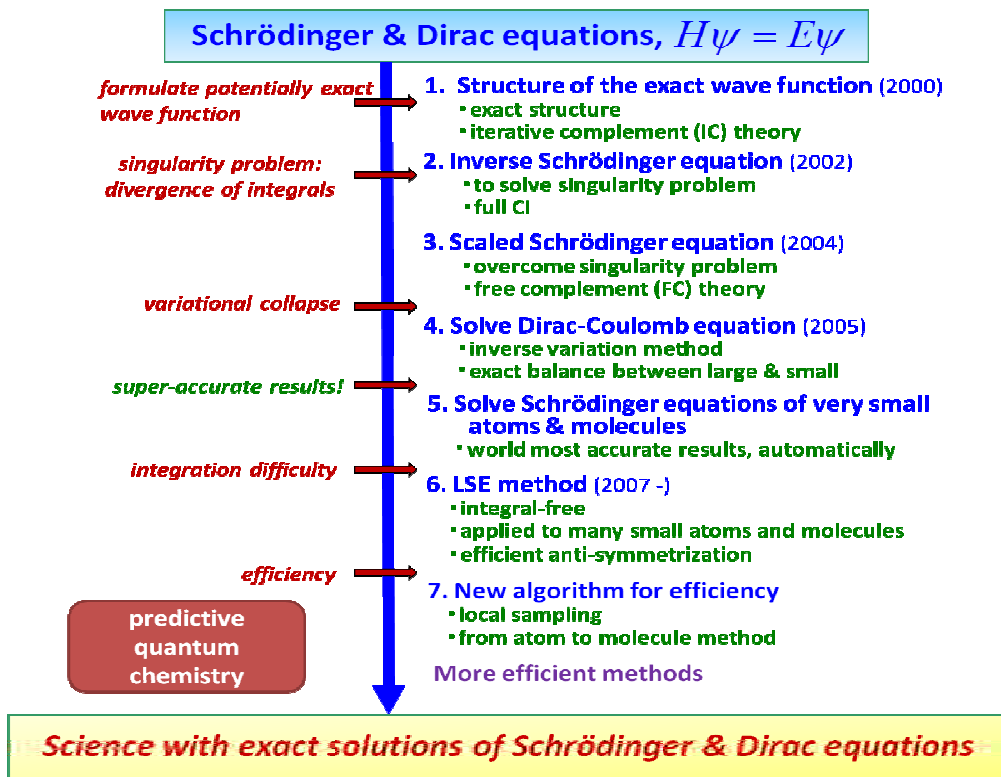
江原 正博 ((独)自然科学研究機構計算科学研究センター 教授)

長谷川 淳也 (北海道大学触媒化学研究センター 教授)(平成 20 年 6 月～)

中井 浩巳 (早稲田大学理工学術院 教授)(平成 22 年 4 月～)

3. 研究実施概要

マクロスコピックな世界が Newtonian Law と相対論で支配され、その原理をその固有の精度で解くことにより、天体の運行が予知され、惑星探索なども可能になっている。これに対して化学や生物そして材料の科学では、量子論が基本原理であり、これをその方程式本来の精度で解くことができれば、この世界でも定量的予言が可能はずである。しかしながら実際は、その本来の精度で解くことは極めて難しく、なかなか真に定量的な予言ができないのが実情である。代表者らは近年、シュレーディンガー方程式と相対論ディラック方程式の正確な解法を発見し、これを普通の量子科学に育て上げることに注力してきた。その道程とその目指すところをまとめた図を下に示す。



予言的量子科学の構築を目指して

まず正確な波動関数のあるべき姿を考察し、変分空間に正確な構造を持つ波動関数を構築することを可能

にした。次にこの関数を計算する際に現れるハミルトニアン中のクーロン・ポテンシャルによる積分の発散問題、つまり“singularity problem”を、scaled Schrödinger 方程式を導入することによって解決した。これらの研究を基礎に、系のハミルトニアンがその正確な波動関数をみずから作り上げるという Free Complement (FC)法-自由完員関数法-を作り上げた。これによって理論体系はほぼ完成し、まずは理論を小さな原子・分子に適用し、極めて正確な解を得ることができた。これは、理論の正しさと有効性を数値的に確認したもので、エネルギーと波動関数いずれも正しく求まっていることを示すことができた。本研究課題の最大の目的は、手法をより一般の原子・分子系に適用し、現実的な計算時間で化学精度のシュレーディンガー解を計算する方法論を開発することにある。多電子完員関数の積分困難を避ける理論の導入によって、普通の原子・分子にこの理論を応用する道筋を作り、化学の基本的特徴である局所性と Transferability を生かすことで、大きな系への応用に有利な様々なアルゴリズムを開発した。また、理論の特性から、これからの計算機事情に合う超並列計算にも非常に有利であることも確かめた。重い元素や強磁場下では相対論効果が重要になるので、ディラック方程式を化学精度で計算するため、変分崩壊等の相対論特有の諸問題を解決する一般解法を提案した。これを小さな系や、宇宙科学現象に繋がる超強磁場下の原子・分子の現象などにも適用し、その幅広い応用可能性を示した。これらの研究は、80年来誰も成し得なかったシュレーディンガー方程式・ディラック方程式の正確な波動関数理論を基に展開され、他に一切類を見ないオリジナルなものである。世界から高く評価され、多くの国際会議においてプレナリーレクチャー等多数の招待講演を行ってきた。

伝統的な理論構築の分野では、代表者ら独創になる SAC-CI 理論の拡大と応用を行った。SAC/SAC-CI 法は、基底・励起・イオン化・アニオン化状態の電子状態を高精度で計算することが出来る方法であり、世界最大シェアの量子化学プログラムパッケージである Gaussian に搭載されて、世界中で利用されている。特に、光が関与する科学現象の解明や、生物科学・分子設計へと応用されている。この方法論の有用性をさらに高めるために、SAC-CI 理論を拡大し応用した。中辻グループでは、SAC/SAC-CI 法を高精度化・高速化するために、ダイレクトアルゴリズムを導入した。また、これまで小・中程度の分子に応用していた SAC-CI 法を、シームレスに巨大分子系へと拡張した Giant SAC-CI 法の開発を行った。この方法は、オリジナルの SAC-CI 法と同精度かつ高速に巨大分子系を計算することが出来る方法であり、これまで計算困難な巨大系の計算が可能になる。この方法を光誘起相転移のメカニズムの解明や DNA の螺旋構造の円二色性スペクトル解析へと応用した。波田グループでは、光学不活性分子の理論解析のための磁気円二色性(MCD)-SAC-CI、高次スピン-軌道相互作用項を含む SAC-CI 法を開発した。江原グループでは、多電子状態を扱う方法である General-R 法にダイレクトアルゴリズムを導入、非束縛状態や共鳴状態を記述する複素吸収ポテンシャル(CAP)-SAC-CI 法、溶媒効果のモデル計算法(PCM-SAC-CI)を開発した。また、光機能分子の電子過程の解析、内殻電子過程の理論精密分光、表面スペクトロスコーピーなどへと応用した。長谷川グループでは、蛋白質の励起状態計算のために QM(SAC-CI)/MM プログラムを開発し、ヒト視覚レチナールのカラーチューニングメカニズム・蛍光蛋白質の発光メカニズムを解明し分子設計を行った。中井グループでは、分割統治(DC)法と組み合わせた DC-SAC-CI 法を開発し、有機発光材料へと応用した。このように、各グループと協力することにより、SAC-CI 法の拡大を進めた。

#### 4. 事後評価結果

##### 4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

本研究で目指した量子科学を確立するための「予言学としての量子化学の確立」として、シュレーディンガー方程式を精度よく解くオリジナルな方法論を提案し、その正確な求解に関して、42 電子系(ベンゼン)程度まで可能として、有機化学への展開について目途を立てるといふ、特色ある成果を確立したことは、極めて高く評価できる。また、「巨大分子系の量子化学」の解法である SAC/SAC-CI 法の改良・高度化を図り、巨大分子系への応用の可能性を開き、さらに色覚の起源の解明、磁気 CD 解析等の応用を行ったことは、当初目標を十分達成したと言える。

当初計画では想定されていなかった新たな展開として、本研究の「巨大分子系の量子化学」の解法である

SAC-CI法が、構造変化に鋭敏に反応するCDスペクトルの解析に有用であることが明らかになったことから、キラ分子の構造解析と機能創出を目的とした、高信頼性分子科学技術「キラサク(吉良作-CHIRASAC)」プロジェクトを立ち上げた。また、DC(divide and conquer)-SAC/SAC-CI法を開発し、大規模系の基底・励起状態計算を高精度で行うことを可能とした。これらは多方面への展開が期待できる新たな展開と言え、普遍性を持った望ましい成果であった。

外部発表に関しては、原著論文(国際(欧文)誌104件)、講演(口頭発表(国内会議49件、国際会議12件)、招待講演(国内会議44件、国際会議92件)とも多数行われており、優れていると評価できる。特に国際的な招待講演が92件と多く行われていることは、この研究が国際的に高く評価されていることを示している。但し、若手研究者を育てるためにも、国際的な場でのポスターセッションの発表(53件)を多くすることが望まれる。

知的財産権の出願および活用に向けた取り組みについては、特許出願は研究戦略により事情がことなるため一概に評価できないが、自らの開発したソフトで実用的な物を得、特許にしてやろうという気概は欲しい。一方、開発したプログラム等を公開しており、また、計算法に関する講習会等を多数実施している点は評価できる。

研究の進め方については、本チームは、このCREST研究を遂行するために作られた組織であり、体制はゼロからのスタートであった。体制づくり、その後の研究遂行など極めて円滑かつ効率的に進めてきたと評価出来、体制・リーダーシップとも非常に優れている。若手研究者へのメッセージ性の高い研究である。研究のための直接的経費だけでなく、組織全体の運営費用を含めて、すべてが本CRESTの費用で運営されており、効果的・有効に活用された。

#### 4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

研究成果の科学的・技術的インパクト、国内外の類似研究と比較したレベルや重要度に関しては、本研究のシュレーディンガー方程式の厳密解を求める手法は、国内外にその例を見ない極めて独創的なものであり、チームの個性的な成果が創出されていて、国際的な評価は極めて高く、その科学的なインパクトは極めて大きいものがある。日本発で正面突破型の研究はきわめて少ないが、このような哲学のある研究は、万人に受け入れられるか否かは別にして、貴重な存在と言える。また、SAC-CI法の研究成果もその応用範囲を広め、興味ある現象を解明したもので、その科学的インパクトは大きい。

戦略目標に向けての貢献、成果の社会的なインパクトの見通しとしては、マルチスケール・マルチフィジックスシミュレーションという観点では、本研究は主として手法の改良・高度化で、実際のマルチスケール・マルチフィジックスへの適用は未だであり、貢献の程度は小さい。大規模並列化という面でもその可能性が示されている段階であり、これからの課題である。また、大規模分子系への応用も、ベンゼンへの適用がなされてきたことでその可能性が示されつつあるものの、これからの課題である。従い、今のところは社会的なインパクトは大きなものとはまでは言えない。但し、基礎研究の充実が中長期的には実用化を加速すると考えられるので、重要な研究テーマであることは指摘しておきたい。

今後、研究成果のさらなる展開が期待できるかについては、本研究はシュレーディンガー方程式の厳密解を与えるものであり、大規模分子系に適用されるならば、そのインパクトは計り知れないものがある。すでにベンゼンまでの解析は出来る程度になっており、今後は大規模並列化を図るとともに、手法のさらなる改良・高度化を図ることにより、高度な分子設計・現象の解明へと発展する可能性を持っている。継続研究に発展する方策をチームで確立してさらなる発展を目指していただきたい。また、後を継ぐ研究者が出ることを期待したい。

その他特記すべき事項としては、全メンバーが計算化学やそれに関係する賞を受賞するなど、本分野の進展に貢献したことが挙げられる。一方、本研究は、その独創的内容や今後の発展性を考えると、今後も継続してい

くことが望まれるが、本CREST資金でのみ実施されているため、今の研究が終了すると、研究が途切れてしまう恐れがある。是非とも、継続的に研究活動ができるような手当をすべきと思う。

#### 4-3. 総合的評価

我が国では数少ない貴重な哲学と信念を持った研究課題であり、その学術的価値は極めて高いものである。本研究はシュレーディンガー方程式の厳密解を求めるものであり、世界的にも本チームの研究内容は独創的なものであり、極めて高く評価できる。本研究により、ベンゼンレベルまでの解析が出来るようになったことは非常に評価できるものである。しかしながら、大規模分子系への適用や、本研究領域のマルチスケール・マルチフィジックス領域の、大規模化による実際の大規模分子系への応用はこれからの課題である。

具体的には、①正確な予言学としての量子化学の確立に関して、シュレーディンガー方程式の厳密解を求める方法論を提唱し、それを実証してきたことは学術的に極めて大きな意義がある。②SAC-CI 科学の拡大に関しては、現実の課題に関して適応できることをいくつかの例で示したことは大いに評価できる。例えば、信頼度の高い基底・励起状態理論 SAC-CI を用いて、配列が全く同じである右巻き B-DNA と左巻き Z-DNA の円二色性(CD)スペクトルに大きな違いがあることを、DNA の螺旋構造との関係で明らかにしたことは、生体分子の定量的研究に大きな貢献をなしうることを実証したと言える。また、円二色性スペクトルを中心としたキラル分子の構造解析と機能創出を目指すキラサクを構築したことは、今後の分子溶液中の生体分子の研究にとって大きな刺激となる。③巨大分子系への量子化学の発展に関しては、全系を部分系に分割する Giant SAC/SAC-CI 法を開発し、光誘起相転移を起す TTF-CA10 量子体の計算を可能にし、提唱されている「ドミノ倒しメカニズム」とは異なる「協奏的メカニズム」を提唱したことは、今後の実験的検証に向け大いに興味を引く結果である。さらに、非周期系の DNA やタンパク質への応用を可能としたことは、活性化した部分と周辺を含めた現実的の巨大分子系へ踵を打ち込む成果として大いに評価できる。