

理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先進的
マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築
2017年度採択研究者

2019年度 実績報告書

清野 淳司

早稲田大学理工学術院総合研究所
次席研究員/研究院講師

量子化学と情報学との融合による次世代密度汎関数理論と均一系触媒における
反応予測システムの開発

§ 1. 研究成果の概要

本研究課題では、インフォマティクスと電子状態計算を融合させることで初めて達成される二つの研究を遂行する。第一の研究では、電子状態計算手法として広く用いられてきた密度汎関数理論(DFT)の、最大の難題である厳密な汎関数の構築に挑戦する。第二の研究は、合成化学において必要不可欠である触媒を考慮した化学反応の予測システムを開発する。

第一の研究では、これまでに DFT における Hohenberg-Kohn 定理に基づき、電子密度の情報から機械学習により半局所的な運動エネルギー汎関数を構築する手法を開発した。2019 年度は、上記の汎関数を種々の分子におけるポテンシャルエネルギー曲線の計算に適用した。その結果、従来の汎関数では困難であった化学結合を正しく記述できることを確認した。また相関エネルギーに対しても、これまでに量子化学計算の Gold Standard と評される CCSD(T)/CBS の相関エネルギーを高速に算出できる機械学習型電子相関モデルを開発した。2019 年度は、対象となる元素や分子系を拡張すべく、価電子の情報のみを用いた電子相関モデルを構築した。その結果、周期表のより下方の元素を含んだ化合物に対しても、同様に反応エネルギーを高い精度で再現した。

第二の研究では、2019 年度に、均一系触媒における化学反応の予測のために重要な役割を果たすと予想される、二種類の記述子を提案した。一つ目は、化学反応の強弱を表す結合エネルギーを量子化学計算に基づき算出する手法の高精度化・汎用化である。本手法では、インフォマティクス手法を導入することで多重結合のような強い結合とイオン結合や水素結合などの弱い結合を同時にかつ定性的に正しく記述することが確認できた。二つ目は、均一系触媒内の中心金属における電荷情報を量子化学計算に基づき、形式酸化数、 π 逆供与、結合電子と、役割の異なる三つの独立成分に分割する手法である。これらはそれぞれ配位構造や金属錯体内での金属の物性、配位子の π 逆供与による電子求引性、金属-配位子の直接的な化学結合の性質を表す指標となり、記述子解析の解釈を容易にする。