

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： ナノバイオ系のシミュレーションとダイナミクス

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

平尾 公彦 ((独) 理化学研究所基幹研究所 次世代分子理論特別研究ユニット 特任顧問)

主たる共同研究者

柳井 毅 (自然科学研究機構分子科学研究所 准教授)

3. 研究実施概要

本研究は、ナノバイオ系のシミュレーションとダイナミクスを実現するため、「次世代分子理論」を開発し、それにもとづく大規模分子計算プログラムパッケージを作成することを目的としている。それにより、ナノバイオ系の数百から数千原子系でしか見られない特異な機能の発現機構を分子レベルで解き明かし、新しい機能をもつナノマシンの設計につなげたいと考えた。

本研究で得られた成果は以下の通りである。

A. 数百～千原子系の定量的計算のための *ab initio* 分子理論の開発

化学結合解離や電子状態交差の再現に必須である多参照量子化学計算を数百原子レベルの系まで計算可能にする「非経験的密度行列繰り込み群」および「正準変換理論」を開発した。また、数百原子レベルの定量的化学計算のための「高速 MP2 摂動計算法」と大規模分子の電子状態解析法である「相互作用フロンティア軌道法」、線形スケーリング化法の ONIOM 法にもとづく「固体 NMR 高精度計算法」も開発した。

B. 数千～一万原子系の基底・励起状態の半定量的計算のための密度汎関数理論(DFT)の開発

数千原子以上を含む系の DFT 計算を可能にする線形スケーリング化法である「Gauss 型有限要素 Coulomb 法」や「平面波補助基底法」、長距離補正(LC)DFT の熱化学物性や内殻電子物性の再現性を高める LCgau、LC2gau 汎関数の開発や「領域的自己相互作用補正法」、スピン禁制遷移計算を可能にする「スピン軌道時間依存 DFT」を開発した。また、LC-Kohn-Sham 法が Koopmans 定理を満たすことを示した。Kohn-Sham 軌道は電子密度を計算する単なる補助関数ではなく、明確な物理的意味を持っていること示したもので、DFT の考え方を根本的に変革するものであり、国際的にも大きな注目を集めている。

C. 量子化学計算にもとづく大規模系の動力学シミュレーション法の開発

高精度振動分光計算のための非調和振動計算法である「マルチリゾリューション法」とその計算法である「振動擬縮退摂動論」、生体分子の高精度振動計算法、非調和振動計算を分子動力学計算と組み合わせた「瞬間振動解析法」、そしてそれらを統合する非調和振動計算プログラム「SINDO」を開発した。また、新しい核の量子ダイナミクス理論である「量子キュムラントダイナミクス法」を開発した。

D. ナノバイオ系計算のための分子計算プログラムパッケージの開発

研究期間以前から開発していた分子計算プログラムパッケージ「UTChem」を一般公開した。その後、並列計算と線形スケーリング化計算への親和性の高い次世代スーパーコンピュータ、京コンピュータでの使用に向けた次世代分子理論プログラム「NTChem」の開発へと展開した。

E. 次世代分子理論によるナノバイオ系の機能解明

従来の DFT では難しかったファンデルワールス結合と水素結合など弱い結合の網羅的な高精度再現を実現した。これにもとづき、金属イオンを含む人工 DNA の安定性やミスマッチ DNA の安定性の原因を明らかにした。また、有機化学分野で問題とされてきた異性化反応における DFT 計算の問題の原因を解明した。さらに、謎とされていた酸化チタン光触媒の初期反応機構も理論的に提案した。

以上のように、本研究では当初目標を達成し、さらにそれを超える成果が得られた。



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)

高精度量子化学計算の大規模化としての *ab initio* 密度行列の繰りこみ群法の開発、密度汎関数理論の長距離補正(LC)法の開発、及び Gauss 型有限要素 Coulomb(GFC)法によるオーダーN化(線形スケーリング化)、大規模系の高精度非調和振動計算法とそのプログラム SINDO の開発、量子化学計算プログラム NTChem の開発等において、当初目標・計画を十分達成したと言える。

特に、クーロン相互作用($1/r$)に関する積分発散を避けるために古典統計力学の分野で開発された方法を量子化学の密度汎関数として取り入れ、密度汎関数理論の精度と適用範囲を拡大したことは大いに評価できる。一方、これはあくまでも量子化学における改良であって、その意味では「シングルフィジックス」での進展である。ナノバイオ系のシミュレーションを行うためにはミクロなレベルの量子化学とマクロな熱力学や流体力学をつなぎ、真のマルチスケール・マルチフィジックスを可能にする方法論が必要であり、その点では新しい成果は報告されていない。

新たな展開として、LC-Kohn-Sham 法が Koopmans 定理を満たすことを示し、これにより Kohn-Sham 軌道は電子密度を計算する単なる補助関数ではなく、明確な物理的意味を持っていることを示したことは特筆に値する。

論文発表は、件数(国内(和文)誌 1 件、国際(欧文)誌 81 件)、質共に優れ積極的に行われている。発表に対する外部引用も 700 回近くと顕著である。また、国際会議招待講演は 55 件と非常に多くてすばらしい。しかし、インパクトのある学術誌への論文掲載もあればなお良かったと思われる。また、口頭発表が(国内会議 19 件、国際会議 4 件)少なかったように感じられた。

プログラム公開の立場をとっており特許は全く出願されていない。これに対しては、計算システムの根幹に関する部分は出願すべきであるとの意見もあったが、本プロジェクトの性格上妥当であるとの意見が多数であった。

2グループの小規模チームであり、リーダーシップ発揮上の困難はなかったと考えられる。

しかし、研究代表者が多忙であるので、きめ細かいリーダーシップは無かったと推察するが、逆に、それによって、各研究者が独自の力を発揮したともいえる。その意味で、ある程度放任しながら、方向性を間違わないように誘導したという点においては大いに評価できる。

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

これまで不可能であった大規模分子理論による次世代分子理論プログラム「NTChem」を新たに開発し、公開した意義は大きい。LC 法関連論文は、科学界全体の高被引用論文1%に入る新研究領域を形成し「文部科学省サイエンスマップ 2008」に掲載され、海外からの注目度が高く、国内外の類似研究と比較したレベルや重要度(科学的貢献)は極めて高い。*ab initio* 分子理論、密度汎関数理論、動力学シミュレーション、ナノバイオ系の機能解明、いずれも世界の同種の研究の中でもトップレベルの成果が得られており、量子化学の計算法としてその科学技術的インパクトは大きいと評価できる。また、科学的なインパクトのある論文のみならずビギナー向けの著書もあり、幅広い学術貢献が認められる。

今後は、新規に開発した「NTChem」を用いて、数千～1万原子系を扱える大規模分子でナノバイオ系等に発現する様々な機能発現メカニズムの解明に期待できる。また、次世代スパコン京コンピュータで NTChem が大いに活躍できそうである。大規模計算が可能なので、実際の材料開発や生態系の現象の理解で、大きな社会的なインパクトを与えることが期待できる。これまで十分でなかった光分子機能解明にも期待したい。このように、量子化学計算の大規模化への貢献は非常に大きく、今後多くの研究者が活用できるような展開をしていくことが大いに待たれる。それによって社会的インパクトは大きく増大すると思われる。

本研究領域の具体的な達成目標である「世界最先端レベルの超高速・大容量計算機環境と精緻なモデル化・統合化によって、複数の現象が相互に影響しあうようなマルチスケール・マルチフィジックス現象の高精度且つ高分解能の解を求めることを研究の対象」とするという観点から、本研究は手法の開発及びそれによる成果創出と言う点で、既に目標を達成しているとともに、社会的にもインパクトを与えつつあるところである。

なお、本研究を進める中で世界のリーダーになり得るチームを育てたことを高く評価する。

4-3. 総合的評価

数百原子に対する *ab initio* 理論に於ける密度行列繰り込み群法の開発、数千原子系の基底・励起に関する密度汎関数理論に於ける長距離補正(LC)法の開発、及び「Gauss型有限要素 Coulomb 法」によるオーダーN化は順調に開発され、極めて優れた成果が得られていると評価する。特に、長距離補正項についての物理的意味を明らかにしたことは、極めて大きな意味がある。これらは NTChem へ取り込まれることにより、今後更なる発展が期待される。

以前に開発した分子計算プログラム「UTChem」の適用範囲を大幅に拡張し、従来の計算の持つ欠点を改良して、新規に次世代スーパーコンピュータに適した大規模分子計算プログラム「NTChem」を開発、主にナノバイオ系を対象として数千～1万原子系を扱える分子理論の構築とその適用評価(分子レベルの機能解明等)を行ったことは評価できる。

密度汎関数理論における新しい知見が得られ、また発表論文数も多く被引用回数は 700 回近い。ビギナー向けの著書もあり幅広い学術貢献が認められる。これらを学問基盤とする我が国発のソフトウェアの普及ならびに次世代スパコン京コンピュータへの実装と成果が大いに期待される。