

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名：大規模系への超高精度O(N)演算法とナノ・バイオ材料設計

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

青木 百合子 (九州大学大学院総合理工学研究院 教授)

主たる共同研究者

Gu, Feng Long (華南師範大学化学&環境学院 教授) (平成 21 年 6 月～)

3. 研究実施概要

物質を構成する個々の分子の性質をミクロな立場から明らかにする方法として、非経験的分子軌道(ab initio MO)法が量子化学分野でこの 30 年間に急速に発展した。分子系に対する Schrödinger 方程式を近似なしに解くことは不可能であるため、実際には多電子系全体の作る平均場の中で独立に運動をする電子の波動関数を解く一電子近似のもとで定式化した Hartree-Fock(HF)近似を用いる。さらに、HF 近似を超え、電子間の相互作用(電子相関効果)を導入するための、Møller-Plesset(MP)摂動法、配置間相互作用(CI)法などの一連の post HF 法がある。しかし、量子力学的に厳密に解く方法に基づいたこれらの方法では、系に含まれる基底関数の数の増大とともに膨大な計算コストがかかり、現在の発展した計算機をもってしても大規模系では HF 法レベルですら計算が困難である。基底関数の数を N とすれば、HF 法レベルでは $N^3 \sim 4$ 、post HF 法レベルでは $N^5 \sim 7$ の計算時間がかかる。有機、生体、無機材料開発における今後の量子化学の重要な役割は、物性・機能をミクロな立場から精度よく予測し、合成や機能性材料開発の手助けをすることであり、演算高速化のために粗い近似で計算精度を落としたのでは、化学的精度をもって高信頼性の物質設計は期待できず、利用価値がなくなってしまう。

代表者らは、従来法(既存プログラムで全系をまともに扱う通常の量子化学計算)と同じ結果を与え、かつ従来法では取り扱い困難な大規模複雑系を扱うための方法として、超高精度効率的電子状態計算法・Elongation(ELG)法 (A. Imamura, Y. Aoki, and K. Maekawa, J. Chem. Phys., 95, 5419-5431 (1991))を開発してきた。本方法を、計算化学分野の代表的なプログラムである半経験的分子軌道法(MOPAC)、非経験的分子軌道法(Gaussian、GAMESS、Crystal)、密度汎関数法(GAMESS、DeMon)などに組み込んできた。ただし、ELG 法は当初より高分子を扱うことを前提としており、近年まで擬一次元系への適用に限定されていた。

本研究課題では、一次元系を超えるあらゆる系に使用できるよう一般化を目指し、その結果、二次元や三次元系に対しても適用可能となるよう手法を拡張することが最重要課題であり、計算方法の確立とプログラミング、高分子からみ合い系への応用を行った。さらに従来法では系が大きくなると取り扱い困難となる非局在化系に対しても、高精度で電子状態を得る手法を ELG 法に導入することにより演算可能とし、相対論効果を導入することにより重金属が含まれる系にも適用できることを確認した。さらに、本計算法は、高分子や固体のもつ様々な物性(導電性、強磁性、非線形光学特性など)を抽出するための物性計算法を組み込むことにより、材料の機能設計に向けた実用化を試みた。ソフトウェア開発においては、

- ①得られた計算結果の信頼性に最大限の重きを置き、系全体の電子状態を正確に求めるという条件下で如何に計算時間を削減するか、という観点から開発を行う。
- ②あらゆる系に対して利用できるよう可能な限り一般化する。

という二つの指針下で開発を行った。

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)

当初計画で、ELG 法の最大の難点として、蛋白質などの「三次元系への拡張」が指摘されていたが、その問題を、いったんは凍結した部分を再解凍して計算しなおすことを可能としたことにより克服し、ELG 法の「三次元系への拡張」を達成した。このことは大いに評価できる。また Orbital shift 法を考案し、非局在化した必要最低限の軌道を自動的に選択して対角化に含める手法を ELG 法プログラムに導入したことで、 π 電子非局在化系でも高精度で演算を可能としたことも大いに評価できる。

ただし、次の2点でまだ課題が残っている。一つは、蛋白質の構造が変わった場合に、変化の前後で変わらない共通した構造がある限り、ELG 法では全系を解き直す必要がないという従来手法にないメリットがあるが、このような問題への本方法の有効性を多数の系に対して数値的に示すこと。他は、現在までのところ溶媒効果が正確には入っていないことである。第2の点については、RISM 法を導入しつつあるとのことであるが、評価の時点ではまだ具体化されていない。さらにもう一つの課題としては、手法それ自身が $O(N)$ 法なので、他の ($O(N)$ 以外の) 手法に比し、大規模系にも十分適用できる手法ではあるが、さらなる大規模化・並列化という点では未だ十分とは言えないことである。以上3課題につき、今後の進展に期待したいところである。

もう一つの目標である機能設計・材料設計という点では、ELG 法を核として、構造最適化や線形光学特性計算、強磁性体設計などの機能を組み込み、それらを使った実証計算を行ったことは、ELG 法の応用として十分な目標を達成している。

以上述べたとおり、学術的にも評価できる成果を上げ、開発したプログラムソースを公開する段階になっており、また今後の発展も大いに期待できる。

当初計画では想定されていなかった新たな展開としては、ELG 法で種々の設計や応用の可能性がでてきたことがある。特に、従来の CONV 法では見つけられなかった安定構造を見つけれられる可能性があることを示したことは、大きな展開であり、望ましい展開であった。引き続きこの可能性を確認することが望まれる。また、Orbital shift 法の考案により、非局在系にも適用できるようになった。さらに、量子化学計算を高速化するために、非直交化軌道を積極的に利用するという手法を開発しつつあることも挙げられる。このように、基盤的研究において問題が生じれば、研究期間を通じてその解決を図ることは当然のことで、むしろ健全な状況と言え、大いに評価できる。

外部発表に関しては、ソフト開発を優先したため、論文発表が遅れているとのことであるが、国際雑誌に 64 件の原著論文、総説・解説 8 件、国内会議と国際会議での招待講演がそれぞれ 5 件と 18 件など、発表実績は優れている。また、ヨーロッパにおける当該外分野での受賞があり、また研究パートナーも評価を受けている。ELG 法は他に無い優れた特長を持ち、かつ、我が国発の手法であるので、国際的な評価が、手法の価値を高め手法を普及させるには極めて重要である。したがって、今後も、特にこの分野で評価の高い国際的な場での論文発表が望まれる。また、本 3D-ELG 法の普及啓発のために、多くの総説・解説等の執筆に期待する。

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、本ソフトは GAMESS に組み込むことを計画しているようであるが、手法の普及を図る前に、この手法が特許として権利化出来るのであれば、早急に国内外で特許申請すべきと思われる。

研究の進め方については、比較的少人数で、集中して本手法の開発・実証等を行い、効率よく研究開発を進めたと評価できる。女性研究者で国際的なチームを組んで研究を推進したことは評価に値する。研究費を手法の開発・評価に集中し、十分な成果を挙げているので、投資効率としては非常に高いと評価できる。研究代表者の大学(九大総合理工学府(総合理工学研究院))と共同研究者の大学(華南師範大学化学&環境学院)間の学術協力関係は友好的で良好のようであるが、最近共同研究者の国(中国)も当該分野で著しく力をつけているので、その協力関係が今後更に発展することを期待したい。

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、ELG法は、我が国発の $O(N)$ 法としてユニークなもので、他の類似研究と比べても、有用性という点から極めて価値のある手法であり、応用範囲も広いと思われるので、その科学的・技術的なインパクトは極めて大きいと言える。研究代表者と類似の課題(巨大分子(系)の量子化学計算)に対していくつかの方法論が提案されている。それらは、(1)密度汎関数法、(2)Divide & Conquer法、(3)フラグメントMO法、および(4)ELG法がその代表的なものであるが、その中で代表者が提案した(4)以外は、外国の研究者によって提案されたものであり、オリジナルではない。その意味で、ELG法は我が国のオリジナルであり、その適用範囲を飛躍的に拡張した今回の開発は大いに評価できる。ただ難点としては、一般性を示そうとするあまり、一般論としての価値は増したものの、解ければ画期的と言えるような具体的課題を解決してこの方法論を世に知らしめ、他の研究者がこぞってこの方法を利用する段階にまで達していないところに多少心残りがある。

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分野という観点からは、成果の戦略目標への貢献はそれほど大きなものではないが、ナノ・バイオ材料開発医学・薬学分野におけるデータの提供のポテンシャルを有していると判断されるので、実際の分子設計等の応用では大きなインパクトがあると思われ、社会的なインパクトは大きいと考えられる。

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、本手法の有用性について更なる確認を継続し、さらに手法の高度化、機能の追加(特に利用者から見た手法の使い勝手)等を行うことにより、この手法が広く実際の場で使われていく可能性がある。従来法では扱えないほど大規模な様々なナノ・バイオ系への応用と、新機能材料設計への便利なソフトウェアとなることが期待される。RISM理論と結合して、溶媒効果を取り入れることができれば、生体分子の量子化学計算のスタンダードになる可能性がある。

その他特記すべき事項としては、日本人研究者を十分集められなかったことがある。その背景には色々な事情があったと推察されるが、本プロジェクトが我が国のものである以上、主たる研究者は日本人であるべきと思う。勿論、研究を進める上で、海外研究者と連携し、お互いに持たないところを補完する形で、研究成果を挙げるといふ努力は必要ではあろうが。なお、若手研究者の育成に関しては、一定程度の貢献が認められる。

4-3. 総合的評価

当初問題とされていた課題も十分解決し、さらに当初想定していなかった多くの成果が得られており、高く評価できる。さらに本研究成果である我が国発の手法(ELG法)が今後広くこの分野での標準的な手法として発展する可能性もある。代表者らの開発してきた超高精度 $O(N)$ 法であるELG法は、大規模系に対してその威力を発揮する可能性を有しており、今後は、開発したプログラム等を、純日本発の世界標準ソフトとして世界に向けて発信することにより、今後は、開発したプログラム等を、純日本発の世界標準ソフトとして世界に向けて発信することにより、従来の量子化学計算では取り扱い不可能であった新機能高分子設計、薬剤・生体材料設計、レアメタルフリー材料設計などにおける理論的予測等の応用分野で活用されて、成果が得られるものと期待される。

当初は専門の領域アドバイザーから、このELG法の有効性に対して疑問が投げかけられたが、アドバイスを素直に受け入れ、結果的には日本独自の方法論として量子化学分野の物性・機能を、電子状態を精度よく決定し、機能材料開発にも貢献できる手法として首尾一貫して確立してきた根性は大いに評価できる。新しい高精度で効率的な計算技法として独自の局在化分子軌道(RLMO)という概念を導入し、高分子側の末端のみと攻撃モノマーを反応させ、高分子全体と攻撃モノマーの反応を解くという膨大な演算を避ける手法を開発し、それを実用化できる程度にまで発展させた功績は高い評価に値する。三次元的な複雑な構造の高分子に対しても、一旦凍結した部分が攻撃モノマーと衝突する場合には、その凍結部分を解凍して反応させれば有効であることを示したことによって、適用の一般性をより増大できたことも高く評価できる。