



## スタンダードを超える 量子化学理論を目指して

やない・たけし

1997年東京大学工学部応用化学科卒、1999年同大学院工学系研究科修士、2001年博士(工学)。2001年学術振興会博士研究員。2002年米国Pacific Northwest 国立研究所、同年Oak Ridge 国立研究所博士研究員、2005年Cornell 大学博士研究員を経て2007年1月より現職。

科学の探求による無数の発見と発明に伴い、自然はただその懐の深さを一層深め、一研究員として、自然の複雑さとそれを紐解く人類の叡智の巧妙さに畏敬する毎日であります。量子力学の創設の契機は、かつて時空間的に高解像度で自然をプローブし始めたとき、自然現象が既存理論の予測を超越する振る舞いを示したことを端緒としますが、量子論の確立に主役的に貢献した物理学者ディラックは、量子力学の基礎理論と物理法則の決定と同時に、その基礎方程式のシンプルな形式とは裏腹な数理的難解さに悲観しました(1929年)。しかし科学者たちは、躊躇することなく、化学の量子方程式を解くための卓越した理論と手法の開発に膨大な労力と費用を費やし、化学現象の根源的な量子性を考慮するような、分子科学の理論計算を実現し、化学合成やエレクトロニクスの基本メカニズムを解明する鮮やかな理論モデルと物理化学的知見を提供することに成功してきました。当グループは、以上のような経緯の延長線上に研究対象を置き、本年1月より所内に新しい量子化学の理論研究グループとして、研究活動を開始させて頂くに至りました。

当研究グループでは、特に、分子の化学反応、物理現象の特徴的振る舞いを決めるものは「分子を構成する電子の状態にある」という観点から、興味ある研究対象は、分子の電子状態を解明することであり、たとえば分子軌道などを科学的尺度として、分子の電子状態を記述する量子化学的理論手法の開発と、分子科学への応用に関して研究を行っています。電子状態の量子論的モデリングが化学反応を解明した例としては、価電子の一電子的描像である分子軌道の量子論的記述に着目し、共役付加反応の立体的選択性のメカニズムを一般論として理論的に解明することに成功し、化学の世界に大きなブレイクスルーをもたらした、故福井謙一教授(ノーベル化学賞1981年)の功績が思い出されます。現代量子化学は、高度に理論的枠組みを拡張し、経験に基づく模型的電子状態理論からリアリスティックな電子状態理論へと発展し、理論的手法の高度な発達と計算機の高性能化により、*ab initio*(非経験的)電子状態法として、リアリスティックな電子状態を記述できる力強いテクノロジーへ

と成長し、実験事実の解明のみならず、気相化学反応を十分に予測しうるような手法として発展しています。同時に、応用範囲もますます広がり、エキサイティングな段階にあります。

当研究グループは、分子の構造や反応性の情報、化学的プロパティ(励起状態、その他物性、応答)を高い精度で予測できる量子化学的電子状態理論、そのスケラブルで効率のよい計算手法を開発し、分子科学のサイエンティフィック・シミュレーションを実践します。特に、スタンダードな既存手法で取り扱えない複雑な電子状態に対して、先進的な手法開発にチャレンジし、世界に先駆けてその電子状態を解析することを目指します。当研究グループで開発する「正準変換理論」は、多重化学結合と解離、ポリマー、



コーネル大学近くのフィンガー湖でのグループ写真。  
湖畔にて研究に思案を巡らせる（本人撮影）。



ナノチューブ、生体反応中心などの共役分子の光化学、金属化合物の電子状態などに表れる「複雑な電子状態（サイズに対して指数関数的に複雑化する）」を効率よく高精度に扱える強力な手法として開発を行っています。正準変換理論は、「密度行列繰り込み群」と組み合わせることで、複雑な電子状態問題（励起状態を含め）を対象として、いままでにない大規模でプレディクティブな量子化学計算を実現する可能性を秘めています。また当研究グループは、量子化学計算における数値シミュレーションの基盤技術の開発にも取り組みます。近年の数値シミュレーションのトレンドとして、マルチスケール・マルチフィジックスなどによる物理シミュレーション法が幅広く用いられて、そのような文脈の中で、「マルチ分解能法」を用いた電子状態アルゴリズムは強力な現代的数値解析法です。またUTChemに実装した相対論的量子化学的手法は高効率で分子軌道計算が実行可能です。以上のような基礎的な技術開発の成果を統括的に用いて、よりリアルな分子科学の問題に挑戦し、新しい電子状態モデリング理論を確立することを目指しています。

量子化学計算の発展を力強く後押ししているものに、コンピュータの飛躍的な高性能化があります。当研究グループは、本研究所を拠点とする「次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェア研究開発」（拠点長：平田文男教授）の共同プロジェクトに、乗り遅れて参加させて頂いています。これは「次世代スーパーコンピュータ建設」の一大国家プロジェクトに係るものです。2002年に国内で建設された大型計算機

「地球シミュレータ」は、当時世界最速のスパコンとして運用を開始し、稼働当初で処理性能においては米国の高速計算機に桁違いで差をつけたため、2年半ものあいだ他の追随を許すことがありませんでしたが、米国政府はその状況を国家戦略的劣勢として驚愕し、過去の大戦ではありませんが、大慌てでスパコン開発に物量作戦的に投資を決定しました。今や、「コンピューティング技術」は、ハード・ソフトも含め、国家間の技術開発競争の中心にあります。ところで、量子化学計算の普及は、コンピュータパワーよろしく、ひとえにベンダーの計算“機”技術によるものだと思われがちですが、量子化学者の理論やアルゴリズム開発の成果が本質にあります。仮にdamnな理論計算が分子サイズの5乗で複雑化するとしても、計算機が年に2倍高性能化するとしても、その理論計算で扱える分子サイズは、毎年 $\sqrt[5]{2}=1.15$ 倍ずつで

しか増大しません。さらに悪いことに、量子問題の名目的な複雑さはサイズに対して階乗（漸近的に指数関数）でスケールするので、量子化学の問題は、形式上、量子コンピュータでも完成されない限り未来劫解けないのです。先に述べた「ナノ統合」共同プロジェクトは、理論やアルゴリズムの開発を通じて、ソフトウェア的な問題解決を超大型計算機上で実現することを目指すグランドチャレンジであります。

さて最後ですが、分子研に当研究グループが開設されるに当たり、所内外の先生、先輩、友人また後輩の方々にさまざまな支援や叱咤激励を頂き、この場を借りて心よりお礼申し上げます。また今後、所内では所長をはじめ諸先生方、事務の方々に度々お世話になると思いますが、よろしく願いいたします。

	本手法	実験値
Valence励起 (eV)		
$1^3B_{1u}$	4.02	3.94
$1^3E_{1u}$	4.65	4.76
$1^1B_{2u}$	5.28	4.90
$1^3B_{2u}$	4.97	5.60
$1^1B_{1u}$	6.01	6.20
$1^1E_{1u}$	6.91	6.94
実験値からの平均誤差	0.24	

	本手法	実験値
Rydberg励起 (eV)		
$1^4E_g$	6.404	6.334
$1^1A_g$	6.992	6.932
$1^1E_g$	6.960	6.953
$1^1A_g$	6.990	6.99*
$2^1E_g$	7.360	7.41
$1^1B_g$	7.546	7.460
$1^3B_g$	7.561	7.460
$2^1E_g$	7.451	7.535
$1^1E_g$	7.729	7.81
$2^1A_g$	7.747	7.81
$1^1A_g$	7.746	7.81
実験値からの平均誤差	0.06	

マルチ分解能法を用いた密度汎関数法励起状態計算（ベンゼン分子）。基底関数誤差のない分子の電子励起計算の実現。

T. Yanai, R. J. Harrison, N. C. Handy, *Mol. Phys.* **103**, 413 (2005)