

課題名 (タイトル) :

## 大規模分子理論の開発と応用

利用者氏名 : 中嶋 隆人

所属 : 和光研究所 基幹研究所 次世代分子理論特別研究ユニット

## 1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

本申請では、ミクロの立場からのナノマテリアルや生体分子の機能のシミュレーションによる解明を目的とする。従来の分子理論に対しブレークスルーを達成することで、ナノマテリアルや生体分子のような大規模分子系を化学的精度 (数 kcal/mol) で定量的に取り扱える分子理論を展開する。次世代スーパーコンピュータの能力を最大限に発揮することのできる量子化学の計算手法とその計算プログラムを開発する。理研スーパーコンピュータシステムを利用することで、次世代スーパーコンピュータ稼働時に十分なパフォーマンスを発揮できるように下準備を行う。同時に大規模分子系における化学反応の解明や NMR 化学シフトのようなプロパティ計算を試みる。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

本年度は固体 NMR に対する理論的なアプローチを開発した。固体 NMR の化学シフトに対する理論計算に対しては、量子化学からのアプローチと固体物理からのアプローチのふたつがこれまでにとられてきた。しかしながら、そのどちらにもいくつかの欠点が存在する。そこで本研究では、量子化学のアプローチと固体物理のアプローチを融合させて、両者の欠点を補い長所を活かすことで、固体 NMR 化学シフトに対する信頼性の高い理論的なスキームを提案することを目的とした。両者のアプローチを融合させるために、本研究では ONIOM 法を用いた。

## 3. 結果

$\text{VOCl}_3$  結晶における  $51\text{V}$  化学シフトの結果を下の表に示す。バンド計算による結果 (BLYP/PP/CM, BLYP/PP/PBC) は実験値と大きく異なっている。これは使った汎関数と擬ポテンシャルによる内殻電子の寄与の無視が原因である。それに対し、ONIOM 法により得られた異方値の計算結果は実験

とよく一致している。

	B3/GTO/ CM	BLYP/PP/ CM	BLYP/PP/ PBC	B3/GTO/ PBC	Exp.L
$\sigma_{\text{iso}}$	-2139	-2141	-2341	-2339	—
$\sigma_{\text{anis}}$	310	67	20	263	$250 \pm 10$

## 4. まとめ

本アプローチの特徴をまとめると以下のようになる。(1) 低レベルに使う擬ポテンシャルや汎関数の違いによる影響は小さい。平面波の数の影響も小さい。低レベルで荒い計算をすることが可能で効率的であるといえる。(2) 内殻電子の寄与も考慮することができ、重原子の NMR 計算が可能である。

## 5. 今後の計画・展望

今後は、来年度内をめどに、現在開発中の大規模分子理論プログラム「NTChem」の高度な並列化作業を完了する。このプログラムを用いることで、大規模な物質系のダイナミクス計算やプロパティ計算 (とりわけ磁性計算) を実施し、ナノマテリアルや生体分子の機能の解明を試みる。

平成 21 年度 RICC 利用研究成果リスト

【論文、学会報告・雑誌などの論文発表】

Y. Nakatsuka, T. Nakajima, M. Nakata, and K. Hirao, “Relativistic quantum Monte Carlo method using zeroth-order regular approximation Hamiltonian”, J. Chem. Phys. **132**, 054102 (2010).