

令和元年度 文部科学省

ポスト「京」で重点的に取り組むべき社会的・科学的課題に関する

アプリケーション開発・研究開発

令和元年度

「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、  
利用の新規基盤技術の開発」

成果報告書

令和2年5月29日

大学共同利用機関法人自然科学研究機構

分子科学研究所

岡崎 進

本報告書は、文部科学省の科学技術試験研究委託事業による委託業務として、大学共同利用機関法人自然科学研究機構分子科学研究所が実施した令和元年度「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」の成果を取りまとめたものです。

## 目次

|   |    |
|---|----|
| 1. 委託業務の題目 .....                            | 1  |
| 2. 実施機関（代表機関） .....                         | 1  |
| 3. 委託業務の目的 .....                            | 1  |
| 4. 令和元年度（報告年度）の実施内容 .....                   | 1  |
| 4-1. 実施計画 .....                             | 1  |
| 4-2. 実施内容（成果） .....                         | 5  |
| 4-2-1. 全体概要 .....                           | 5  |
| 4-2-2. サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保 — 太陽光エネルギー ..... | 8  |
| 4-2-3. サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 — 電気エネルギー .....    | 23 |
| 4-2-4. サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 — 化学エネルギー .....  | 39 |
| 4-2-5. 基盤アプリ設計・開発 .....                     | 56 |
| 4-2-6. インフォマティクス活用 WG .....                 | 64 |
| 4-2-7. プロジェクトの企画・改善提案 .....                 | 66 |
| 4-2-8. プロジェクトの総合的推進 .....                   | 66 |
| 4-3. 活動（研究会等） .....                         | 68 |
| 4-4. 実施体制 .....                             | 70 |
| 別添 1 学会等発表実績等                               |    |
| 別添 2 実施計画                                   |    |

## 1. 委託業務の題目

「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」

## 2. 実施機関（代表機関）

|                  |                 |                                |   |          |   |
|------------------|-----------------|--------------------------------|---|----------|---|
| 代<br>表<br>機<br>関 | 機関名             | 大学共同利用機関法人 自然科学研究機構 分子科学研究所    |   |          |   |
|                  | 所在地             | 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中 38 番地 |   |          |   |
|                  | 課題<br>責任者       | ふりがな<br>氏 名                    | おかざき すすむ<br>岡崎 進  | 生年<br>月日 | 西暦 1954 年 9 月 9 日 (65 歳)<br>※2020 年 4 月 1 日現在 |
|                  |                 | 所属部署名                          | 理論・計算分子科学研究領域   | 役職       | 教授  |
|                  |                 | 連絡先                            | Tel. 0564-55-7460 Fax. 0564-54-2254<br>E-mail okazaki@ims.ac.jp |          |   |
|                  | 事務<br>連絡<br>担当者 | ふりがな<br>氏 名                    | しまだ まさあき<br>嶋田 匡晃   |          |   |
|                  |                 | 所属部署名                          | 国際研究協力課産学連携係  |          |   |
|                  |                 | 連絡先                            | Tel. 0564-55-7134 Fax. 0564-55-7119<br>E-mail r7136@orion.ac.jp |          |   |

## 3. 委託業務の目的

本委託業務では、ポスト「京」（「富岳」）<sup>1</sup>を活用し、国家的に取り組むべき社会的・科学的課題の重点課題⑤エネルギー問題の解決に資するアプリケーション開発及び研究開発に取り組み、世界を先導する成果を創出することを目的として、産学官共同研究体制の下、我が国における物質にかかわる計算科学の総力をあげてエネルギーの高効率な“創出”、“変換・貯蔵”、“利用”の新規基盤技術の開発を行う。本業務は、以下の3つのサブ課題で構成する：サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保、サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵、サブ課題C エネルギー・資源の有効利用。

このため、大学共同利用機関法人自然科学研究機構を代表機関とし、国立大学法人神戸大学、国立研究開発法人理化学研究所、国立大学法人京都大学、国立大学法人東京大学物性研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立大学法人名古屋大学大学院情報学研究科、国立大学法人名古屋大学大学院工学研究科、国立大学法人岡山大学、国立大学法人北海道大学、及び学校法人早稲田大学を分担機関として本業務を実施する。

## 4. 令和元年度（報告年度）の実施内容

### 4-1. 実施計画

- ①サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保 - 太陽光エネルギー（再委託先：国立大学法人神戸大学、国立研究開発法人理化学研究所、国立大学法人京都大学）

<sup>1</sup> 令和元年5月23日にポスト「京」の正式名称が「富岳（ふがく）」に決定しました。本報告書では以降はポスト「京」と表記します。

イ) 光合成シミュレータの開発 (再委託先: 国立大学法人神戸大学)

GELLAN量子化学プログラムをベースとした光合成シミュレータで強相関ソルバのアルゴリズムの高度化を継続し、多核遷移金属錯体を用いたソルバの検証を行う。さらに、半導体光触媒に関するバンドアラインメントの応用計算を実施し、ワニエ有効模型と強相関ソルバを連携したバンドモジュレーションを導入し実験との比較を行う。

ロ) 太陽電池シミュレータの開発 (再委託先: 国立研究開発法人理化学研究所)

数千~1万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、平成30年度までに開発した励起状態に関する密度汎関数計算のためのメモリ分割版プログラムと太陽電池シミュレータを高度化する。さらに、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための手法や非断熱励起状態ダイナミクス、およびそれらのためのプログラムの高度化作業を実施する。

ハ) 有機太陽電池の高効率化の研究 (再委託先: 国立大学法人京都大学)

有機太陽電池における光エネルギー変換高効率化を目指し、ノンフラレン・アクセプター/ドナー界面での大規模励起状態計算によりノンフラレン・アクセプター材料の理論設計を行う。

また、ペロブスカイト太陽電池および水分解光触媒の大規模励起状態計算により、新規材料の理論設計を行う。

②サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 - 電気エネルギー (再委託先: 国立大学法人東京大学物性研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立大学法人名古屋大学大学院情報学研究科、国立大学法人名古屋大学大学院工学研究科)

イ) 全電池シミュレータの総合的开发 (再委託先: 国立大学法人東京大学物性研究所)

平成30年度までの研究により、固体電子論と溶液理論を組み合わせたシミュレーションが開発され、電位差印可に起因する電気二重層や構造、反応エネルギーが計算可能になっている。平成31年度(2019年度)は、これを用いて白金電極における反応機構や反応抵抗の予測に必要な物性値を導出するとともに、プログラムをSTATEに組み込むことにより、前述の大規模シミュレーションを実現する。さらに、開発したプログラムを用いて、遷移金属酸化物電極のシミュレーションを行い、白金代替燃料電池材料の開発指針を獲得する。

ロ) 全電池シミュレータの要素技術開発 (再委託先: 国立研究開発法人物質・材料研究機構)

第一原理分子動力学(MD)自由エネルギー計算アプリstat-CPMDの高機能化(バイアス機能、サンプリング改良、トポロジカル解析連携など)は引き続き進めつつ、公開にむけた準備を行う。

リチウムイオン電池、次世代二次電池の電解液特性解析、電解液探索、界面被膜構造探索、界面被膜特性解析をさらに進め、高性能電解液、被膜の設計指針を構築する。さらに古典MD法などとの連携による全電池シミュレータの構築に取り組む。

ハ) 全電池シミュレーション技術の開発研究 (再委託先: 国立大学法人名古屋大学大学院情報学研究科)

Red Moon法プログラムのさらなる並列化・効率化を行い、100万原子規模の電極/電解液系を用いた被膜形成シミュレーションの実施を可能にする。全電池シミュレータにおける等価回路構築の際に必要な、被膜中のイオン抵抗を推算するためのシミュレーション技術を開発する。

従来の数万原子系で形成された被膜構造を用いて、リチウムイオン輸送経路とイオン抵抗の見

積りに使われる伝導度を評価・解析する。

ニ) 全電池シミュレータの基盤技術の開発研究 (再委託先: 国立大学法人名古屋大学大学院工学研究科)

MODYLASの高度化・開発を継続し、完成させる。特に、FMM (fast multipole method) および粒子対計算に関わる新規通信アルゴリズムならびに新規FMM演算アルゴリズムを実装したMODYLASに対し単精度化を行い、SIMD化などソフト全体のポスト「京」最適化を行う。

また、全電池シミュレータの重要な構成要素である三相界面など不均一環境下での物質輸送に対する解析手法を確立し、電解質膜や電極界面におけるグロータス機構を含むプロトン移動について継続して研究を行う。

③サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 - 化学エネルギー (再委託先: 国立大学法人岡山大学、国立大学法人北海道大学、学校法人早稲田大学)

イ) メタンや水素ハイドレート実用基盤の確立 (再委託先: 国立大学法人岡山大学)

セミクラスレートを含むクラスレートハイドレート一般の安定性の理論的解明と生成解離機構を明らかにする。

ロ) 触媒反応経路探索計算 (再委託先: 国立大学法人北海道大学)

平成30年度は、反応経路自動探索プログラムGRRM17とSMASHの連結ソフトウェアにより実在分子系の反応経路探索を実現し、GRRMとNTChemの一体化を進めた。平成31年度(2019年度)は、GRRMとSMASHおよびGRRMとNTChemの連結ソフトウェアによる反応経路探索計算の効率化を進める。

具体的ターゲットは、理論と実験の連携により実現した非白金系燃料電池触媒BN/Auのさらなる高機能化、ならびにCO<sub>2</sub>有効資源化触媒の機構解明とする。

ハ) CO<sub>2</sub>吸収シミュレーションのための超並列電子状態計算法 (再委託先: 学校法人早稲田大学)

シミュレータの開発では、メモリ使用量削減アルゴリズムの計算コスト削減を図るとともに、完成に向けて各種機能の最終調整と動作検証を行う。MOF (Metal Organic Framework) などの材料系を取り扱うための計算パラメータについて、これまでに着手した金属元素 (Al, Cu, Cd) の開発の仕上げを実施する。

実証計算では、アミン-CO<sub>2</sub>溶液系の大規模シミュレーションよりアミンのpKa (酸解離定数) に対するCO<sub>2</sub>化学吸収の反応性を解析する。作製した計算パラメータをMOF-CO<sub>2</sub>系に適用し、CO<sub>2</sub>吸着に関する手法のアセスメントおよび吸着位置やMOFを構成する金属イオン・配位子の効果を検討する。

ニ) メタンハイドレートの溶融や貯蔵に向けた新規技術の理論

メタンハイドレートの分子動力学シミュレーションの並列化効率を高めるため、開発したノード内計算負荷分散改良アルゴリズムのメニーコアマシンでの実証計算を行う。

④基盤アプリ設計・開発 (再委託先: 国立研究開発法人理化学研究所)

コデザインワーキンググループを継続開催することにより、ターゲットアプリに関するコデザインを推進する。また、コデザインワーキンググループ活動の成果をもとにポスト「京」に向けた基盤アプリおよび課題アプリの高度化を進める。

⑤プロジェクトの企画・改善提案（再委託先：国立大学法人名古屋大学大学院工学研究科、国立大学法人神戸大学）

プロジェクト推進上の課題、或いは課題になると思われる事項について、幅広く検討を行い、課題責任者と協議し、プロジェクトを遅滞なく推進するための企画や改善策を運営委員会へ提案する。併せて、プロジェクト推進のために課題責任者の補佐を行う。

⑥プロジェクトの総合的推進

プロジェクト全体の連携を密としつつ円滑に運営していくため、運営委員会などの開催等、参画各機関の連携・調整にあたる。特に、プロジェクト全体の進捗状況を確認しつつ計画の合理化を検討し、必要に応じて調査或いは外部有識者を招聘して意見を聞くなど、プロジェクトの推進に資する。プロジェクトで得られた成果については、広報や研究活動を通じて積極的に公表し、今後の展開に資する。加えて、上記①から③で開発するシミュレータのコアとなる基盤アプリ

(NTChem, GELLAN, MODYLAS, stat-CPMD) について、ポスト「京」開発ベンダーと協力してポスト「京」をターゲットとした高度化を実施する。また、基盤アプリと連携し課題解決にあたる課題アプリの整備・高度化等を実施する。

尚、本プロジェクトのサブ課題間は勿論、重点課題⑥を含む関連するプロジェクトとのコミュニケーションを密に行う。また、国内外のエネルギー関連課題の調査研究により産業界の実ニーズを把握すると共に、実験研究の進展をタイムリーに取り込むための民間企業研究者・実験研究者と定期的に交流する。これらの目的のために、公開の研究会などの企画・実施を行う。

若手研究員（ポスドク等）については、有能な人材を確保し、育成する計画を継続する。これに伴い、若手研究員の連携、将来のステップアップまで見据えた登用や人材育成の取り組みを継続していく。

## 4-2. 実施内容（成果）

### 4-2-1. 全体概要

本重点課題では、ポスト「京」を駆使することにより、太陽電池、人工光合成による新エネルギーの創出・確保、燃料電池、二次電池によるエネルギーの変換・貯蔵、また、メタンやCO<sub>2</sub>の分離・回収、貯蔵、触媒反応によるエネルギー・資源の有効利用など、太陽光エネルギー、電気エネルギーや化学エネルギーにおいて中心的な役割を担う複雑で複合的な分子・物質過程に対する電子・分子レベルでの全系シミュレーションを行い、実験研究者、産業界と連携して、高効率、低コスト、また環境に優しく持続可能なエネルギー新規基盤技術を確立し、同時に、これまで計算機資源の不足により制限されていた孤立系や部分系における単一現象の科学から脱却し、現実系である界面、不均一性を有する電子、分子の複合現象を統合的に捉え得る新しい学術的視点を確立し、科学的なブレークスルーを達成することを目指している。

令和元年度の成果は以下の通りであり、ポスト「京」に向けたプログラム開発、研究開発が順調に進んだ。

サブ課題A：太陽電池シミュレータを構成する NTChem（汎用第一原理電子状態計算ソフト、コードデザインのターゲットアプリ）において、数千～1 万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、開発した励起状態に関する密度汎関数法（時間依存密度汎関数法）計算のためのメモリ分割版プログラムと太陽電池シミュレータを高度化した。さらに、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための動的モンテカルロ法や非断熱励起状態ダイナミクス法、およびそれらのためのプログラムの高度化作業を実施した。

人工光合成シミュレータを構成する基盤アプリ GELLAN（階層的量子化学計算ソフト）においては、新たなポスト PHF として、コストと精度のバランスを保った二次の摂動論を開発し、本手法を分散メモリ型並列実装した。また、固体の電子状態計算に対する新しいアプローチとして、バルク系の実空間局所モデルをポスト HF 計算に基づく量子化学計算によって解析する数値計算手法を開発した。

実証研究においては、有機太陽電池の効率を向上させる重要な要素であるモルフォロジーの導電性原子間力顕微鏡（C-AFM）結果を動的モンテカルロ法によりシミュレートする手法を開発した。ペロブスカイト太陽電池における低分子の正孔輸送材料に対し、太陽電池のエネルギー変換効率の予測モデルを「京」コンピュータと太陽電池シミュレータによるシミュレーションと機械学習により構築し、spiro-OMeTADに代わる高効率な新規正孔輸送材料を提案した。

人工光合成シミュレータを構成する基盤アプリ GELLAN を使い、BiVO<sub>4</sub> の表面状態を計算し、バンド構造の面依存性に関して定性的理解を得た。さらに、Z-スキーム型人工光合成におけるメディエータと助触媒の役割を調べるために、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行い金属/半導体の界面状態の解析を行った。

サブ課題B：二次電池の電極・電界液界面計算のためのアプリ開発として、第一原理計算 stat-CPMD の高効率並列計算を可能とする改良を行い、量子古典混合計算手法 RedMoon の並列効率を改

善するためのLAMMPSベースの新しいRedMoonを構築・整備した。燃料電池電極界面の第一原理計算については、DFT+RISM法を組み込んだSTATEにより、サイクリックボルタンメトリー（電流電圧曲線）の予測に必要なパラメータを第一原理的に求め、シミュレータの精度を確認した。固体高分子の古典分子動力学計算MODYLASについては、性能向上のため新規通信アルゴリズムの採用やチューニング等を行い、性能目標達成の見通しを得た。

実証研究においては、二次電池メカニズム解明に関しては、電解液系の微視的物性解析に加えて、ヘテロ固固界面の高効率構造サンプリングを可能にする手法を開発し、全固体電池のイオン輸送の微視的、メカニズムを明らかにした。また、リチウムイオン二次電池における電極電位の制御条件下で被膜形成シミュレーションを実施し、新たな知見を得た。燃料電池については、遷移金属酸化物電極のシミュレーションとその熱力学的な解析に基づき、貴金属を少量ドープした酸化チタンおよび酸化ジルコニウムが白金を超える活性を持つことを予測した。

サブ課題C：ハイドレートについては、温度、圧力、そしてゲストのモル分率を独立変数としてハイドレート生成条件を求める基礎原理と、それに基づいたソフトの種々のゲストへの拡張を行った。さらに、包接水和物（クラスレートハイドレート）や氷の結晶構造を作成するアプリを、より多数の氷種などを扱えるようにした。

高機能触媒開発については、任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を可能とするため、mpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装を進めた。また、ポスト「京」で得られるGRRM出力ファイルより分子構造やエネルギー等の情報を読み取り分類して、GRRM計算の結果から容易に反応経路地図を作成するソフトウェアSAFIRE(Simple AFIR connection Extractor)を開発し、公開に向けて準備した。

CO<sub>2</sub>分離・回収については、複雑系の構造サンプリングや自由エネルギー計算の収束性改善における有効な手法として、レプリカ交換分子動力学・メタダイナミクス法をシミュレータに実装した。さらに、大規模計算におけるメモリ使用量削減を検討し、最大2300万原子系で超並列電子状態計算の動作検証を行った。

基盤アプリ開発：ターゲットアプリであるNTChemについて、コデザインワーキンググループを継続開催することにより、ターゲットアプリに関するコデザインを推進し、ポスト「京」における当初計画の性能実現の見通しを得た。また、コデザインワーキンググループ活動の成果をもとにポスト「京」に向けた基盤アプリおよび課題アプリの高度化を進めた。

インフォマティクスWG：WG等を開催し、情報交換を行い、ポスト「京」に向けたインフォマティクスへの取り組み方について議論した。

プロジェクトの推進のため、運営委員会(2回)を開催した。本課題で得られた成果を広報するため、研究成果説明CGへのナレーション追加、第6回HPCIシステム利用研究課題成果報告会、理研計算科学研究センター一般公開や第9回材料系ワークショップでの出展や研究成果の重点課題5ホームページ掲載などを行った。尚、産業界の実ニーズを把握すると共に、実験研

究の進展をタイムリーに取り込むため、連携推進ワークショップを12回開催し、情報発信と収集に努めた。また、本課題で開発するアプリ利用人材を育成することを狙って、量子化学(参加者79名、講師9名)、分子シミュレーション(参加者123名、講師19名)のスクールなどを開催した。更に、「京」計算機資源の利用管理により、計画的利用を行い「京」計算資源配分値を使いきった(98%利用)。

#### 4-2-2. サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保 - 太陽光エネルギー

[責任者]天能精一郎（神戸大）

[実施者]天能精一郎（神戸大）、中嶋隆人（理研）、山下晃一（京大）

[研究の背景と目的]

太陽光を利用して高効率エネルギー変換を行うための理論的研究を行う。対象を光合成系と有機系太陽電池とし、前者では、植物の光合成における明反応の仕組みを電子状態計算により明らかにし、人工光合成系の設計指針への可能性を探ると共に、金属錯体や半導体光触媒での水分解反応機構に関する基礎研究を行う。また、有機薄膜太陽電池の高効率化に向けて、分子設計とモルフォロジーや界面の制御に関する理論研究を行う。得られた知見をもとに、エネルギー変換効率の高い有機系太陽電池や人工光合成を実現するための新規エネルギー材料をシミュレーションと実験の共同研究により見出し、資源問題の解決に貢献する。

化石燃料を輸入に頼る我が国では、それに代替する化学原料の確保が重要な課題である。太陽光によって水分解を行う人工光合成では、水素燃料の利用やCO<sub>2</sub>との合成触媒反応による化学品の製造が期待され、実用化に向けた研究開発が国プロとして進められている。その一方で、高効率の水分解を実現する光触媒の開発には未解決な要因が多く、計算科学的なアプローチを援用した集約的な開発が必要である。本研究項目では、主に階層的量子化学プログラムGELLANをベースとした光合成シミュレータを開発し、ポスト「京」の十分な活用を可能にする基盤技術の整備を行う。更に、開発されたアプリケーションを用いて、半導体光触媒や植物を模した多核金属錯体の反応メカニズムの解明を行い、高効率の光触媒設計の明確な指針を示す。

一方、太陽光発電は太陽電池を用いて光起電力効果を利用し、太陽光エネルギーを電気エネルギーへ直接変換できる発電方式であり、無尽蔵にある太陽エネルギーの有効利用として、再生可能エネルギー創生の要である。太陽電池は光吸収材料あるいはデバイス形態などにより、多くの種類に分類されるが、光吸収層に有機化合物を用いた有機太陽電池は、軽量、フレキシブルで意匠性が高く、塗布プロセスにより安価に製造することができることから、次世代太陽電池の主流になると期待され、現在世界中で活発な研究開発競争が行われている。本課題では、有機太陽電池における光エネルギー変換の高効率化を目指し、NTChemを中心とした太陽電池シミュレータを開発することにより、太陽光により生成したエキシトン（クーロン相互作用した電子-正孔対）の有機電子供与体（ドナー材料）・有機電子受容体（アクセプター材料）界面での電荷分離過程を高効率に起こす有機物材料を探索する。またドナー・アクセプター活性層界面のモルフォロジーについて、高効率化に有効なバルク構造の実現プロセスを分子論的に明らかにする。

[研究成果の概要]

[アプリ開発]

太陽電池シミュレータを構成するNTChemでは、数千～1万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、平成30年度までに開発した励起状態に関する密度汎関数法（時間

依存密度汎関数法) 計算のためのメモリ分割版プログラムと太陽電池シミュレータを高度化した。さらに、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための動的モンテカルロ法や非断熱励起状態ダイナミクス法、およびそれらのためのプログラムの高度化作業を実施した。

人工光合成シミュレータを構成する基盤アプリGELLANでは、新たなポストPHFとして、コストと精度のバランスを保った二次の摂動論を開発し、本手法を分散メモリ型並列実装した。また、固体の電子状態計算に対する新しいアプローチとして、バルク系の実空間局所模型をポストPHF計算に基づく量子化学計算によって解析する数値計算手法を開発した。

#### [実証研究]

有機太陽電池の効率を向上させる重要な要素の1つにモルフォロジーがある。導電性原子間力顕微鏡(C-AFM)は、高解像度でモルフォロジーを観察できる実験的手法であるが、3次元情報を取得することは困難である。そこで、動的モンテカルロ法を用いて、モルフォロジーのC-AFMをシミュレートする手法を開発した。

ペロブスカイト太陽電池における低分子の正孔輸送材料に対し、太陽電池のエネルギー変換効率の予測モデルを「京」コンピュータと太陽電池シミュレータによるシミュレーションと機械学習により構築し、spiro-OMeTADに代わる高効率な新規正孔輸送材料を提案した。

人工光合成シミュレータを構成する基盤アプリ GELLAN を使い、PHF 法の摂動論を用いて遷移金属化合物に対しスピン状態間エネルギー計算を行った。BiVO<sub>4</sub>の表面状態を計算し、バンド構造の面依存性に関して定性的理解を得た。さらに、Z-スキーム型人工光合成におけるメディエータと助触媒の役割を調べるために、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行い金属/半導体の界面状態の解析を行った。

## イ) 光合成シミュレータの開発

[実施者] 天能精一郎 (神戸大)

[実施担当] 土持崇嗣、XU ENHUA、西口和孝 (神戸大)

### [実施概要]

新たなポスト PHF として、コストと精度のバランスを保った二次の摂動論を開発した。また、本手法を分散メモリ型並列実装した。さらに、固体の電子状態計算に対する新しいアプローチとして、バルク系の実空間局所モデルをポスト HF 計算に基づく量子化学計算によって解析する数値計算手法を開発した。

PHF 法の摂動論を用いて、遷移金属化合物に対しスピン状態間エネルギー計算を行った。BiVO<sub>4</sub> の表面状態を計算し、バンド構造の面依存性に関して定性的理解を得た。さらに、Z-スキーム型人工光合成におけるメディエータと助触媒の役割を調べるために、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行い金属/半導体の界面状態の解析を行った。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

ポスト PHF 法における計算対象である Ferrocene と [Fe(NO)(CO)<sub>3</sub>] はそれぞれ 96 個、84 個の電子を持つ分子であり、基底関数には cc-pVTZ を用いた。BiVO<sub>4</sub> のスラブモデル計算では 010 面は 16 個の、011 面では 20 個の Bi と V をそれぞれ含むスーパーセルに対して周期境界条件下で PBE 汎関数・ハバード U・スピン軌道相互作用補正を用いて行った。

### [並列計算の方法と効果]

ポスト PHF 法の一つである SUPT2 法について、二電子励起演算子の占有電子ペアに対して MPI 並列実装を行い、振幅や積分をノード分散しつつ線形方程式を解くことを可能にした。これにより、積分のみで数~数十 GB に達するような大規模な系にも対応することが可能となった。

### [研究成果]

配置間相互作用と結合クラスター近似によるポスト PHF は高精度であるが、一方で高コストでもある。そのうち最も計算コストの高いステップは、仮想軌道のみからなる分子積分 ( $ab|cd$ ) と CI 係数  $t(cd, ij)$  の縮約であり、これは軌道数  $N$  の 6 乗に比例する。本年度は、このような縮約を無視し、計算精度にある程度の妥協を許すことで計算コストを  $O(N^5)$  に低減した二次の摂動論 SUPT2 を導出した。配置間相互作用などでは並列計算でも計算時間がかかる大きな分子に対しても SUPT2 は非常に高速に計算でき、なおかつ遷移金属錯体に対する精度も十分良好なものとなることがわかった。しかしながら一方で振幅や積分を保存するメモリは  $O(N^4)$  のオーダーで増加し、これがポスト「京」上で実行する上で大きなボトルネックになることがわかった。そこで電子ペア  $ij$  に対して全ての 4 階のテンソルデータを分散する分散メモリ型 MPI 実装を行った。SUPT2 で現れる大規模な線形方程式は on-the-fly で部分空間の中で反復的に解かれるが、行列-ベクトル積で行われる全通信を最小限に抑えたアルゴリズムを提

案した。「京」と類似環境の名古屋大学 FX100 によるベンチマーク結果では、通信が律速になることがわかったが、十分な高速化が達成できた。

半導体を含むバルク系の電子状態計算では密度汎関数理論に基づく第一原理計算が有効であるが、局所密度近似でのバンドギャップの過小評価や混成汎関数の改良指針など電子相関効果の取り扱いが現在でも課題となっている。このような固体に対する新しいアプローチとして、バルク系の実空間局所模型をポスト HF 計算に基づく量子化学計算によって解析する数値計算手法を提案した[1]。その方法では、バルク系の HF 計算から Bloch 関数とその固有値を計算し、そこから最局在 Wannier 関数 (MLWF) を基底とする有効ハミルトニアン (Fock 行列と相互作用行列) を導出し、バルク系の実空間局所模型である強相関クラスターモデルを得る。更に、この強相関クラスターをポスト HF 計算である EOM-MP2/CC によって解析することで電子相関効果の取り込まれた有効 Fock 行列が得られ、これを元の Fock 行列に再度埋め込むことで、電子相関効果を考慮したエネルギーバンドが得られる。我々は、水素発生半導体光触媒である SrTiO<sub>3</sub> に対しこの方法を適用し、HF 計算によるバンドギャップの過大評価が電子相関効果によって改善されることを示した。これによって、半導体光触媒の性能評価を含めたバルク系の高精度な電子状態計算を行う数値計算手法の確立が期待される。

遷移金属錯体は一般的に強電子相関系であることが知られているが、相関の程度は系によって異なる。同じ鉄錯体でも [Fe(NO)(CO)<sub>3</sub>]<sup>-</sup> は強相関だが、Ferrocene は弱相関であり通常の HF から出発した MP2 でも十分定性的に記述することができる。一方で前者に関しては単参照手法では破綻する。また、強く相関すると考えられる部分的なヒルベルト空間内で厳密対角化を行う CASSCF やこれに対する二次の摂動論 NEVPT2 はどのように活性空間を選択するかにより結果が大きく異なる場合がある。一方で、本年度開発したポスト PHF である SUPT2 は、自動的に活性空間を選択することでこの問題を取り除き、いずれの系においても三重項励起エネルギーを良好に再現することに成功した[2]。以上から、遷移金属錯体計算におけるポスト PHF 法の優位性を示せた。

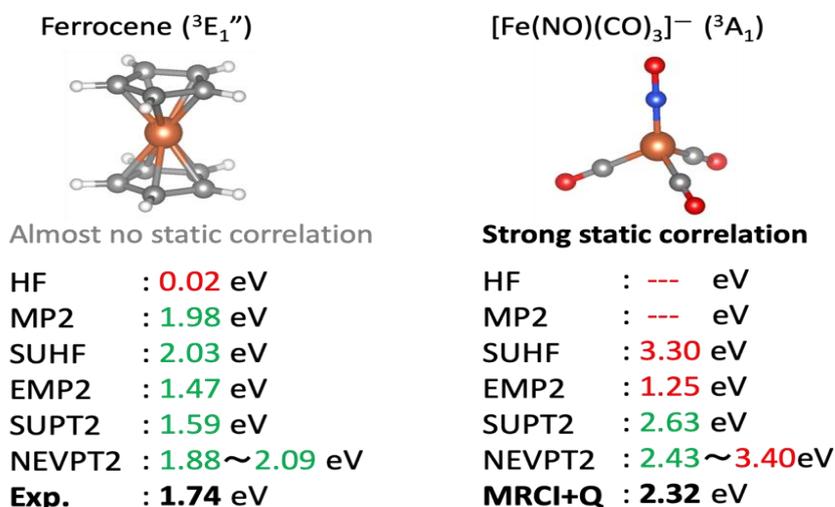


図 4-2-2-1. ポスト PHF 法 (SUPT2) を用いた遷移金属錯体におけるスピンギャップ

BiVO<sub>4</sub>は助触媒なしに効率的に酸素発生を起こすことが知られている。同結晶は10面体構造を持ち、010面に電子が110面に正孔が引き寄せられることで電荷分離が行われているが、その理由や機構は完全に明らかになってはいない。そこで、各面に対して40Å以上の長さに取り切ったスラブモデルを用意し、「京」を用いて電子状態を計算した。バンドギャップはほとんど変わらないものの、仕事関数が1 eV以上異なることがわかった。真空準位を共通とみなすと、VBM・CBMともに大きく傾いており、内部で生成されたキャリアが別々の面に向かうことが示唆された。

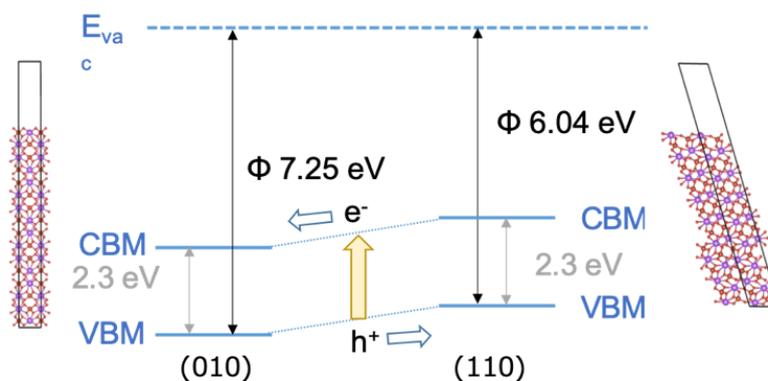


図 4-2-2-2. BiVO<sub>4</sub> バンド構造の表面依存性  
(表面のスラブモデルを左右に表示)

Z-スキーム型人工光合成による完全水分解では、水素発生側と酸素発生側の半導体光触媒による二段階励起を実現するために、これら異なる半導体光触媒を金属メディエータによって接合する。また各々の光触媒での反応促進のために助触媒として金属担持が行われる。我々は、Z-スキーム型人工光合成でのメディエータと助触媒の役割をキャリア移動の観点から解析するために、金属/半導体のスラブモデルを用いて界面状態の解析を密度汎関数理論に基づく第一原理計算で行った。ここでは、水素発生半導体光触媒 SrTiO<sub>3</sub> に注目し、メディエータとしては Au, Ag, Cu、助触媒としては Ir, Pt, Rh を評価した。また、結晶構造の緩和のため構造最適化には GGA を使い、電子状態計算には半導体側のバンドギャップを再現するために GGA+U を用いた。この解析によって、得られた電子状態から局所状態密度を計算することで、金属/半導体界面においてバンド曲がりが生じることを示した。従って、バンド曲がりによる電子・正孔分離や Schottky 接合によって界面でのキャリア移動が決定されることが示唆される結果を得た。また同様の解析によって、様々な半導体光触媒とそのメディエータと助触媒の物質依存性を解析できることが期待される。

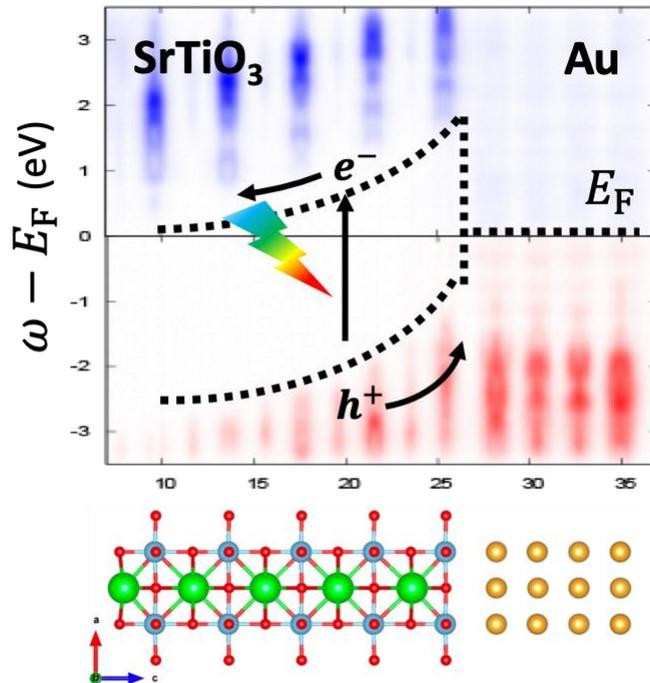


図 4-2-2-3. 半導体光触媒 SrTiO<sub>3</sub> とメディエータ Au の局所状態密度 (Sr : 緑色、Ti : 水色、O : 赤色、Au : 金色)

[研究成果の利活用について]

酸素発生系では BiVO<sub>4</sub> の面方位依存性と CoPi での反応機構、水素発生系では SrTiO<sub>3</sub> と金属助触媒及びメディエータの計算結果について、理論と実験の両面からの検証方法について議論を進めた。

[今後について]

人工光合成シミュレータを成す強相関ソルバは、PHF 法、PostPHF 法、MSQMC 法の MPI/OpenMP ハイブリッド並列化が進み、FCCR 法についても摂動補正法の開発が完了した。GELLAN と VASP と連携した最局在化ワニエ有効モデルによる定量的なバンド構造の予測を進める事により、有効な半導体光触媒の材料設計や界面付近でのバンド曲がりを含めた面依存性やデバイス特性の予測を行なっていく。

[参考文献]

- [1] B. Ladoczki and S. L. Ten-no, “Stochastic perturbation theory in a limited configuration space”, J. Chem. Phys., **151** 114113 (2019).
- [2] T. Tsuchimochi and S. L. Ten-no, “Second-order perturbation theory with spin-symmetry projected Hartree-Fock”, J. Chem. Theor. Comp., **15** 6688 (2019).
- [3] S. Tanimoto, N. Yoshihda, S. L. Ten-no, and H. Nakano, “Effect of Molecular Orientational Correlations on Solvation FreeEnergy Computed by Reference Interaction

Site Model Theory” , J. Chem. Inf. Model., **59** 3770 (2019).

[実施計画の最終目標の達成状況]

10<sup>20</sup>以上の複雑な電子配置が重要な寄与をする電子系の高精度計算が可能な光合成シミュレータを完成させ、複雑な組成を持つ半導体光触媒や、電子相関が強くこれまで取り扱いが困難であった多核金属酸化物を含む人工光合成系の定量的な取り扱いが可能となった。また、バンドモジュレーションの開発により、半導体材料の定量的な計算が可能になった。

光合成シミュレータを用いて、半導体/金属界面の計算により得られるキャリア特性から最適な助触媒を予測した。

## ロ) 太陽電池シミュレータの開発

[実施者] 中嶋隆人 (理研)

[実施担当] 嶺澤範行、米原文博、植村渉、William Dawson、神谷宗明 (理研)

### [実施概要]

数千~1万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、平成30年度までに開発した励起状態に関する密度汎関数法 (時間依存密度汎関数法) 計算のためのメモリ分割版プログラムと太陽電池シミュレータを高度化した。さらに、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための動的モンテカルロ法や非断熱励起状態ダイナミクス法[1]、およびそれらのためのプログラムの高度化作業を実施した。

ペロブスカイト太陽電池における低分子の正孔輸送材料に対し、太陽電池のエネルギー変換効率の予測モデルを「京」コンピュータと太陽電池シミュレータによるシミュレーションと機械学習により構築し、spiro-OMeTADに代わる高効率な新規正孔輸送材料を提案した。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

最大 11,310 原子からなる有機薄膜太陽電池ドナー材料 P3HT 分子の時間依存密度汎関数法計算。

### [並列計算の方法と効果]

平成30年度までに開発したメモリ分割アルゴリズムと超並列疎行列ライブラリNTPolyを利用した基底状態の密度汎関数法[2]を時間依存密度汎関数法に拡張した。「京」運用停止後に理研・HOKUSAIの超並列演算システム (BWMP) 32ノードを用いて計算を行った。1ノードあたり1MPIプロセス、40スレッドのハイブリッド並列を用いた。

### [研究成果]

- ・メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論計算プログラムの開発

時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) は、その妥当なコストと比較的高い精度のために励起状態を計算するための一般的な方法論になりつつある。この方法では繰り返しアルゴリズムを使えば基底状態の計算と同等のスケールで励起状態等の計算ができるが、分子サイズの増大に従って、これらの配列のメモリ使用量は基底関数の数の二乗で飛躍的に増加する。そのため、数万原子にも及ぶ大規模な分子系の励起状態を計算するためには、これらの配列のメモリ分割化が必要不可欠である。そこで、本研究では大規模分子の励起電子状態計算を超並列コンピュータで実行することを目的として、メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) 計算プログラムの開発を行った。

本研究では原子軌道 (AO) 表現の TDDFT 方程式を導出し、AO 表現の X, Y に対して trial vector を張り、繰り返し法で解くプログラムの実装を行った。繰り返し法のアルゴリズムは KAIN [R. J Harrison. J. Comput. Chem. 25, 328 (2004).] を使った。AO 表現のそれぞれの行列は Gauss 基底関数を使っていることにより大規模系においては疎なので、本研究では超並

列疎行列ライブラリ NTPoly [W. Dawson and T. Nakajima, Comput. Phys. Comm. 225, 154 (2018).] を使うことにより、行列要素の分散を行いつつ疎行列の数々の演算を行った。開発したコードの性能を測るため、「京」運用停止後に太陽電池材料である P3HT の計算を行った。計算は理研・HOKUSAI の超並列演算システム (BWPC) 32 ノードで行った。この計算では 1 ノードあたり 1 MPI プロセス、40 スレッドのハイブリッド並列を用いた。系のサイズを大きくして計算時間と比較を行った結果、線形ではないが低いスケーリングを示した。その結果として、最大 11,310 原子からなる分子系に対する TDDFT 計算をすることができた。

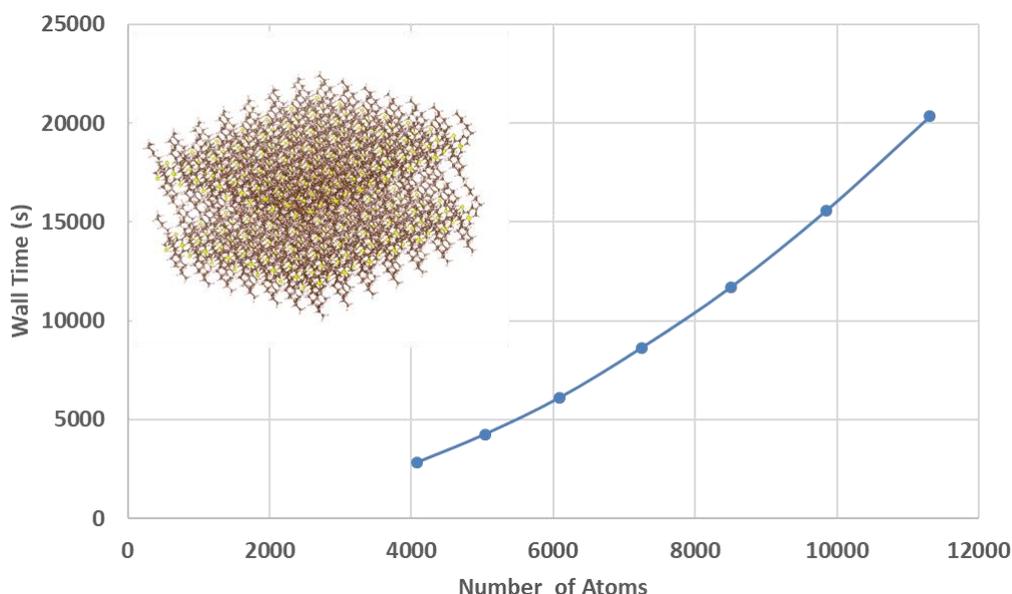


図 4-2-2-4. 有機薄膜太陽電池ドナー材料 P3HT 分子の原子数を変えた場合の時間依存密度汎関数法計算にかかる時間 (s)

・シミュレーションとインフォマティクスによるペロブスカイト太陽電池材料の新規正孔輸送材料の分子設計

ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送材料 Spiro-OMeTAD はその高いエネルギー変換効率で知られている。 $(\text{FAPbI}_3)_{0.92}(\text{MAPbBr}_3)_{0.08}$  ペロブスカイトに対するエネルギー変換効率は 23.4% である。Spiro-OMeTAD の合成費用はおよそ \$274/g と推定されている。比較的高いエネルギー変換効率でより安価な正孔輸送材料も見つかっているが、より高いエネルギー変換効率を保持しつつより安価な合成コストが推定される材料の探索が必要である。「京」と太陽電池シミュレータを活用したシミュレーションと機械学習を用いて正孔輸送材料を効率的に探索することを目指した。

既存の正孔輸送材料の分子構造の組合せから分子を生成し、そのエネルギー変換効率を推測する学習モデルを構築した。学習モデルの訓練データには、ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送材料のエネルギー変換効率の実験値 (計 400) を用いた。入力データとして正孔輸送材料 (170 分子)、活性層 (54 組成, バンドギャップ, VBM, CBM)、電子輸送材料 (6 分子, CBM)、ドープアント、コドーアント、活性面積、エネルギー変換効率を採用した。170 分子の正孔輸送材

料を3つのフラグメントに分解し、これらのフラグメントの組合せから候補分子を構築した。Mordredを用いてフラグメント毎に分子記述子を計算した。量子化学計算から得られる記述子(HOMO, LUMO, 全エネルギー, 電子エネルギー, 生成熱, 分散力エネルギー, 双極子モーメント)は「京」でNTChemを使って計算した。これらの組み合わせを正孔輸送材料の入力データとし、エネルギー変換効率を推測する深層ニューラルネットワークを構築した。典型的な実験条件のもと候補分子をガウス過程回帰モデルによって選択した。仮想実験として、深層ニューラルネットワーク推測モデルから候補分子のエネルギー変換効率を推測した。仮想実験を繰り返すことで、ガウス過程回帰モデルを改善し、最適な候補分子を探索した。候補分子の組合せはおよそ32,294,400通りとなり、このケミカル空間を網羅的に探索することは困難である。離散粒子群最適化を採用し、膨大なケミカル空間を探索した。この推測モデルが与えるエネルギー変換効率を目的関数として離散粒子群最適化法を適用した。典型的な実験条件としてTiO<sub>2</sub>電子輸送層と(FAPbI<sub>3</sub>)<sub>0.85</sub>(MAPbBr<sub>3</sub>)<sub>0.15</sub>活性層を採用し候補分子の探索を行った[3]。SAF骨格およびSFX骨格を有する候補分子のエネルギー変換効率が高いことが示された。

#### [今後について]

太陽電池シミュレータの超並列環境での高度化を進めた。特に、昨年度までに開発した高次元トラスネットワークアーキテクチャに適応したアルゴリズムと超並列疎行列ライブラリを用いたメモリ分割アルゴリズムを線形応答型時間依存密度汎関数法へ拡張し、大規模分子に対する励起状態計算を可能にした。また、「京」と太陽電池シミュレータを使った電子状態計算を実施し、機械学習を活用することで新規の正孔輸送材料の新材料設計を行った。今後は、開発した太陽電池シミュレータを幅広く活用できる仕組みを考えたい。

#### [参考文献]

- [1] T. Yonehara, N. Minezawa, T. Nakajima, “Excited-State Dynamics in NTChem”, in *Molecular Spectroscopy: A Quantum Chemistry Approach*, edited by Y. Ozaki, M. J. Wojcik, J. Popp (Willey), 43-78 (2019).
- [2] W. Dawson, 澤田啓介, 神谷宗明, 中嶋隆人, “スーパーコンピュータ「富岳」に向けた分子科学計算ソフトウェア「NTChem」の開発”, *シミュレーション*, **38**, 87-93 (2019).
- [3] 中嶋隆人, 松岡貴英, “シミュレーションとインフォマティクスによるペロブスカイト材料の候補探索”, *光学*, **48**, 114-119 (2019).

#### [実施計画の最終目標の達成状況]

太陽電池シミュレータを開発し、高次元トラスネットワークアーキテクチャに適応したアルゴリズムと超並列疎行列ライブラリを用いたメモリ分割アルゴリズムに基づき、有機系太陽電池材料のような数千~1万原子から成る大規模な分子系の基底・励起状態での挙動や物性のシミュレーションを実現する基盤を構築した。また、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための動的モンテカルロ法や非断熱励起状態ダイナミクス法、およびそれらのためのプログラムを太陽電池シミュレータとして開発・実装した。

「京」やポスト「京」の超並列環境を有効に活用するためのマテリアルズ・インフォマティクス技術を開発した。例えば、「京」を利用したハイスループット・シミュレーションを実施し、マテリアルズ・スクリーニングに基づいた探索により、非毒性元素を用いたペロブスカイト太陽電池の新たな材料候補を発見した。また、ペロブスカイト太陽電池における低分子の正孔輸送材料に対し、太陽電池のエネルギー変換効率の予測モデルを「京」と太陽電池シミュレータによるシミュレーションと機械学習により構築し、spiro-OMeTAD に代わる高効率な新規正孔輸送材料を提案した。

## ハ) 有機太陽電池の高効率化の研究

[実施者]山下晃一 (京大)

[実施担当]金子正徳 (京大)、川嶋英佑 (理研)、村岡梓 (日本女子大)

### [実施概要]

モルフォロジーは、有機太陽電池の効率を向上させる重要な要素の 1 つである。導電性原子間力顕微鏡 (C-AFM) は、高解像度でモルフォロジーを観察できる実験的手法であるが、3次元情報を取得することは困難である。そこで、動的モンテカルロ法を用いて、モルフォロジーの C-AFM をシミュレートする手法を開発した。

ペロブスカイト型太陽電池の高効率な創電メカニズムに関して、ハイブリッド型ハライドペロブスカイト太陽電池材料について第一原理分子動力学計算を行い、光生成キャリア再結合抑制の要因を明らかにすることにより、新規材料の設計指針を示すことができた。

ペロブスカイト型構造をもつ BaTaO<sub>2</sub>N の W および Nb ドープ系に関する第一原理計算によるバンド構造の観点から物性の制御指針について検討し、Nb ドープ BaTaO<sub>2</sub>N が新規水分解光触媒材料として期待されることを示した。

### [計算モデル]

レピュテーションモデルを用いたモンテカルロ法

### [研究成果]

薄膜有機太陽電池のドナー、アクセプター界面で形成されるモルフォロジー制御は、太陽電池の効率を向上させる重要な要素の 1 つである。導電性原子間力顕微鏡 (C-AFM) は、高解像度でモルフォロジーを観察できる実験的手法である。そこで、動的モンテカルロ法を用いて、モルフォロジーの C-AFM をシミュレートする手法を開発した。実験可能なプローブ地点ごとにシミュレーションを行い、正孔注入電流は、注入された正孔数をシミュレーション時間で割ることによって得た。正孔はプローブされた空のドナー格子に、探針から確率的に注入した。モルフォロジーと正孔注入の断面電流の解析から、界面面積が小さいモルフォロジーがより有利な輸送経路を有するため、高い電流値を示すことが明らかとなった[1, 2]。今後、開発した本手法と、モルフォロジーと変換効率の相関に関する機械学習を用いて、モルフォロジー制御による有機太陽電池の高効率化に向けた研究を進める。

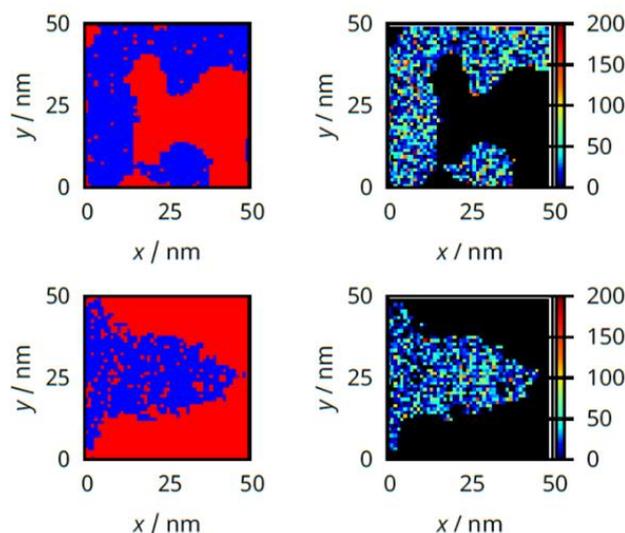


図 4-2-2-5. 左：異なる温度と相互作用におけるモルフォロジーの断面（青はドナー、赤はアクセプター）、右：正孔注入電流値

また有機太陽電池における光エネルギー変換高効率化を目指し、引き続きノンフラレン・アクセプター/ドナー界面での大規模励起状態計算による研究を進めた。これまでドナー分子（PTB7）とノンフラレン・アクセプター分子（ITIC）、F置換後のアクセプター分子（IT4F）の複合体の電荷分離過程について、電荷移動距離、電荷移動量を時間依存密度汎関数計算により解析した結果、F置換により開放電圧  $V_{oc}$  は減少するが、電荷移動距離、電荷移動量共に増加することを明らかとし、短絡電流密度  $J_{sc}$  の増加、またアクセプター分子での光吸収増加により光電変換効率が向上すると結論した。さらに通常、計算コストの観点から、有機化学物の炭化水素側鎖をメチル基で置き換えるが、 $-C_4H_6$ 、 $-C_8H_{14}$  基とノンフラレン有機分子の側鎖の現実に近いモデル化により、ドナー・アクセプター界面の分極効果を正しく再現できることを見出した。

ペロブスカイト型太陽電池の高効率な創電メカニズムに関して、ハイブリッド型ハライドペロブスカイト太陽電池材料について第一原理分子動力学計算を行い、電子構造の時間変化を解析した。価電子帯上端、伝導帯下端の波動関数は時々刻々、空間的に隔たって局在し、光生成した電子、正孔は空間的に隔たった拡散経路を有しうることが分かった。この波動関数の空間的局在は鉛-ハライド格子の構造揺らぎに起因し、またAサイトカチオンの回転運動は波動関数の局在化への影響は少ないことが明らかとなった。光生成キャリア再結合抑制の要因を明らかにすることにより、新規材料の設計指針を示すことができた。

ペロブスカイト型構造をもつ  $BaTaO_2N$  は、可視光応答に適したバンドギャップを持ち、また伝導帯および価電子帯のエネルギーは水分解反応の酸化還元電位を挟んでおり、水分解光触媒として水の全分解反応を起こすための熱力学的な条件を満たしているが、水の全分解反応は未だ達成されておらず、その実現に向けた物性の制御が必要とされている。そこで  $BaTaO_2N$  の W および Nb ドープ系に関する第一原理計算によるバンド構造の観点から物性の制御指針につい

て検討し、Nb ドープは W ドープよりも優れたキャリア有効質量やバンド端位置を有し、Nb ドープ BaTaO<sub>3</sub>N が新規水分解光触媒材料として期待されることを示した。

#### [研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

- ・家教授（阪大産研） 有機太陽電池材料の誘電率を高める理論設計方針を提案し、家グループで合成に成功し、共著論文を投稿
- ・堂免教授（ArpChem, 信州大） 水分解光触媒、ペロブスカイト酸窒化物の構造とバンドギャップに関して共同研究を実施[3]
- ・工藤教授（東理科大） 半導体化合物のバンド端、金属元素ドープの効果に関して共同研究を実施

#### [今後について]

有機太陽電池における光エネルギー変換高効率化を目指し、引き続きノンフラーレン・アクセプター/ドナー界面での大規模励起状態計算と機械学習を用いて、ノンフラーレン・アクセプター材料の理論設計を行う。また大規模シミュレーションによるBHJモルフォロジーに関するデータ生成と機械学習を組み合わせ、フィルファクター向上のメカニズムについて検討する。水分解光触媒材料に関しては光生成キャリアの寿命と材料欠陥との関連について引き続き研究を進めるとともに、金属元素ドープによる影響を検討する。

#### [参考文献]

- [1] Eisuke Kawashima, Mikiya Fujii, and Koichi Yamashita, “Simulation of Conductive Atomic Force Microscopy of Organic Photovoltaics by Dynamic Monte Carlo”, *Chem. Lett.* **48**, 513-516 (2019)
- [2] Eisuke Kawashima, Mikiya Fujii, Koichi Yamashita, “Entropy Promotes Charge Separation in Bulk Heterojunction Organic Photovoltaics”, *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, **382**, 111875 (2019)
- [3] Masanori Kaneko, Mikiya Fujii, Takashi Hisatomi, Koichi Yamashita, Kazunari Domen, “Regression model for stabilization energies associated with anion ordering in perovskite-type oxynitrides”, *Journal of Energy Chemistry*, **36**, 7-14 (2019)

#### [実施計画の最終目標の達成状況]

太陽光エネルギー変換について、具体的に有機薄膜太陽電池、ペロブスカイト太陽電池、水分解光触媒を取り上げ、各デバイスの高効率化に向けて分子論的アプローチにより機構解明および材料探索を行った。有機太陽電池については、大規模電子励起状態計算により、光誘起エキシトンの電荷分離過程がホットプロセスであり、電子・正孔距離~6 nmにある自由エネルギー障壁を超えエントロピー拡散により自由キャリアに分離することを明らかにし、フッ素置換したノンフラーレン・アクセプター材料による変換効率 15%の可能性を提案し

た。ペロブスカイト太陽電池については、第一原理計算により電子・正孔最結合抑制の機構を明らかにし、また非鉛化ペロブスカイト材料の理論設計を提案した。水分解光触媒については、材料の光触媒活性の電子論的過程の解明とドーピングによる変換効率向上の機構を明らかにし新規材料探索の指針を提案した。

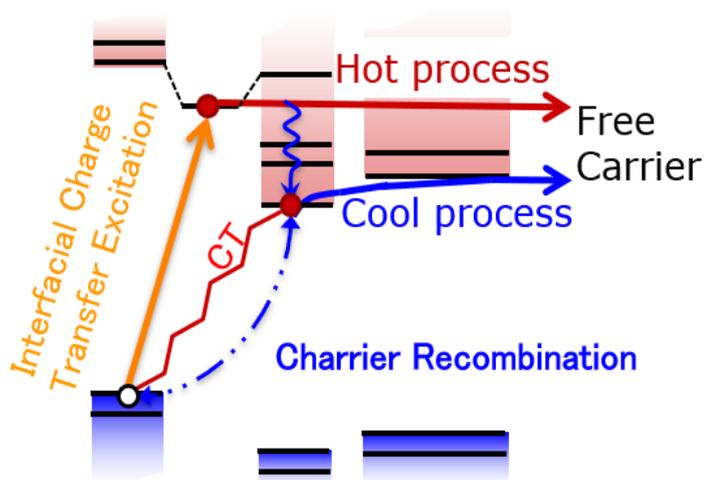


図 4-2-2-6. ホットプロセスにより電荷分離により生成した電子・ホール対は長距離 CT 状態に進み、 $\sim 6$  nm にある自由エネルギー障壁を超えエントロピー拡散により自由キャリアに分離する

#### 4-2-3. サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 - 電気エネルギー

[責任者] 杉野修 (東京大)

[実施者] 杉野修 (東京大)、館山佳尚 (物材機構)、長岡正隆、岡崎進 (名古屋大)

##### [研究の背景と目的]

太陽光発電などを用いて創生された一次エネルギーを化学エネルギーとして安定に貯蔵し、消費時に電気エネルギーに変換して利用するためのインフラの構築が始まっている。蓄電社会や水素社会の実現にとって最も重要な基盤技術は、二次電池技術と燃料電池技術である。これらの電池は電気自動車や燃料電池自動車、家庭用電源装置として既に商用化され、今後普及が見込まれている。それだけでなく、今後はスマートグリッドや産業用電源等の大型用途への二次電池利用が始まる。これらの推進のためには、電池の低コスト化、高信頼性、高耐久性、汎用元素の利用等が求められる。二次電池の開発に加え燃料電池に関しても、白金触媒と高分子膜を用いた固体高分子形燃料電池が燃料電池車用や家庭用電源として期待されており、今後の普及にはより低価格な触媒と高分子膜等による耐久性や信頼性・エネルギー効率の向上が不可欠となる。

近年、「京」コンピュータを用いた高度計算機利用において各部材の材料や材料界面で起こっている現象に対して原子・分子スケールでの計算が行われ、最新の実験結果と組み合わせた微視的な構造の決定や機構の解明につなげることが可能になってきた。この最新の科学的手法を電池開発に向けて更に発展させ、諸外国に先駆けて現実の電池開発で利用可能な基盤技術として開発・提供することは、わが国の競争力を高める重要な要素となる。

そこで本サブ課題では、これまで開発してきた各シミュレーション手法を相補的に組み合わせ、界面を総合的にミュレートできるアプリへと発展させる。これを用いて、電極・電極被膜・電解質膜・電解液界面挙動に関する学理の構築、電池性能の予測、さらに各電池部材の最適材料設計・探索を目指した総合的な研究活動を行う。

##### [研究成果の概要]

サブ課題Bでは、二次電池の電極・電界液界面におけるstat-CPMDを用いた第一原理計算およびRed Moonを用いた量子古典混合計算手法を構築し、Liイオン電池における負極界面膜や固体二次電池も含めた微視的挙動解析の研究を進めた。燃料電池に関してはESM-RISMを用いた第一原理計算およびMODYLASを用いた古典分子動力学計算を開発・改良しポスト「京」を有効利用できるアプリの準備ができた。固体高分子形燃料電池における電極界面並びに高分子の研究を進めた。

##### [アプリ開発]

燃料電池電極界面の第一原理計算については、電気二重層の効果を考慮した電極(白金表面と水の界面)のシミュレーションを負極側で行い、平衡電位付近での水素吸着構造およびサイ

クリックボルタンメトリー(電流電圧曲線)の予測に必要なパラメータを第一原理的に求め、シミュレータの精度を確認した。燃料電池固体高分子の古典分子動力学計算にては、MODYLASの高度化・開発を継続し、特に、FMM (fast multipole method) および粒子対計算に関わる新規通信アルゴリズム (MTD法) をMODYLASに実装し、最適化した。また、「京」、FX100上でSIMD最適化を行い、また圧力テンソル評価用FMM計算、EVB法などソフト全体のチューニングを行った。これにより、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終わるという当初目標達成の見通しを得た。また、均一環境下での位置に依存した溶質の拡散係数に対する新規計算方法を開発し、位置に依存した自由エネルギーと合わせて、溶質の大域的な浸透係数を透過経路と共に評価する方法を確立した。これにより、燃料電池電極三相界面や電解質膜バルク中の酸素、水素、プロトンなど物質輸送の定量的議論を可能にした。

二次電池電極の第一原理計算については、基盤アプリstat-CPMDの開発において、ポスト「京」のアーキテクチャに対応する形でメモリ、I/O関連の課題解決に加えて、ロードインバランスの調査を行い、高効率並列化計算を可能とする改良を行なった。また、RedMoonの並列化効率を向上させるためのLAMMPSベースの新しいRedMoonの構築・整備を展開して進め、現実に即した系の取り扱いに向けて、電極電位制御機能を実装した。

#### [実証研究]

燃料電池電極としての遷移金属酸化物電極のシミュレーションとその熱力学的な解析に基づき、貴金属を少量ドーピングした酸化チタンおよび酸化ジルコニウムが白金を超える活性を持つことを予測した。高活性は、反応中間体の結合状態の多様性に起因していることを示した。また、燃料電池電極三相界面や電解質膜については、均一環境下での位置に依存した溶質の拡散係数に対する新規計算方法を開発し、位置に依存した自由エネルギーと合わせて、溶質の大域的な浸透係数を透過経路と共に評価する方法を確立した。これにより、燃料電池電極三相界面や電解質膜バルク中の酸素、水素、プロトンなど物質輸送の定量的議論を可能にした。

「京」利用による二次電池メカニズム解明に関しては、電解液系に関する微視的物性の解析に加えて、ヘテロ固固界面の高効率構造サンプリングを可能とする新手法(ヘテロ固固界面CALYPSO法)を開発し、それを元に全固体電池の酸化物正極—硫化物電解質界面におけるイオン輸送の微視的メカニズムを明らかにした。さらに負極—固体電解質界面についても研究を展開している。また表面反応速度論、電解液・電解質機械学習解析などに関する手法開発も進展させた。さらに、リチウムイオン二次電池の炭素電極とEC等を含む電極-電解液界面系において、電極電位の制御条件下で電極近傍における溶媒分布の解析と被膜形成シミュレーションを実施した。その結果、被膜は表面静電環境の変化に鈍感であることが分かった。

## イ) 全電池シミュレータの総合的開発

[実施者] 杉野修 (東京大)

[実施担当] 笠松秀輔、春山潤、山本良幸、Lei YAN、Dilna Azhikodan (東京大)

[実施概要]

電気二重層の効果を考慮した電極のシミュレーションを白金表面と水の界面に対して負極側で行い、平衡電位付近での水素吸着構造およびサイクリックボルタンメトリー(電流電圧曲線)の予測に必要なパラメータ(水素原子の吸着エネルギーや水素原子間の反発力等)を第一原理的に求め実験と比較することにより、シミュレータの精度を確認した。

遷移金属酸化物電極のシミュレーションとその熱力学的な解析に基づき、貴金属を少量ドープした酸化チタンおよび酸化ジルコニウムの酸化還元活性について調べた。白金合金を含む多くの表面では、酸化還元反応のエネルギー障壁が独立に制御できないため理想的な活性を示さないのに対して、酸化物表面では結合状態の多様性のために制御できることを示した。

[開発アプリケーションと計算モデル]

電気二重層効果を考慮した電極表面と溶液の界面モデルを開発した。電極部の構造サンプリングには第一原理モンテカルロシミュレーションを行い、溶液側のサンプリングには溶液理論(RISM)を用いて行う(図4-2-3-1)。

[並列計算の方法と効果]

平面波型の密度汎関数計算に特有の非自明な三重並列化(バンド、逆格子ベクトル、 $k$ 点)に加えてサンプリングに付随した自明な並列を行い、並列効率を向上させている。ハイスループット計算では自明な並列部分の重みが大きくなり、その分並列効率は1に近づけることができる構造になっている。

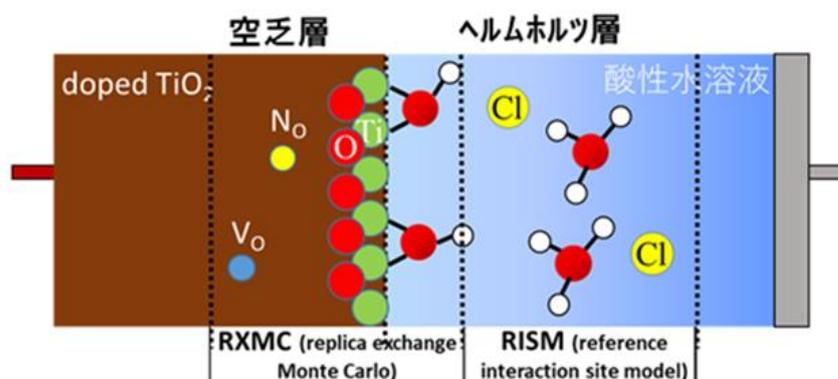


図 4-2-3-1. 半導体理論と溶液論を組み合わせた電池シミュレーションの構築  
空乏層とヘルムホルツ層を考慮した電極触媒のシミュレーション手法を開発した。

### [研究成果]

電極部の構造及び反応には水素移動を伴う酸化還元反応が関与する。水素原子は古典粒子として扱われてきたが、量子効果が強いと精度が出ないだけでなく実験と整合性のない結果となることがしばしばある。白金111表面はその典型例であり、古くからこの問題は指摘されている。この問題を解決するために、量子効果を取り扱える第一原理経路積分シミュレーションも併用して行えるシミュレータの開発を行った。量子効果を取り扱うためには16-32個のレプリカを並列してシミュレートする必要があるため、「京」やポスト「京」以外の計算機では実行が難しい。酸化物電極のシミュレーションにおいては、酸化物特有の構造の多様性のため、構造サンプリングが必要となる。このサンプリングを効率的に行うための第一原理モンテカルロ計算プログラムを作成した。これについてもレプリカを多数発生させて計算する必要があり、「京」やポスト「京」以外の計算機では研究の効率性が期待できない。

第一原理経路積分法を用いたシミュレーションにより、白金表面上の水素吸着に対する量子効果を取り入れ、電子エネルギー損失分光 (EELS) を用いた分光学的実験と整合性のある計算結果を初めて得ることができた。このことにより、実験と計算の両面から電極の微視的な構造を探り定量的な議論ができるようになった。酸化物電極についてのシミュレーションについても、様々なドーパントを含む多数の計算を行い、それに基づくデータ解析を行う方法を考案した。これを用いることにより酸化物のような多様性を持つ物質からなる電極の物質設計が可能になり、実際酸化ジルコニウムおよび酸化チタンにどのようなドーピングをすれば活性が上がるのかについて理論予測をすることができた。この知見に基づく実験が進行している。これも大型の計算機を用いて初めて得られる成果である。

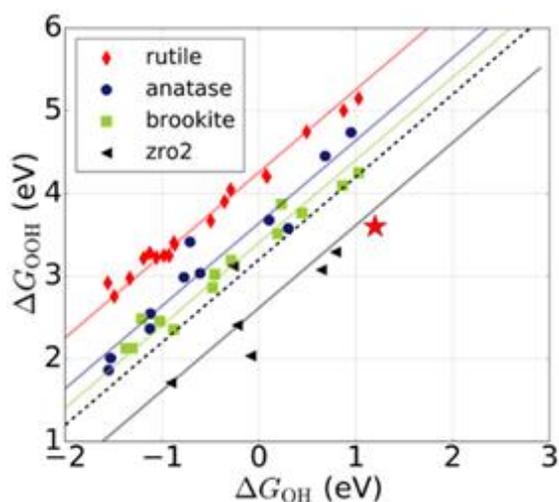


図 4-2-3-2. 電極表面上の反応中間体(OH, OOH)の吸着エネルギー。ジルコニア表面上の酸素空孔サイトでは理想電極条件(☆)を通る線上に吸着エネルギーが位置するため、ドーパントを変えることにより高活性が発現できると予想される。これは白金等では満たすことができない。

[研究成果の利活用について]

NEDOの燃料電池開発プロジェクトにおいて、理論予測された酸化ジルコニウムおよび酸化チタンのドーピングに基づき、新たな電極の開発が行われている。

[今後について]

燃料電池電極のシミュレーション技術を発展させ、電気二重層や水素の量子効果などを取り入れた計算を可能にし、実験の解析や電極材料設計を行った。今後は、このシミュレーション技術を基に電極のモデリングを改良するとともに、実験との連携を深めてより実践的な研究につなげる予定である。特に、ハイスループット計算に機械学習的な要素を取り入れることにより物質探索の対象の拡大ならびに予測精度の向上を果たし、大きな成果につなげていきたいと考えている。

[参考文献]

- [1] M. Otani and O. Sugino, First-principles calculations of charged surfaces and interfaces: A plane-wave nonrepeated slab approach, *Phys. Rev. B* **73**, 115407-1-11 (2006).
- [2] M. Otani, I. Hamada, O. Sugino, Y. Morikawa, Y. Okamoto, and T. Ikeshoji, Electrode Dynamics from First Principles, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 024802-1-6 (2008).
- [3] S. Nishihara and M. Otani, Hybrid solvation models for bulk, interface, and membrane: reference interaction site methods coupled with density functional theory, *Phys. Rev. B* **96**, 115429-1-6 (2017).
- [4] J. Haruyama, T. Ikeshoji, and M. Otani, Electrode potential from density functional theory calculations combined with implicit solvation theory, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 095801-1-11 (2018).
- [5] S. Kasamatsu and O. Sugino, Direct coupling of first-principles calculations with replica exchange Monte Carlo sampling of ion disorder in solids, *J. Phys. Condens. Matter* **31**, 085901 (2019).
- [6] Y. Yamamoto, S. Kasamatsu, and O. Sugino, Scaling Relation of Oxygen Reduction Reaction Intermediates at Defective TiO<sub>2</sub> Surfaces, *J. Phys. Chem. C* **123** 19486 (2019).

[実施計画の最終目標の達成状況]

電気二重層の効果および水素の量子効果を考慮することにより電極界面の構造や反応自由エネルギーの計算精度を向上させ、サイクリックボルタンメトリー(電流電圧曲線)の予測に必要なパラメータ(水素原子の吸着エネルギーや水素原子間の反発力等)を第一原理的に求めた。電気二重層を考慮するために第一原理モンテカルロ法や溶液理論(RISM)を組み合わせるシミュレーションを行った。また、水素の量子効果を考慮するために第一原理経路積分法を用いた。

計算手法を白金の負極表面に適用することにより、実験と整合する結果が得られ、量子効果の重要性を示すことができた。また計算手法を遷移金属酸化物電極（正極）の酸素還元反応に適用することにより、貴金属を少量ドーピングした酸化チタンおよび酸化ジルコニウムにおいては、理想的な活性を示すための物質設計が可能であることを示した。これは酸化物の結合状態の多様性に起因しており、白金合金を含む多くの表面では理想活性条件を示さないことが知られている。今後、このアプローチを用いた実験との協働につながっていく。

## ロ) 全電池シミュレータの要素技術開発

[実施者]館山佳尚 (物材機構)

[実施担当]Randy JALEM、袖山慶太郎、Ashu CHOUDHARY、Xichan GAO (物材機構)

### [実施概要]

基盤アプリstat-CPMDの開発に関しては、ポスト「京」のアーキテクチャに対応する形でメモリ、I/O関連の課題解決に加えて、ロードインバランスの調査を行い、高効率並列化計算を可能とする改良を行なった。

「京」利用による二次電池メカニズム解明に関しては、電解液系に関する微視的物性の解析に加えて、ヘテロ固固界面の高効率構造サンプリングを可能とする新手法(ヘテロ固固界面CALYPSO法)を開発し、それを元に全固体電池の酸化物正極-硫化物電解質界面におけるイオン輸送の微視的メカニズムを明らかにした。さらに負極-固体電解質界面についても研究を展開している。また表面反応速度論、電解液・電解質機械学習解析などに関する手法開発も進展させた。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

密度汎関数理論による電子状態計算をベースにした高精度第一原理計算サンプリングを様々な系で実施。電解液系シミュレーションに対しては複数初期分子構造による統計精度向上を実現した。また全固体電池界面についてはヘテロ固固界面CALYPSO法による数万構造のサンプリングを行なった。いずれも300-500原子程度のスーパーセルによる多重計算を実行し、電子状態計算部分についてはstat-CPMD自身およびVASPを用いた。

### [並列計算の方法と効果 (性能) ]

stat-CPMDの並列化は、複数のコミュニケータを用いたMPI多重並列化、FFTなどの電子状態計算カーネル部分に対するスレッド並列化を行なっている。これらにより「京」上で浮動小数点演算効率30%以上(最大で)を達成し、5000原子以上の系のテスト計算に成功した。最近ではさらなるメモリ分散、I/O並列化、そしてロードインバランスの改善に取り組み、ポスト「京」における効率的並列計算の準備を進めた。

### [研究成果]

多重並列化による高効率化学反応自由エネルギー計算を目的とする基盤アプリstat-CPMDについては、すでに電子状態計算の高速化、メモリ有効利用およびI/O並列化を実装することにより、目標値である5000原子以上の系に対する第一原理サンプリング計算の実施に成功した。令和元年度は、さらなる並列効率向上を目指しロードインバランスの調査と対策を行った。プロファイルによる調査結果では、調査に供した入力データで大きなインバランスは発生しなかったが、今後の対策として、リスタート時の負荷バランス改善策を実装し、その動作を確認した。これにより大規模計算実行時の困難さが軽減できると考えられる。さらにstat-CPMDの公

開に向けて、リクエストに応じたパッチ配布のWEBシステムを構築しているところである。

現在、大型蓄電池の開発に向けた基礎基盤技術の開発が盛んに行われているが、実用化にはさらなる高性能化、安全性向上が必要となる。しかし、実験観察の困難さも相まってその原子・分子レベルでの実態はまだわかっていない。私たちは「京」コンピュータなどの大規模スパコンを高効率利用可能な第一原理計算プログラム(stat-CPMDなど)の改良・開発を行うことで、電池の動作環境における原子・分子の複雑なダイナミクス・化学反応を精度よくかつ効率的に計算できるようにした。

令和元年度の成果としては、電解液系に関する微視的物性に関するハイドレートメルト中の水分子の挙動についても理解を進めた[1]。加えて、ヘテロ固固界面の高効率構造サンプリングを可能とする新手法(ヘテロ固固界面CALYPSO法)を開発し[図4-2-3-3]、それを元に全固体電池の酸化正極—硫化物電解質界面におけるイオン輸送の微視的メカニズムを明らかにした[2]。さらに負極—固体電解質界面についても研究し、負極-SEI膜界面におけるLiイオン輸送の自由エネルギー計算により、その微視的メカニズムを実証した[3]。また表面反応速度論、電解液・電解質機械学習解析などに関する手法開発も進展させた。

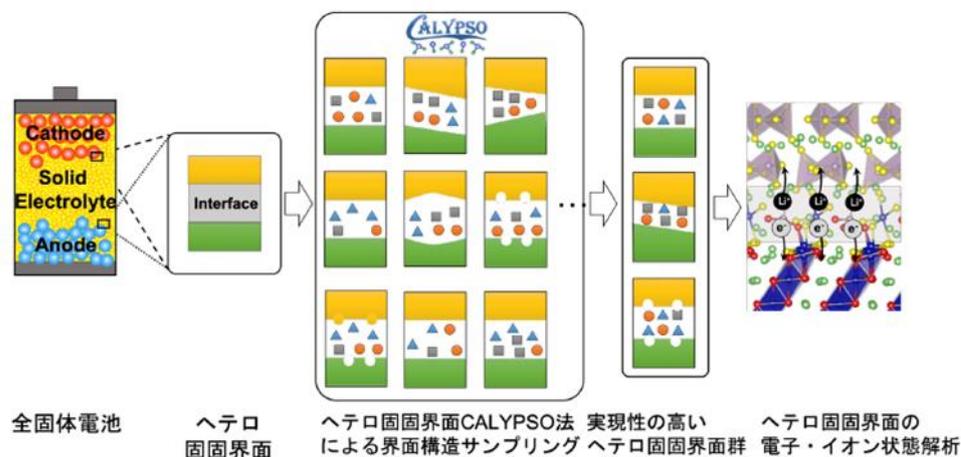


図 4-2-3-3 “ヘテロ固固界面 CALYPSO 法” の計算の流れ。

ターゲットとなるヘテロ固固界面(界面方位まで)を与えると、まず格子不整合を最適化した計算セルが決定される。次に界面領域と呼ばれる空間を2つの材料の間に作成し(黄色と緑色の間の領域)、そこに様々な原子を加えつつ(図中の丸、四角、三角)、ヘテロ固固界面の集団構造緩和、局所構造緩和をCALYPSO法のアルゴリズムを用いて行う。それらの探索の中で全エネルギーの低い、実現性の高いヘテロ固固界面構造群を抽出し、それらの構造における電子・イオン状態の解析を行う。

[研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

共同研究（実験研究者、産業界）

- ・ 東京大学・山田淳夫教授、大久保将史准教授、山田裕貴講師
- ・ 京都大学・内本喜晴教授
- ・ 慶應義塾大学・栄長泰明教授
- ・ 富士フイルム・奥野幸洋主任研究員

他プロジェクトへの展開

- ・ 文部科学省元素戦略プロジェクト研究拠点形成型・京都大学「実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点
- ・ JSTイノベーションハブ構築支援事業・情報統合型物質・材料開発イニシアティブ(MI2I)
- ・ JST先端的低炭素化技術開発・次世代蓄電池 (ALCA-SPRING)
- ・ 科研費特別推進研究
- ・ 科研費新学術領域研究「蓄電固体界面科学」
- ・ JST-ACCEL

アプリケーション公開

- ・ webでの公開に向けた準備に着手した。

[今後について]

基盤アプリ開発に関してはstat-CPMDのポスト「京」における大規模並列計算を高効率に行うための、さらなる並列化チューニングを実行した。今後は自由エネルギー計算機能の高度化にさらに取り組む。第一原理計算による二次電池機構解析についてはすでに世界トップグループとなっており、今後も深い洞察をもとに斬新な新規概念・メカニズムの提案を行える研究、新規計算科学・データ科学アプローチを鋭意進めていく。

[参考文献]

- [1] Kasumi Miyazaki, Norio Takenaka, Eriko Watanabe, Shota Iizuka, Yuki Yamada, Yoshitaka Tateyama, Atsuo Yamada, *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 6301-6305 (2019).  
“First-Principles Study on the Peculiar Water Environment in a Hydrate-Melt Electrolyte”, DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.9b02207>
- [2] Bo Gao, Randy Jalem, Yanming Ma, Yoshitaka Tateyama, *Chem. Mater.* **32**, 85-96 (2020). “Li<sup>+</sup> Transport Mechanism at Heterogeneous Cathode / Solid Electrolyte Interface in All-Solid-State Battery via First-Principles Structure Prediction Scheme”, DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.9b02311> (NIMSからプレスリリース：日刊産業新聞等掲載)
- [3] Takeshi Baba, Keitaro Sodeyama, Yoshiumi Kawamura, Yoshitaka Tateyama, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, in press. ”Li-ion Transport at Interface Between Graphite Anode and Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> Solid Electrolyte Interphase: Ab-Initio Molecular Dynamics Study”, DOI: <https://doi.org/10.1039/C9CP06608J>

[実施計画の最終目標の達成状況]

二次電池に関しては、固体電子論に基づく計算プログラムを用いた5000原子規模の反応自由エネルギー計算が可能になるシミュレータを開発した。開発シミュレータの産業界等への技術移転を開始するため、stat-CPMDを公開していく。このシミュレータを用い、二次電池に関しては、リチウムイオン電池等の電極界面被膜や電解液の反応性・イオン伝導性を解析し安全な二次電池開発に大きく貢献した。また力場計算連携解析・材料相関の機械学習解析も実行し、より高効率かつ高安全性をもつ電解液・電解質材料の設計指針を提案できた。加えて、ポストリチウムイオン電池の有力候補である全固体電池の電解質-電極界面におけるイオン輸送や、リチウム空気電池や多価イオン電池における電解液-電極反応に関しても、CALYPSO法を提案など、ポスト「京」利用に向けた予備的な成果を挙げた。

## ハ) 全電池シミュレーション技術の開発研究

[実施者]長岡正隆 (名古屋大)

[実施担当]北村勇吉、田中祐一、Amine BOUIBES (名古屋大)、稲垣泰一 (分子研)、竹中規雄 (東京大)

### [実施概要]

RedMoonの並列化効率を向上させるためのLAMMPSベースの新しいRedMoonの構築・整備を展開して進め、現実に即した系の取り扱いに向けて、電極電位制御機能を実装した。

実際に、リチウムイオン二次電池の炭素電極とEC等を含む電極-電解液界面系において、電極電位の制御条件下で被膜形成シミュレーションを実施し電極近傍における溶媒分布を解析した。その結果、被膜は表面静電環境の変化に鈍感であることが分かった。またリチウムイオンの効率的輸送機構が明らかとなった。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

計算モデル：リチウムイオン二次電池の炭素電極とエチレンカーボネート (EC) 電解液との界面系 (40万及び120万原子規模)。利用アプリケーション：MDソルバとして電位制御機能を実装したLAMMPSを利用。また、Red Moon法プログラムを独自に開発。

### [並列計算の方法と効果 (性能) ]

MDソルバにLAMMPSを用いたLAMMPSベースのRedMoonに電位制御機能を実装した上で、RedMoonの並列化効率を向上させるための構築・整備を行った。これにより100万原子系以上でもRedMoon計算が可能となった。さらに、大規模系において律速となりうる反応候補探索ルーチンを並列化することで、計算のさらなる効率化が得られ、より詳細な被膜構造解析が可能となった。

### [研究成果]

MDソルバに関しては、大規模系での安定かつ効率的な計算を実現させるために、LAMMPSプログラムを採用し、拡張系の方法を用いて電極電位一定条件を満たす電子分極効果の取扱いを実現した[1]。また、MDソルバとは別に、RedMoonの化学反応の採択・棄却を扱うルーチンを改良した。これによって、大規模系における被膜形成シミュレーションを実行可能にすると共に、QM/MM計算で得られた生成物比と同等な結果を古典力場計算のみからも得られることを確認し、RedMoonの応用範囲を拡張した[2, 3]。

リチウムイオン二次電池において電極電位に伴って生じる電極表面の電子分極効果を考慮すると、溶媒としてのエチレンカーボネート (EC) の電極表面第一層での配向が電極電位に強く依存して生じることが分かった。この事実から、被膜形成がECの還元から始まることが確認された。また、被膜形成シミュレーションの結果から、これまでの電極分極が無い場合に比べ

て、被膜構成要素の一つである炭酸イオンが電極表面に強く吸着し続けることが明らかとなった。これは、被膜-電極界面の構造に関する有用な知見であり、電極へのリチウムイオン挿入のメカニズムに強く影響する。さらに電池作動環境下で予測される被膜構造変化の分子機構を調査した。その結果、(1)被膜は熱運動では容易に崩壊せずに逆に凝集すること、(2)電極表面の静電環境の変化に対して被膜構造は鈍感であること、(3)被膜の構成要素として存在するリチウムイオンの拡散が、電解液に接した被膜構造を壊すこと、を明らかにした。これらの結果が偶然でないことを示すために、独立した初期条件で作成した複数（最低10個）の膜構造を調査すべきこと、そして非常に遅い被膜構造変化を追うために合計で有効的に数 $\mu$ s以上のシミュレーションが必要であることから、「京」やポスト「京」の使用が非常に重要であると言える。

#### [研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

共同研究（実験研究者）

- ・駒場慎一教授（東京理科大学）との共同研究（Naイオン電池の添加剤効果に関する研究）
- ・山田淳夫教授（東京大学）との共同研究（濃厚電解液を用いた二次電池の被膜形成に関する研究）

他プロジェクトへの展開

- ・京都大学 触媒・電池元素戦略ユニット（拠点長：京大院工・田中庸裕教授）

#### [今後について]

Red Moon法プログラム(RedMoon)へ電極電位を制御する機能を実装し、被膜形成などの電気化学反応シミュレーションの高度化を達成した。また、ポスト「京」の利用を想定した超並列計算に対応可能なLAMMPSベースのRedMoonの開発が完了した。今後は、本シミュレータを活用し、実験研究者と共に濃厚電解液などの有望材料に対する共同研究を実施すると共に、被膜構造情報に対するビッグデータ解析から構造安定性に関する知見を得て、その条件の差異による電池特性への影響を調査して、電解液設計に向けた指針を提案する。

#### [参考文献]

- [1] A. Bouibes, N. Takenaka, S. Saha, M. Nagaoka, *J. Phys. Chem. Lett.*, **10**, 5949–5955 (2019).
- [2] T. Inagaki, M. Nagaoka, *J. Comp. Chem.*, **40**, 2131–2145 (2019).
- [3] K. Miyazaki, N. Takenaka, T. Fujie, E. Watanabe, Y. Yamada, A. Yamada, M. Nagaoka, *ACS Appl. Mater. Interface*, **11**, 15623–15629 (2019).

#### [実施計画の最終目標の達成状況]

Red Moon法（混合MC/MD反応法）による数十nmオーダーの厚みを有する現実のSEI膜との直接比較が可能な100万原子規模のシミュレータを開発した。

二次電池に関しては、リチウムイオン電池等の電極界面被膜や電解液の反応性・イオン伝導

性を解析した。その結果、電極電位に伴った電極表面の電子分極効果により、溶媒エチレンカーボネート（EC）の電極表面第一層での配向が電極電位に強く依存することなどが分かった。また力場計算連携解析・材料関連の機械学習解析も実行した。実際、被膜中のリチウムイオンの輸送を調査するために強化学習法を用いたところ、リチウムイオンは質量密度が低く静電場がゼロに近い被膜領域を経由するという効率的輸送機構が明らかとなり、より高効率かつ高安全性をもつ電解液・電解質材料の設計指針に向けて被膜構造安定性に関する計算事実を提示することができた。

## 二) 全電池シミュレータの基盤技術の開発研究

[実施者]岡崎進 (名古屋大)

[実施担当]篠田渉、吉井範行、安藤嘉倫、藤本和士、永井哲郎、張家超 (名古屋大)

[実施概要]

MODYLASの高度化・開発を継続し、特に、FMM (fast multipole method) および粒子対計算に関わる新規通信アルゴリズム (MTD法) をMODYLASに実装し、最適化した。また、「京」、FX100上でSIMD最適化を行い、また圧力テンソル評価用FMM計算、EVB法などソフト全体のチューニングを行った。これにより、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終えるという当初目標達成の見通しを得た。

不均一環境下での位置に依存した溶質の拡散係数に対する新規計算方法を開発し、位置に依存した自由エネルギーと合わせて、溶質の大域的な浸透係数を透過経路と共に評価する方法を確立した。これにより、燃料電池電極三相界面や電解質膜バルク中の酸素、水素、プロトンなど物質輸送の定量的議論を可能にした。

[開発アプリケーションと計算モデル]

高分子電解質膜に特徴的な大域的構造とそれに由来する膜強度やイオン伝導度、また電極・電解質膜界面等の解析が可能な1億~10億原子系に対する分子動力学計算を実現するMODYLASを開発する。

- ・一億原子から成る燃料電池電極三相界面およびバルク電解質膜
- ・グロータス機構に基づいたプロトン移動のEVBモデルによる記述
- ・位置に依存した拡散係数と自由エネルギーからの不均一界面における物質輸送の記述

[並列計算の方法と効果 (性能) ]

FMM計算、対相互作用計算共に、従来の1/2の通信量での必要情報の交換可能とする新規MPI通信アルゴリズムMTD法を提案している。また、主要MPI通信はRDMA通信を採用している。

[研究成果]

MODYLASの計算は大きく分けてFMM計算部の演算と通信、対相互作用計算部の演算と通信とからなる。この中で、昨年度までにFMM演算に対して基底関数のsolid harmonicsへの置換、漸化式、多極子の対称性の利用、極座標軸の回転による単純化など新規アルゴリズムの実装を行い、相互作用直接計算において演算時間を約40%削減し、FMM演算の演算量を約1/6にまで削減し、演算時間も1/4に削減することに成功してきた。今年度は、新規な通信アルゴリズムMTD法を開発し、これをMODYLASに実装し、チューニングした。一方で、SIMD最適化、圧力テンソル評価用FMM計算などソフト全体の最適化を行った。これらにより、「京」コンピュータを用いたベンチマークにおいては現公開版MODYLASと比較して2.4倍の計算速度性能を実現した (図4-2-3-4)。もしポスト「京」において「京」並みの最適化ができた場合、「京」と比較して100倍の計算性能

が達成でき、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終えることが可能となる。

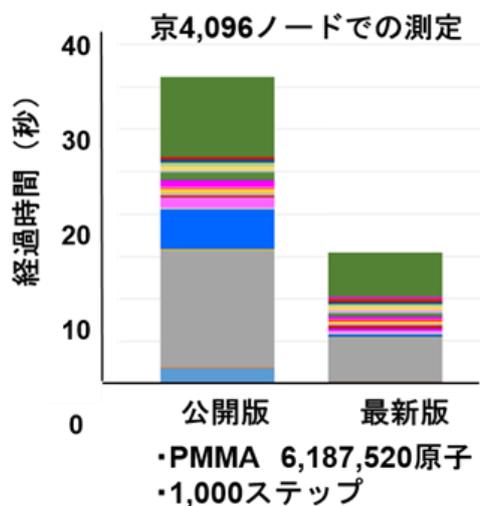


図 4-2-3-4 「京」を用いた MODYLAS のベンチマーク。

また、hydroniumイオンによる単純な輸送に加えて、化学反応の組み換えによるプロトン移動反応、さらにはGrotthuss機構をも含むプロトン輸送を記述できるEVBモデルをMODYLASに実装し、並列化を行った。自由エネルギー計算に関しても、MODYLASにおいて熱力学積分法を必要に応じた形式で汎用的に利用できるよう、相互作用関数中への摂動パラメータ $\lambda$ の導入やFMM計算におけるbackground chargeの取り扱いの整備を行い、いずれもMODYLASに実装し、検証を行った。

不均一系においては分子の拡散係数は位置に依存する。この位置に依存した分子の拡散係数を効率的に評価する新規計算方法を開発した。これは、注目している分子を空間的にflat-bottomed potentialを用いて空間的に拘束することにより、位置拘束をかけながらも動力学に影響を与えない方法に基づいて拡散係数を評価するものである。この位置に依存した拡散係数つまり移動度と、位置に依存した自由エネルギーと合わせて動的モンテカルロ計算を行うことにより、溶質の大域的な浸透係数を透過経路と共に評価することができる。本年度は、簡単な疎水性モデル界面における分子の拡散係数の位置依存性の議論を通してこの方法の検証を行った。これにより、燃料電池電極三相界面や電解質膜バルク中の酸素、水素、プロトンなど物質輸送を分子構造と関連させながら定量的に議論することが可能となり、電極、アイオノマー材料の開発、界面構造の最適化に大きく貢献できる。

[研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

- ・トヨタ自動車との燃料電池電解質膜、電極界面の共同研究
- ・SIP2「バイオポリマー」プロジェクトとの連携
- ・NEDO「超々」プロジェクトとの連携
- ・花王との界面活性剤の共同研究

・住友化学、東レ、三菱ケミカル、クラレとの高分子系の共同研究

[今後について]

高分子電解質膜に特徴的な大域的構造とそれに由来する膜強度やイオン伝導度、また電極・電解質膜界面等の解析が可能な1億～10億原子系に対する分子動力学計算を実現するシミュレータMODYLASは、性能、機能共に、ほぼ完成させた。実機を用いたチューニング後には目標性能を達成する見込みであり、来年度は、チューニング後にはただちに電解質膜、電極三相界面の研究を開始できる予定である。

[参考文献]

- [1] K. Takeda, Y. Andoh, W. Shinoda, and S. Okazaki, “Molecular Behavior of Linear Alkylbenzene Sulfonate in Hydrated Crystal, Tilted Gel, and Liquid Crystal Phases Studied by Molecular Dynamics Simulation”, *Langmuir* **35**, 10877-10884(2019)
- [2] K. Fujimoto, R. S. Payal, T. Hattori, W. Shinoda, M. Nakagaki, S. Sakaki, and S. Okazaki, “Development of dissociative force field for all-atomistic molecular dynamics calculation of fracture of polymers”, *J. Comp. Chem.* **40**, 2571-2576(2019)
- [3] K. Fujimoto, Z. Tang, W. Shinoda, and S. Okazaki, “All-atom molecular dynamics study of impact fracture of glassy polymers. I: Molecular mechanism of brittleness of PMMA and ductility of PC”, *Polymer*, **178**, 121570(2019)

[実施計画の最終目標の達成状況]

MODYLASの計算は大きく分けてFMM計算部の演算と通信、対相互作用計算部の演算と通信とからなる。この中で、FMM演算に対して基底関数のsolid harmonicsへの置換、漸化式、多極子の対称性の利用、極座標軸の回転による単純化など新規アルゴリズムの実装を行い、相互作用直接計算において演算時間を約40%削減し、FMM演算の演算量を約1/6にまで削減し、演算時間も1/4に削減することに成功してきた。さらに、新規な通信アルゴリズムMTD法を開発し、これをMODYLASに実装した。一方で、SIMD最適化、圧力テンソル評価用FMM計算などソフト全体の最適化を行い、これらにより、「京」コンピュータを用いたベンチマークにおいては現公開版MODYLASと比較して2.4倍の計算速度性能を実現した。もしポスト「京」において「京」並みの最適化ができた場合、「京」と比較して100倍の計算性能が達成でき、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終えることが可能となる。

また、hydroniumイオンによる単純な輸送に加えて、化学反応の組み換えによるプロトン移動反応、さらにはGrotthuss機構をも含むプロトン輸送を記述できるEVBモデルをMODYLASに実装し、並列化を行った。自由エネルギー計算に関しても、MODYLASにおいて熱力学積分法を必要に応じた形式で汎用的に利用できるよう、相互作用関数中への摂動パラメータ $\lambda$ の導入やFMM計算におけるbackground chargeの取り扱いの整備を行い、いずれもMODYLASに実装し、検証を行った。

#### 4-2-4. サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 - 化学エネルギー

[責任者] 田中秀樹 (岡山大)

[実施者] 田中秀樹 (岡山大)、武次徹也 (北海道大)、中井浩巳 (早稲田大)、奥村久士 (分子研)

[研究の背景と目的]

エネルギー資源を輸入に頼る我が国では、エネルギーの有効な循環が国家的重要課題である。本サブ課題では、化学エネルギーの新規な資源開発と貯蔵の効率化を目指す。エネルギー・環境問題解決に必須であるメタンとCO<sub>2</sub>の分離・回収、貯蔵、変換にわたる化学エネルギーの高度利用を目指して、ポスト「京」を活用できるアプリケーションを開発し、企業や実験研究者との緊密な連携をとりつつエネルギー多消費型工業プロセスを革新する。そのために、化学エネルギー創成・消費の根幹となるメタンハイドレートの資源化およびCO<sub>2</sub>の分離・回収、貯蔵による化石燃料の安定的利用、さらに高機能触媒の開発を実施する。

水は地球上に普遍的に存在する無害で環境負荷の少ない物質であり、資源および貯蔵媒体、また蓄冷物質として水の利用を図ることは、化学エネルギーの創生とエネルギーサイクル構築の観点から、極めて重要である。日本近海に埋蔵されているメタンハイドレートからのメタンの生産と貯蔵、また環境負荷の少ないハイドレートの別の有効な利用法として、水素やオゾンの安全な貯蔵法の実用化に対する指針の提供を目的とする。ハイドレートはCO<sub>2</sub>の廃棄手段の候補でもあり、メタンハイドレートにCO<sub>2</sub>を注入し、メタンハイドレート中のメタンをCO<sub>2</sub>に置換しつつ、有用なメタンを得る可能性を、理論的基盤に基づきダイナミクスを含めて検証する。また、水の相転移時の大きな潜熱を利用して、新規な蓄冷材料を開発することが強く期待されている。このうち、セミクラスレートを主とする蓄冷材は、構造や熱力学等の基礎的な情報が未解明であり、これらを微視的観点から基礎原理を解明して、実用化につなげる。

一方、物質科学分野において、触媒はエネルギー問題を解決する鍵を握る。本課題では、産業界に需要のある「触媒反応機構解明のための反応経路探索技術」を確立し、理論が先導する高収率高選択性の新規触媒設計というアプローチの実現を目指す。国内ではここ十年ほど貴金属をユビキタス元素に置き換える元素戦略プロジェクトが進められており、実験と理論計算の協働が重要視されている。白金などの貴金属を使用しない高機能触媒の開発が実現すれば、エネルギー多消費型物質生産の革新を達成することができる。

更に、地球温暖化防止をはじめとする環境諸問題の対策と、化石燃料の有効利用によるエネルギーの安定供給が可能な社会を築いていくため、CO<sub>2</sub>排出量の大幅な削減が求められている。この目標達成に向けて、工場や発電所などの大規模排出源からCO<sub>2</sub>を分離・回収する技術が近年注目を集めている。我が国でも回収したCO<sub>2</sub>を地中深くに輸送し貯留する手段 (CCS) の実証試験が開始しているが、実用化促進にはCO<sub>2</sub>分離・回収のコスト削減が求められている。そのためには、反応条件の制御および材料の高性能化が必要である。ここにおいて計算科学を用いた微視的視点からの反応原理の究明、および系統的な物質の特性評価が課題解決を加速するアプロ

ーチとして期待されている。本研究では、超並列電子状態計算に基づく大規模CO<sub>2</sub>分離・回収シミュレーションとその解析を実現するアプリケーションの構築を行う。これを用いてCO<sub>2</sub>の効率的な分離・回収に資する革新的材料を理論先導で設計し、CO<sub>2</sub>問題の解決に貢献する。

#### [研究成果の概要]

ハイドレートの利用や高機能触媒開発、CO<sub>2</sub>分離・回収に向けた以下のような成果が得られた。

ハイドレートでは、温度、圧力、そしてゲストのモル分率を独立変数としてハイドレート生成条件を求める基礎原理と、それに基づいたソフトの種々のゲストへの拡張を行った。さらに、包接水和物（クラスレートハイドレート）や氷の結晶構造を作成するアプリを、より多数の氷種などを扱えるようにした。

高圧におけるハイドレートの核生成に関する密度揺らぎを分子動力学シミュレーションで解析し、溶質であるネオンの存在により水の液-液相共存の温度と圧力が高くなることを明らかにした。また、カーボンナノチューブの束を内包する新しいタイプの包接水和物を提案し、その熱力学的物性の理論予測を行った。

高機能触媒開発では、任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を可能とするため、mpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装を進めた。また、ポスト「京」で得られるGRRM出力ファイルより分子構造やエネルギー等の情報を読み取り分類して、GRRM計算の結果から容易に反応経路地図を作成するソフトウェア SAFIRE (Simple AFIR connection Extractor)を開発し、公開に向けて準備した。

CO<sub>2</sub>分離・回収では、複雑系の構造サンプリングや自由エネルギー計算の収束性改善における有効な手法として、レプリカ交換分子動力学・メタダイナミクス法をシミュレータに実装した。さらに、大規模計算におけるメモリ使用量削減を検討し、最大2300万原子系で超並列電子状態計算の動作検証を行った。

アミン-CO<sub>2</sub>溶液系の化学反応シミュレーションに基づく熱力学量の網羅的算出に向けて、計算プロセスを自動化するスキームの開発・評価を行った。MOFによるCO<sub>2</sub>固定化反応の化学反応シミュレーションを実施し、先行研究で示唆されたものとは異なる熱力学的に有利な反応機構を発見した。

## イ) メタンや水素ハイドレート実用基盤の確立

[実施者] 田中秀樹 (岡山大)

[実施担当] 松本正和、矢ヶ崎琢磨 (岡山大)

### [実施概要]

温度、圧力、そしてゲストのモル分率を独立変数としてハイドレート生成条件を求める基礎原理と、それに基づいたソフトの種々のゲストへの拡張を行った。さらに、包接水和物(クラスレートハイドレート)や氷の結晶構造を作成するアプリを、より多数の氷種などを扱えるようにした。

高圧におけるハイドレートの核生成に関係する密度揺らぎを分子動力学シミュレーションで解析し、溶質であるネオンの存在により水の液-液相共存の温度と圧力が高くなることを明らかにした。また、カーボンナノチューブの束を内包する新しいタイプの包接水和物を提案し、その熱力学的物性の理論予測を行った。

### [利用アプリケーション]

約12,000の水分子からなる系の分子動力学計算によってカーボンナノチューブを内包する包接水和物の生成機構を研究した。また、2種類の溶質について100を超える熱力学のシミュレーションによって水の密度揺らぎと相分離を研究した。分子動力学計算にはGROMACSを用いた。

### [研究成果]

メタンハイドレートの資源化や海底へのCO<sub>2</sub>廃棄の実現には、その熱力学的安定性の評価が不可欠である。そのために、我々は温度( $T$ )、圧力( $P$ )、そしてゲストのモル分率( $x_g$ )を独立変数としてハイドレート生成条件を求める基礎原理を見出し、それに基づいたソフト開発をメタン以外の天然ガスや希ガスに拡張した。

結晶の理論研究のためには、まずその構造を生成する必要がある。包接水和物や共存する氷のほとんどはプロトン無秩序結晶であり、また系全体を無分極とする必要があり、その構造の生成は容易ではない。我々が開発した、様々な包接水和物や氷の構造を生成できるアプリ GenIce を順次改良して生成できる氷種を増加させた。

結晶の核生成は密度揺らぎによって促進される。通常の液体と異なり、水の場合は二つの液相の存在が大きな密度揺らぎと関係している。我々はNaClとNeという全く異なる溶質が水の液-液相転移に及ぼす効果を分子動力学シミュレーションによって解析した。包接水和物の観点では、小さな疎水物質であるNeがより重要である。我々の解析により、どちらの溶質も相分離の温度を上昇させることが明らかになった。一方、圧力については、NaClは減少、Neは増加させる効果があることが分かった。この結果は疎水的な物質が溶けた水の揺らぎが高圧で大きくなりやすいということを示しており、この現象が包接水和物の核生成の駆動力と何らかの関係がある可能性がある。

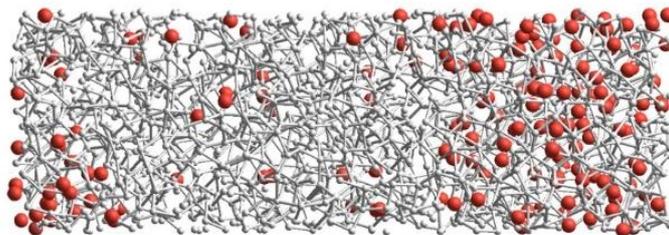


図 4-2-4-1. 小さな疎水粒子(赤)によって促進される水の液-液相分離

包接水和物を構成するゲスト分子の大きさには上限がある。通常の包接水和物ではカゴ構造の中にゲストを内包する。他の形状、例えば柱状の空間を考えるならば、より大きなゲストを内包した水和物を作れるのではないか。このアイデアをもとに分子シミュレーションを行い、その結果、実際にカーボンナノチューブを一定間隔で並べたナノブラシの周りにこれまでに見つかっていない新しい結晶構造が自発的に形成することを見出した。また、これまでに開発した統計力学的な理論を応用することで、この新構造の熱力学的な安定性や体積を見積もることに成功した。

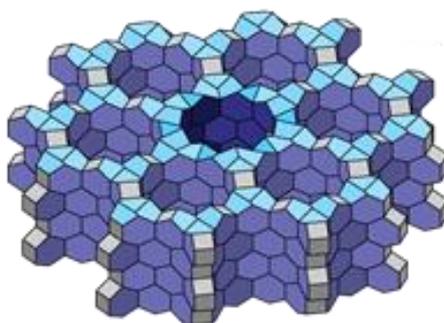


図 4-2-4-2. カーボンナノチューブの内包する新しい包接水和物の骨格構造

#### [研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

1. メタンハイドレートを試掘している東北大圓山グループとの連携
2. パナソニックとの蓄冷材としての応用を目指しての共同研究

#### [今後について]

包接水和物の核生成と関係する水溶液の揺らぎについての新しい知見を得た。さらに、これまでにない新しいタイプの包接水和物を提案し、その熱力学的物性を解析する手法を確立した。

今後、蓄冷材として期待されるセミクラスレートのMDシミュレーションなどにより、その構造と安定性を解明する。また、MDシミュレーションと基礎理論の両面から、ハイドレートにおけるメタンと二酸化炭素の置換時のエネルギー収支等についての解明をする。

[参考文献]

- [1] Takahiro Matsui, Takuma Yagasaki, Masakazu Matsumoto, Hideki Tanaka, “Phase diagram of ice polymorphs under negative pressure considering the limits of mechanical stability.”, *J. Chem. Phys.* **150**, 041102(5 pages) (2019)
- [2] Muhammad M. Huda, Takuma Yagasaki, Masakazu Matsumoto, Hideki Tanaka, “Negative Thermal Expansivity of Ice: Comparison of the Monatomic mW Model with the All-Atom TIP4P/2005 Water Model.”, *Crystals*, **9**, 248 (11 pages) (2019)
- [3] Masakazu Matsumoto, Takuma Yagasaki, Hideki Tanaka, “A Bayesian approach for identification of ice Ih, ice Ic, high density, and low density liquid water with a torsional order parameter.”, *J. Chem. Phys.* **150**, 214504 (6 pages) (2019)
- [4] Takuma Yagasaki, Masakazu Matsumoto, Hideki Tanaka, “Liquid-liquid separation of aqueous solutions: A molecular dynamics study.”, *J. Chem. Phys.* **150**, 214506 (8 pages) (2019)
- [5] Takuma Yagasaki, Masaru Yamasaki, Masakazu Matsumoto, Hideki Tanaka, “Formation of hot ice caused by carbon nanobrushes.”, *J. Chem. Phys.* **151**, 064702 (8 pages) (2019)
- [6] Hideki Tanaka, Takuma Yagasaki, Masakazu Matsumoto, “On the role of intermolecular vibrational motions for ice polymorphs I: Volumetric properties of crystalline and amorphous ices.”, *J. Chem. Phys.* **151**, 114501 (14 pages) (2019)
- [7] Hideki Tanaka, Takuma Yagasaki, Masakazu Matsumoto, “On the role of intermolecular vibrational motions for ice polymorphs I: Atomic vibrational amplitudes and localization of phonons in ordered and disordered ices.”, *J. Chem. Phys.* **152**, 074501 (14 pages) (2020)

[実施計画の最終目標の達成状況]

日本近海に埋蔵されているメタンハイドレートからのメタンの生産において、液体CO<sub>2</sub>を注入し、CO<sub>2</sub>ハイドレートの生成熱を利用してメタンハイドレートを積極的に分解し、有用なメタンを得る可能性を検討することを最終目標とした。日本近海底には膨大な量のメタンハイドレートが存在する。これを海底で分解しメタンを抽出する方法として減圧法が有力視されているが、メタンハイドレートの潜熱が大きいために、メタンハイドレートを分解し続けると、水温が低下して分解を妨げる。そこで、CO<sub>2</sub>の貯留とメタンハイドレートを獲得の一挙両得を目指した、CO<sub>2</sub>注入によるメタンハイドレート分解促進が考案されている。このために、メタンハイドレート結晶の分解、CO<sub>2</sub>ハイドレート結晶の生成の大規模な分子動力学シミュレーションを行い、現実に近い環境での生成解離機構を解明して、実用化につなげるための幾つかの提案を行った。また蓄冷材としてのセミクラスレートについて、その構造の候補を生成してゲスト配置によるエントロピーの計算を行い、熱力学的性質の実験との比較により構造と潜熱の関係を示した。

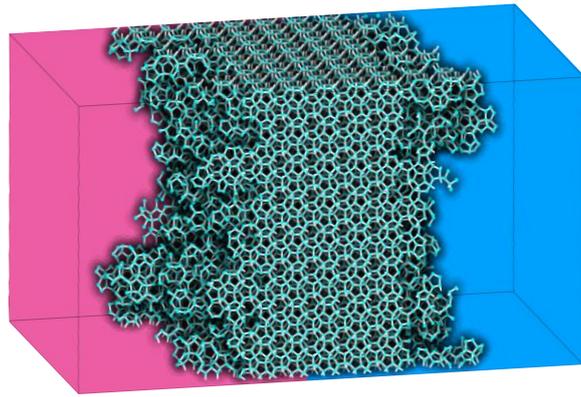


図 4-2-4-3. メタンハイドレートへの CO<sub>2</sub> 注入・置換。CO<sub>2</sub> (ピンク色) を注入・置換することでメタンハイドレート (中央) からメタン (青色) を取り出している。

## ロ) 触媒反応経路探索計算

[実施者] 武次徹也 (北海道大)

[実施担当] 前田理、小林正人、岩佐豪、高敏、小野ゆり子、長谷川淳也 (北海道大) 中山哲 (東大)

### [実施概要]

任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を可能とするため、mpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装を進めた。また、「京」およびポスト「京」で得られるGRRM出力ファイルより分子構造やエネルギー等の情報を読み取り分類して、GRRM計算の結果から容易に反応経路地図を作成するソフトウェアSAFIRE(Simple AFIR connection Extractor)を開発し、公開に向けて準備した。

### [並列計算の方法と効果]

超並列量子化学計算ソフトウェアSMASHを同時多重実行可能なライブラリを作成し、NTChemについては開発者グループが提供するMultiNTChemライブラリを用い、ライブラリをcallして電子状態計算を直接実行してMPI並列によるGRRMと量子化学計算プログラムの超並列計算 (図4-2-4-4) を実行する機能について (具体的には反応経路探索計算の途中でSCF計算が収束しにくい場合について) 改良を行った。SMASH, NTChemに限定せず任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を可能とするため、mpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装を進めた。

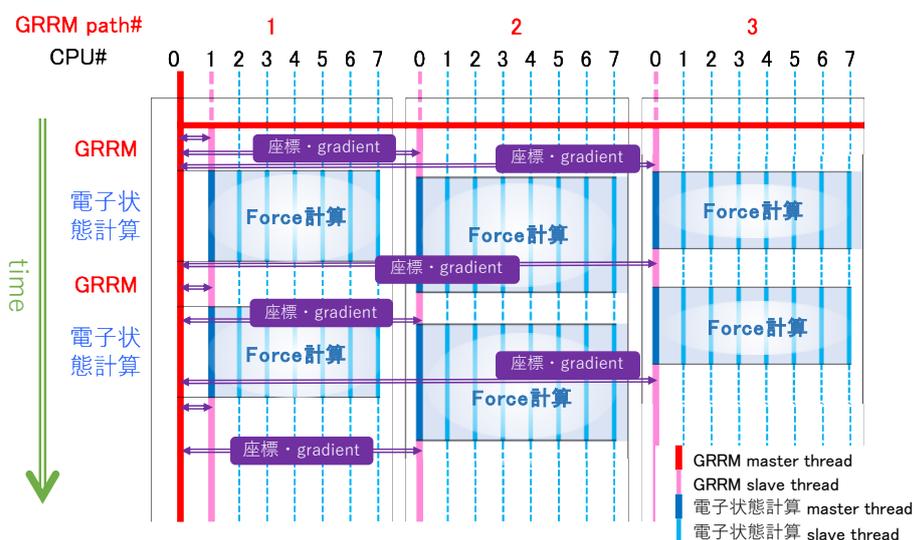


図 4-2-4-4. 反応経路自動探索プログラム GRRM と超並列電子状態計算プログラムを組み合わせ、階層化並列を導入して実現する超並列計算

## [研究成果]

反応経路自動探索プログラム (GRRM) の超並列化電子状態計算ソフトウェアとの連結を含む高度化と、応用課題として理論-実験連携による未知の触媒反応機構解明および新規触媒の開発を目指した研究を進めている。アプリ開発については、触媒反応で重要となる担持効果を考慮した計算を実現するため、任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェア (特にVASP, SIESTAを用いた周期境界系の量子化学計算) でGRRM超並列計算を可能にするmpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装を進めた。また、「京」およびポスト「京」で得られるGRRM出力ファイルより分子構造やエネルギー等の情報を読み取り分類して、GRRM計算の結果から容易に反応経路地図を作成するソフトウェアSAFIRE(Simple AFIR connection Extractor)を開発した。図4-2-4-5にSAFIREで可視化したグリシンの反応経路地図を示す。プログラムは公開準備中である。

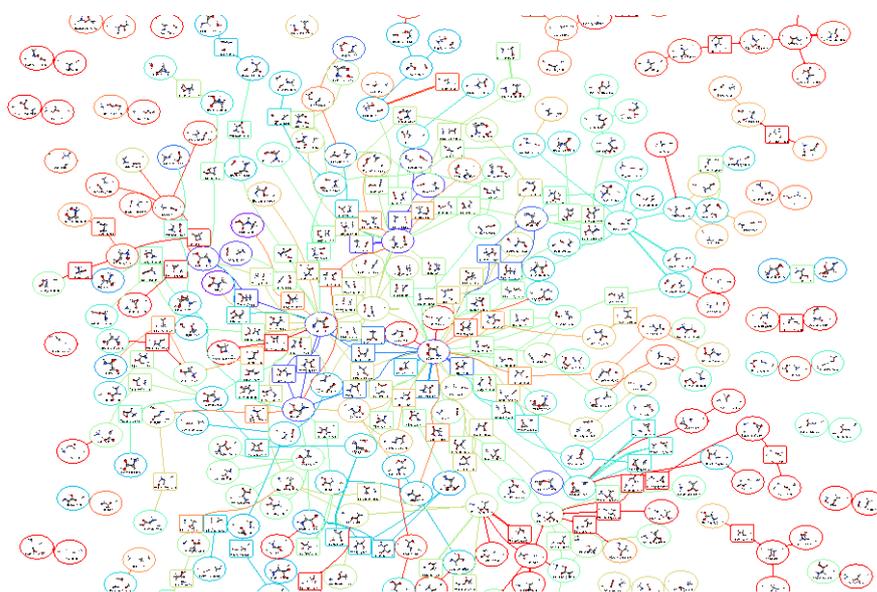


図 4-2-4-5. GRRM の出力ファイルより EQ (平衡構造) 及び TS (遷移状態構造) の相互を結合する connection の情報を読み取り分類して反応経路地図を作成するソフトウェア SAFIRE (Simple AFIR-calculation-results Extractor) を用いて可視化したグリシンの反応経路地図

不均一触媒の触媒活性は、主触媒元素種だけでなく、表面構造やドーピング、欠陥などの触媒自身の状態、さらには担体や助触媒、温度、触媒調整法といった非常に多くのファクターによって変化する。これらの影響の一つひとつに対しては、量子化学計算等のシミュレーションによってそのメカニズムを解明することが可能かもしれないが、これらの影響をすべて取り込んでシミュレーションを行うことにより触媒性能を総合的に算定する、というのはポスト「京」を用いたとしても難しい。そこで発想を転換し、ハイスループット計算により理想的にモデル化した金属表面に対する反応物・中間体の吸着構造・吸着電子状態をデータベース化し、機械学習と組み合わせることによって反応解析や触媒探索に利用できるシステムの構築を行った。具体的な利用例として、金属触媒によるメタン水蒸気改質 (MSR) 反応のメタン転化率を単一

の論文から取得して目的変数とし、本データベースから記述子を構築して回帰を行った（図4-2-4-6）。fcc(111)及び(100)表面スラブモデル（真空層15 Å）と表面に様々な配向をした吸着子が吸着した状態を構造最適化し、幾何・電子構造をデータベース化（登録数3万件以上）した。機械学習にはRのncvregパッケージを使用している。その結果、MSR反応には直接関与しないC<sub>2</sub>の吸着エネルギーが負に相関していることがわかった。これは炭素析出による触媒の不活性化と関連しているのではないかと考えられる[1]。

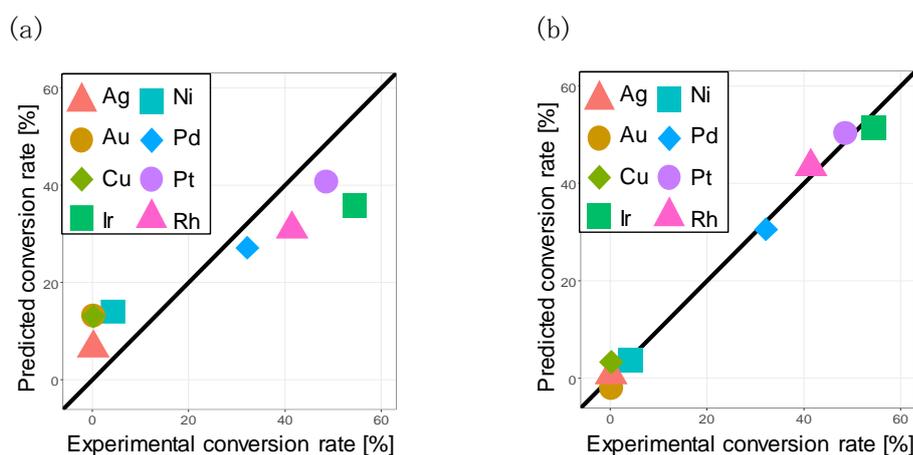


図 4-2-4-6. 単一論文から得たメタン転化率（横軸）と機械学習により予測された値（縦軸）の相関。(a)LASSO、(b)MC+法による結果。

#### [研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

共同研究（実験研究者、産業界）

- ・NIMS 坂牛健博士（実験研究者）と電極触媒の酸素還元反応過程におけるトンネル効果について議論を深め論文発表を行った

他プロジェクトへの展開

- ・元素戦略 project と連携し、反応経路自動探索プログラム GRRM の表面触媒反応経路探索への拡張・遷移状態構造のインフォマティクス解析を試みている。

アプリケーション公開

- ・「京」およびポスト「京」で得られる GRRM 出力ファイルより情報を読み取り分類して反応経路地図を作成するソフトウェア SAFIRE (Simple AFIR connection Extractor) を開発した。プログラムは公開準備中である

#### [今後について]

任意の（特に表面反応を扱う場合に重要な周期境界条件の扱いが可能なVASP等）のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を行うためmpi\_comm\_spawnを用いた並列機能を完成させた。今後はGRRM計算の適用範囲を拡大し、触媒反応の反応経路自動探索計算を試みる。SAFIREの公開予定版は2次元地図作成機能のみを持つが、3次元地図作成機能につい

ても表示の高速化を行い、公開する。

[参考文献]

- [1] M. Kobayashi, H. Onoda, Y. Kuroda, and T. Taketsugu, “Surface adsorption model calculation database and its application to activity prediction of heterogeneous catalysts”, *J. Comput. Chem. Jap.*, in press.
- [2] R. B. Jaculbia, H. Imada, K. Miwa, T. Iwasa, M. Takenaka, B. Yang, E. Kazuma, N. Hayazawa, T. Taketsugu, and Y. Kim, “Single-molecule resonance Raman effect in a plasmonic nanocavity”, *Nature Nanotechnology*, **15**, 105-110 (2020).
- [3] K. Sakaushi, A. Lyalin, and T. Taketsugu, “Observations and theories of quantum effects in proton transfer electrode processes”, *Current Opinion in Electrochemistry*, **19**, 96-105 (2019).

[実施計画の最終目標の達成状況]

高効率な触媒反応開発に資する計算科学技術の開発を目指し、ライブラリ化した並列電子状態計算ソフトウェアNTChem・SMASHを反応経路自動探索プログラムGRRM17から実行できる関数の開発を行い、MPIコミュニケータのmpi\_comm\_splitを用いて分割して、超並列計算を実行する機能をGRRM17に実装した。触媒反応で重要となる担持効果を考慮した計算を実現するため、周期系DFT計算プログラムを含む任意のMPI並列電子状態計算ソフトウェアを用いたGRRM超並列計算を可能にするmpi\_comm\_spawnを用いた並列機能の実装の開発も行った。さらに「京」およびポスト「京」で得られる膨大な出力ファイルをデータベース化し、可視化を行うソフトウェアSAFIRE(Simple AFIR connection Extractor)を開発し、公開に向け準備した。触媒反応への応用では、非白金系燃料電池触媒ならびにCO<sub>2</sub>有効資源化触媒を対象とし、実験研究者と連携して発見した電極触媒BN/Auの高機能化やカーボンアロイ酸素還元触媒における機構解明、量子効果の解明などプレスリリースにつながる研究成果を上げた。

## ハ) CO<sub>2</sub>吸収シミュレーションのための超並列電子状態計算法

[実施者]中井浩巳（早稲田大）

[実施担当]西村好史、周建斌（早稲田大）

### [実施概要]

複雑系の構造サンプリングや自由エネルギー計算の収束性改善における有効な手法として、レプリカ交換分子動力学・メタダイナミクス法をシミュレータに実装した。さらに、大規模計算におけるメモリ使用量削減を検討し、最大2300万原子系で超並列電子状態計算の動作検証を行った。

アミン-CO<sub>2</sub>溶液系の化学反応シミュレーションに基づく熱力学量の網羅的算出に向けて、計算プロセスを自動化するスキームの開発・評価を行った。MOFによるCO<sub>2</sub>固定化反応の化学反応シミュレーションを実施し、先行研究で示唆されたものとは異なる熱力学的に有利な反応機構を発見した。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

レプリカ交換法を用いた計算では、約1500原子からなる水溶液中のジアラニン分子の構造サンプリングを取り扱った。メモリ使用量削減アルゴリズムの動作検証では、最大23437500原子の純水系を用いた。アミン-CO<sub>2</sub>溶液系の熱力学量自動化計算では、約270種のアミン分子について計算を実行した。MOFによるCO<sub>2</sub>固定化反応では、MOF、CO<sub>2</sub>、および反応機構解析の対象としたスチレンオキシドからなるモデルに対しシミュレーションを実行し、さらに溶媒を含む系についても検討を行った。いずれの計算においても、DC-DFTB-Kまたは分子動力学計算機能を強化したDCDFTBMDを用いた。

### [並列計算の方法と効果]

レプリカ交換法は、レプリカに対するMPI並列と電子状態計算に対するMPIとOpenMPのハイブリッド並列を階層的に組み合わせることで実装した。メモリ使用量削減は、スレッド並列化の方式を改変することにより、ボトルネックとなっていた巨大配列のサイズを縮小した。単精度化の効果についても検討したが、一部の処理に適用した場合であっても精度に大きな影響が出る事が判明した。

### [研究成果]

超並列電子状態計算法とレプリカ交換法を組み合わせた分子動力学・メタダイナミクス計算手法の実装を行った。図4-2-4-8(a)は、水溶液中のジアラニン分子の構造サンプリング速度を平均二乗偏差に基づくクラスタリング解析によって比較したものである。レプリカ交換法の適用により、構造サンプリング効率の向上が示された。図4-2-4-8(b)は、末端間距離を反応座標とするメタダイナミクスシミュレーションによって得られた自由エネルギー曲線の時間発展を示す。従来の計算では、反応座標以外の遅い運動の影響により、自由エネルギー曲線は時間に対して大きく変化した。この問題は高温領域への遷移を可能とするレプリカ交換法を適用

すると緩和され、自由エネルギー曲線の収束性が大きく改善した。これらの結果により、開発・実装した手法の有効性が示唆された[1]。

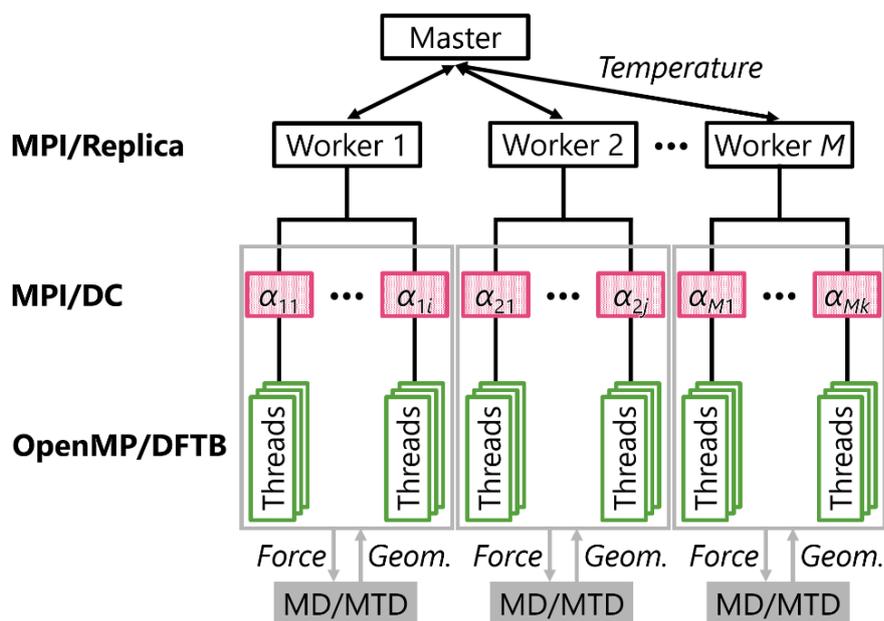


図 4-2-4-7. 超並列電子状態計算法とレプリカ交換法を組み合わせたシミュレーション手法の階層的並列実装

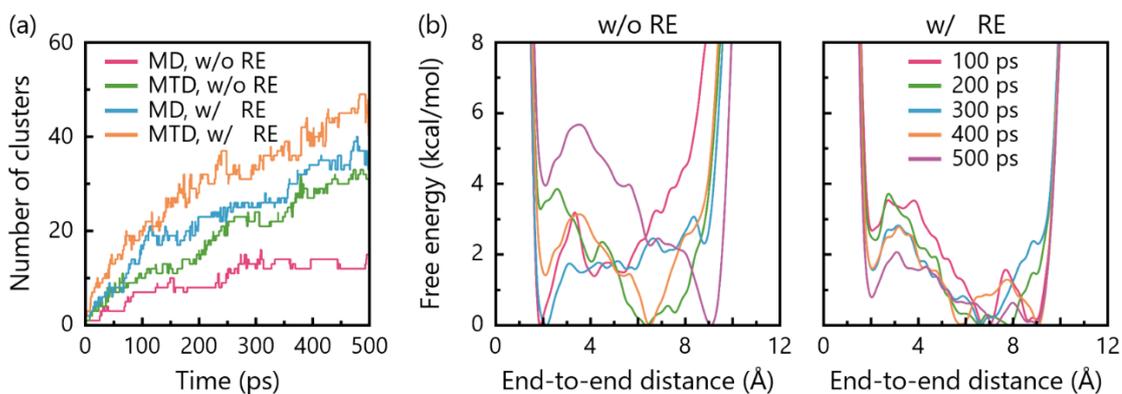


図 4-2-4-8. 超並列電子状態計算法に基づく分子動力学(MD)・メタダイナミクス(MTD)計算における水溶液中のジアラニン分子の構造サンプリングのレプリカ交換(RE)法の有無による比較。(a)平均二乗偏差に基づく非類似構造の探索数の経時変化、(b) MTD 計算から得られた末端間距離に対する自由エネルギー曲線の時間発展

平成30年度までに開発したメモリ使用量削減アルゴリズムについて、並列計算の方法と効果(性能)で述べた巨大配列のサイズ縮小に加えて、メモリに確保するデータ構造の見直しと中間データの分散保存に関する高度化を行った。その結果、図4-2-4-9に示すように高度化前より最大1.7倍の原子数を含む純水系の超並列電子状態計算が可能となった。1000万原子以上

の系に対する大規模ベンチマーク計算は、「京」を利用してこそ出せた成果である。

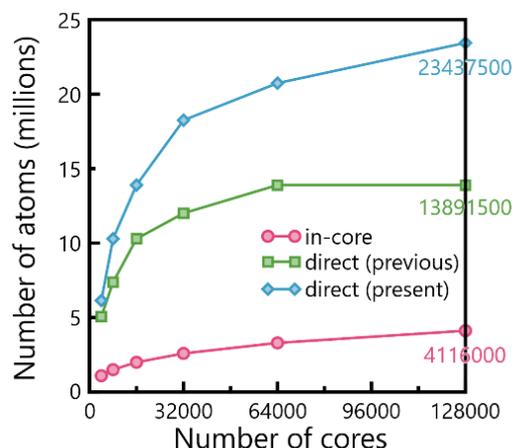


図 4-2-4-9. 「京」において超並列電子状態計算に基づく MD 1 ステップの計算を実行可能な純水系に含まれる原子数のコア数依存性。in-core/direct はメモリ使用量削減アルゴリズムの適用無/有を表す。数字は 128000 コアで計算が実行可能な最大サイズを示す。

アミン-CO<sub>2</sub>溶液系で起こる反応の熱力学量の多種のアミンに対する予測を可能とするため、図4-2-4-10に示す熱力学量の自動計算手順を構築した。アミンの解離反応については約270種に対して計算を実行し、うち68種について酸解離定数(pKa)に変換した値を実験値と比較した。その結果、平均絶対誤差0.37 pKa単位の精度で計算できることがわかった。また、典型的な5種のアミンについてカルバメート生成反応に関する熱力学量を見積もったところ、実験値との誤差は3.5 kJ/mol程度となった。

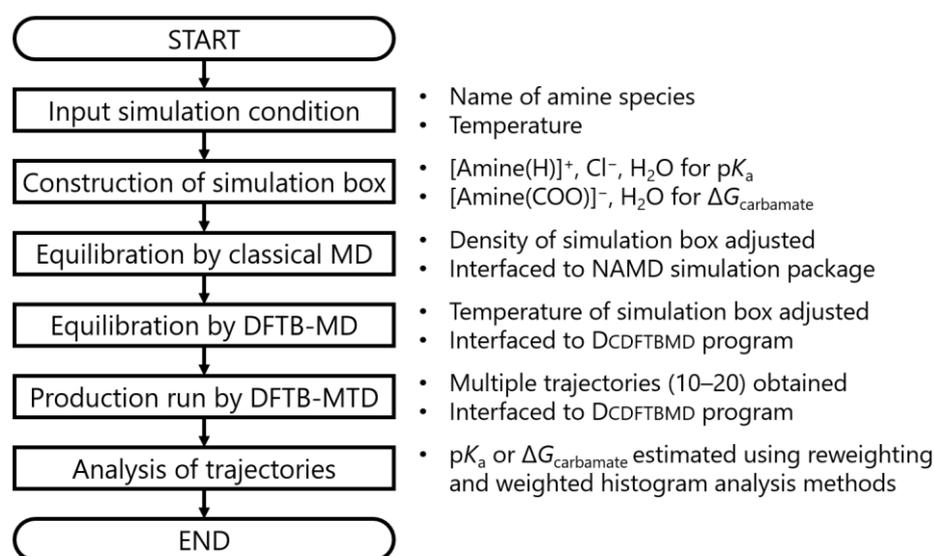


図 4-2-4-10. 化学反応シミュレーションに基づくアミン-CO<sub>2</sub> 溶液系反応に対する熱力学量自動計算フロー

MOFを用いたCO<sub>2</sub>固定化反応の一つとして知られるスチレンオキシドの開環反応を経由したスチレンカーボネート生成反応の反応機構を化学反応シミュレーションにより解析した。スチレンオキシドの開環反応とその次に起こるCO<sub>2</sub>の挿入反応の反応エネルギー変化は先行研究の結果と定性的に一致した。反応サイクルの最終段階において、先行研究で示唆された直接五員環を形成する閉環反応よりも、七員環形成による中間体を経由した後五員環へと縮小する多段階反応の方が低い反応障壁となることを見出した。電荷解析により、発見した反応経路は求核性の高い部位が攻撃されて進行する妥当な経路であることが示唆された。

#### [研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

アプリケーションの公開

- ・平成30年度に公開を開始したDCDFTBMDプログラムのバイナリをメタダイナミクス等の機能を追加したversion 2.0に更新

#### [今後について]

アプリ開発では、超並列電子状態計算とレプリカ交換法を組み合わせたシミュレーション手法の開発・実装を行った。また、メモリ使用量削減アルゴリズムの高度化により、高度化前より大規模な計算が可能となった。アプリの機能面では、反応経路や遷移状態探索による化学反応解析への展開、性能面では単精度と倍精度のハイブリッド演算の適用による高効率化が見込まれる。

応用研究では、自動化スキームを用いた化学反応シミュレーションに基づく熱力学量算出方法の開発と、MOFによるCO<sub>2</sub>固定化反応の反応機構解析を行った。前者については、自動計算手順の最適化による精度改善に加え、網羅的探索の実現に向けてインフォマティクス手法の活用を検討する予定である。

#### [参考文献]

- [1] Y. Nishimura, H. Nakai, submitted.

#### [実施計画の最終目標の達成状況]

CO<sub>2</sub>分離・回収では、化学吸収液中で進行する吸収・放散過程の反応性は水酸化物イオン・反応分子の拡散という間接性・直接性の点で対照的な要因に支配されることを明らかにした。また、吸収液での水酸化物イオン生成の熱力学的傾向を記述するpKaや素反応の反応速度を超並列電子状態計算に基づく化学反応シミュレーションから定量的に予測する技術を確立し、これらの知見に立脚して新奇吸収液の反応特性を評価するシミュレータの開発を行った。実際に、実験研究者・企業と連携して高機能化に資する吸収液の物性検証・化合物合成・プロセス設計・プラントでの性能評価を実現し、実用へ橋渡しするための基盤を構築できた。さらに、分離・回収候補となるMOFを用いたCO<sub>2</sub>固定化反応を化学反応シミュレーションによって調べ、カーボネート生成反応において熱力学的に有利な反応機構を提案できた。

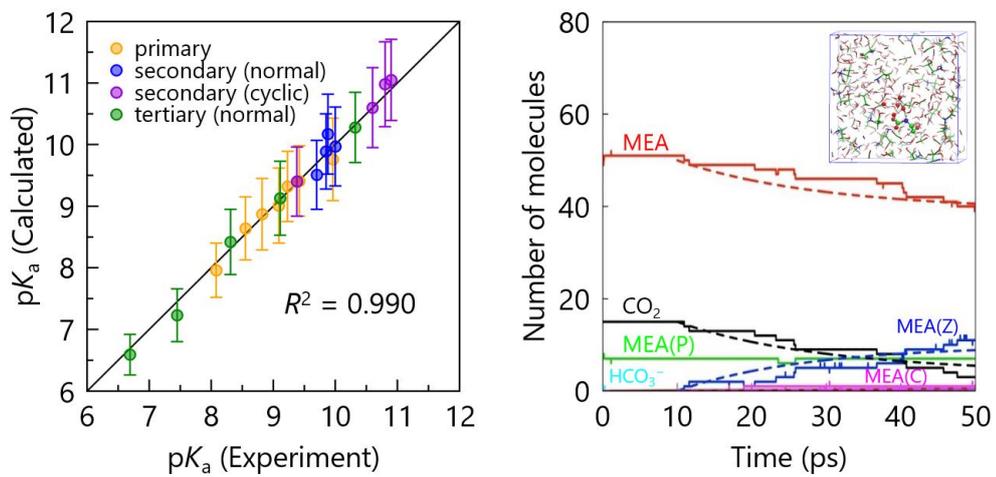


図 4-2-4-11. 化学反応シミュレーションによる CO<sub>2</sub> 吸収反応特性値の予測：(左)アミン化合物に対する pKa 計算値と実験値の相関、(右) CO<sub>2</sub> 吸収シミュレーションにおける分子種の経時変化（実線）と速度論モデルによる推定（破線）の比較

## 二) メタンハイドレートの溶融や貯蔵に向けた新規技術の理論

[実施者] 奥村久士 (分子研)

[実施担当] 伊藤暁 (分子研)

### [実施概要]

超音波をかけることによるメタンハイドレートのメカニカルな溶融のシミュレーションを行うための分子動力学計算アプリにおいて、ノード内並列化効率を高めるため昨年度開発したノード内計算負荷分散改良アルゴリズムのメニーコアマシンでの実証計算を行った。従来アルゴリズムではプロセス当たりのコア数が大幅に増加すると負荷のばらつきが表れていたが、改良アルゴリズムではばらつきがほとんどなくなるとともに実行時間も短くなった。

### [開発アプリケーションと計算モデル]

周期境界条件下でサインカーブ状に時間変化する圧力をかける分子シミュレーションでは約100原子からなる有機分子を対象とした。

### [並列計算の方法と効果]

OpenMPの負荷分散における粒度を小さくするため、従来4重ループの第1ループのみ分散していた主要な演算部分について、第1及び第2ループを融合した上でこのループを分散するよう変更した。解析ツールを用いて28コアの計算機で調べたところ、負荷分散のばらつきがほとんどなくなるとともに実行時間も短くなった。また、第1世代Xeon Phiマシン(60コア)での実行時間は、240スレッドで従来アルゴリズムに比べて半減した。

### [研究成果]

「京」のハードウェア及び診断ツール(基本プロファイラ、詳細プロファイラ)を使い、サブルーチン、ループごとの演算時間、OpenMP 並列の待ち時間を調べながら開発したノード内計算負荷分散改良アルゴリズムの解析を行った。プロセス当たりのスレッド数が大幅に増えた際の並列化効率低下の原因が演算負荷分散のばらつき及びその待ち時間であることを特定し、その解決方法として分散の粒度を小さくして全体の演算負荷のばらつきを極力小さくした。

第1世代Xeon Phiマシン(60コア)で実証計算を行ったところ、並列加速率は従来では60スレッドで頭打ちであったが、改良版では60スレッドを超えても向上し、240スレッドでは改良前に比べて実行時間は半減した。ポスト「京」を含めた今後のメニーコアマシンで高いノード内並列化効率を維持するプログラムになった。

スレッド並列改良により、多数コア利用時の待ち時間(オレンジ)が大幅に減少

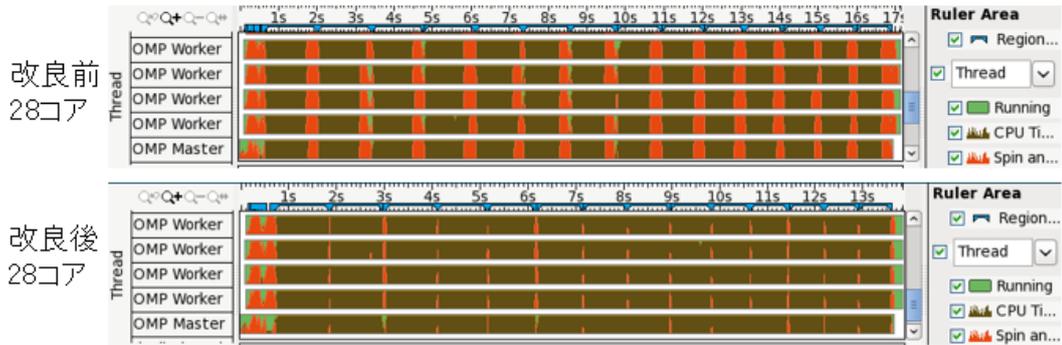


図 4-2-4-12. スレッド並列改良による負荷分散の変化(茶: 演算、オレンジ: 待ち)

[研究成果の利活用について]

成果の利活用のため、以下のように連携している。

他プロジェクトへの展開

- ・ 重点課題 6 (アプリケーション ABINIT-MP) へ複数の機能に関してソースコード提供

[今後について]

ノード内並列化効率を高めるため昨年度開発した、超音波をかけるメタンハイドレードの分子動力学シミュレーションアプリケーションのノード内計算負荷分散改良アルゴリズムについて、メニーコアマシンでの解析を行った。ノード内負荷分散のばらつきがほとんどなくなり、実行時間も短縮され、ポスト「京」のようなメニーコアマシンでも高い並列化効率となることを確認した。今後、ポスト「京」実機で性能確認を進める予定である。

#### 4-2-5. 基盤アプリ設計・開発

[責任者]中嶋隆人 (理研)

[背景と目的]

ポスト「京」を有効に活用し、国家的に取り組むべき社会的・科学的課題の解決に資するアプリケーションを開発するため、本重点課題では4つの基盤アプリケーションを設定する。「京」で実効的な超並列計算の実績があり、本重点課題で共通に利用できる観点から、量子化学計算プログラム (NTChem、GELLAN)、分子動力学計算プログラム (MODYLAS)、第一原理計算プログラム (stat-CPMD) の4つを基盤アプリケーションとし、ポスト「京」での超並列計算で実効性が上がるように設計開発を行う。

コデザインを推進する重点課題アプリ 5 ワーキンググループ (WG) での活動を通して得られる情報を参考にして基盤アプリのグランドデザインを進める。早期から理研あるいはハードウェア・ベンダーのコンサルティングを受け、更にベンダーによる最適化作業も活用しながら、ポスト「京」を有効に活用できる基盤アプリを開発していく。

[成果の概要]

重点課題アプリ 5 WGを継続開催することにより、ターゲットアプリに関するコデザインを推進した。ターゲットアプリであるNTChemを使った「京」のベースライン測定結果と演算・通信アルゴリズム特性の評価に基づいて、ポスト「京」カーネル選定妥当性を検証した。また、ポスト「京」でのターゲット問題におけるカーネル性能評価妥当性も検証した。ポスト「京」ターゲット問題計算を実現するために、ホットスポットの高速化、メモリ分割版アルゴリズム、単精度-倍精度混合精度化に加えてファイル読み込み時間を削減し、ポスト「京」における当初計画の性能実現の見通しを得た。

また、基盤アプリ設計・開発WGを通して、外注を含む基盤アプリの高度化を推進した。その中で課題アプリDC-DFTB-Kについても高速化を実施した。

(1) NTChem 汎用第一原理電子状態計算ソフト

[開発目標]

「京」においては数百原子までの分子の励起状態の量子化学計算が実現されているが、有機系太陽電池におけるヘテロジャンクションを含めた現実系界面のシミュレーションには 10、000 原子規模の取扱いが不可欠である。メモリ分割を施した効率の良い並列アルゴリズムを開発・実装する。

計算規模：原子数 五千～1万

[開発内容]

サブ課題Aにて記載したように以下の開発を行った。また、後述するコデザイン活動を推進した。基底・励起状態に関する密度汎関数法計算のためのメモリ分割版プログラムの開発と、

有機系太陽電池の機構解明のための手法開発を行った。

数千~1万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、平成30年度までに開発した励起状態に関する密度汎関数法（時間依存密度汎関数法）計算のためのメモリ分割版プログラムと太陽電池シミュレータを高度化した。さらに、有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための動的モンテカルロ法や非断熱励起状態ダイナミクス法、およびそれらのためのプログラムの高度化作業を実施した。以下では、特に注力したメモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論計算プログラムの開発について述べる。

・メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論計算プログラムの開発

時間依存密度汎関数理論（TDDFT）は、その妥当なコストと比較的高い精度のために励起状態を計算するための一般的な方法論になりつつある。この方法では繰り返しアルゴリズムを使えば基底状態の計算と同等のスケーリングで励起状態等の計算ができるが、分子サイズの増大に従って、これらの配列のメモリ使用量は基底関数の数の二乗で飛躍的に増加する。そのため、数万原子にも及ぶ大規模な分子系の励起状態を計算するためには、これらの配列のメモリ分割化が必要不可欠である。そこで、本研究では大規模分子の励起電子状態計算を超並列コンピュータで実行することを目的として、メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論（TDDFT）計算プログラムの開発を行った。

本研究では原子軌道（AO）表現のTDDFT方程式を導出し、AO表現のX, Yに対してtrial vectorを張り、繰り返し法で解くプログラムの実装を行った。繰り返し法のアルゴリズムはKAIN [R. J Harrison. J. Comput. Chem. 25, 328 (2004).] を使った。AO表現のそれぞれの行列はGauss基底関数を使っていることにより大規模系においては疎なので、本研究では超並列疎行列ライブラリNTPoly [W. Dawson and T. Nakajima, Comput. Phys. Comm. 225, 154 (2018).] を使うことにより、行列要素の分散を行いつつ疎行列の数々の演算を行った。開発したコードの性能を測るため、「京」運用停止後に太陽電池材料であるP3HTの計算を行った。計算は理研・HOKUSAIの超並列演算システム（BWMPC）32ノードで行った。この計算では1ノードあたり1 MPIプロセス、40スレッドのハイブリッド並列を用いた。系のサイズを大きくして計算時間と比較を行った結果、線形ではないが低いスケーリングを示した。その結果として、最大11,310原子からなる分子系に対するTDDFT計算をすることができた(図4-2-2-4)。

尚、ソフトの普及のため、NTChemワークショップの第10回(3/26、理研 計算科学研究センター)を計画したが、新型コロナウイルス感染拡大防止のため開催を延期した。

[参考文献]

- [1] W. Dawson, 澤田啓介, 神谷宗明, 中嶋隆人, “スーパーコンピュータ「富岳」に向けた分子科学計算ソフトウェア「NTChem」の開発”, シミュレーション, **38**, 87-93 (2019).
- [2] 中嶋隆人, 松岡貴英, “シミュレーションとインフォマティクスによるペロブスカイト材

料の候補探索”, 光学, 48, 114-119 (2019).

- [3] T. Yonehara, N. Minezawa, T. Nakajima, “Excited-State Dynamics in NTChem”, in Molecular Spectroscopy: A Quantum Chemistry Approach, edited by Y. Ozaki, M. J. Wojcik, J. Popp (Willey), 43-78 (2019).

## (2) GELLAN 階層的量子化学計算ソフト

### [開発目標]

「京」では高精度F12理論の超並列実装が行われており、ナノ分子のポストハートリーフォック計算が実現化されている。高効率光エネルギー変換の解明には、これに加えて $10^{20}$ の完全CI次元を持つ擬縮重系や励起状態の分子構造と電子物性の計算手法を開発する。

### [開発内容]

サブ課題Aにて記載したように以下の開発を行った。これらにより、人工光合成シミュレータを成す強相関ソルバは、PHF法、PostPHF法、MSQMC法のMPI/OpenMPハイブリッド並列化が進み、FCCR法についても摂動補正法の開発が完了した。

#### 1) ポストPHFの高速化

配置間相互作用と結合クラスター近似によるポストPHFは高精度であるが、一方で高コストでもある。そのうち最も計算コストの高いステップは、仮想軌道のみからなる分子積分( $ab|cd$ )とCI係数 $t(cd, ij)$ の縮約であり、これは軌道数 $N$ の6乗に比例する。本年度は、このような縮約を無視し、計算精度にある程度の妥協を許すことで計算コストを $O(N^6)$ に低減した二次の摂動論SUPT2を導出した。配置間相互作用などでは並列計算でも計算時間がかかる大きな分子に対してもSUPT2は非常に高速に計算でき、なおかつ遷移金属錯体に対する精度も十分良好なものとなることがわかった。しかしながら一方で振幅や積分を保存するメモリは $O(N^4)$ のオーダーで増加し、これが「京」やポスト「京」で実行する上で大きなボトルネックになることがわかった。そこで電子ペア $ij$ に対して全ての4階のテンソルデータを分散する分散メモリ型MPI実装を行った。SUPT2で現れる大規模な線形方程式はon-the-flyで部分空間の中で反復的に解かれるが、行列-ベクトル積で行われる全通信を最小限に抑えたアルゴリズムを提案した。「京」と類似環境の名古屋大学FX100によるベンチマーク結果では、通信が律速になることがわかったが、十分な高速化が達成できた。

#### 2) 実空間局所模型の量子化学計算による解析手法

半導体を含むバルク系の電子状態計算では密度汎関数理論に基づく第一原理計算が有効であるが、局所密度近似でのバンドギャップの過小評価や混成汎関数の改良指針など電子相関効果の取り扱いが現在でも課題となっている。このような固体に対する新しいアプローチとして、バルク系の実空間局所模型をポストHF計算に基づく量子化学計算によって解析する数値計算手法を提案した。その方法では、バルク系のHF計算からBloch関数とその固有値を計算し、そこから最局在Wannier関数(MLWF)を基底とする有効ハミルトニアン(Fock行列と相互作用

行列)を導出し、バルク系の実空間局所モデルである強相関クラスターモデルを得る。更に、この強相関クラスターをポストHF計算であるEOM-MP2/CCによって解析することで電子相関効果の取り込まれた有効Fock行列が得られ、これを元のFock行列に再度埋め込むことで、電子相関効果を考慮したエネルギーバンドが得られる。我々は、水素発生半導体光触媒であるSrTiO<sub>3</sub>に対しこの方法を適用し、HF計算によるバンドギャップの過大評価が電子相関効果によって改善されることを示した。これによって、半導体光触媒の性能評価を含めたバルク系の高精度な電子状態計算を行う数値計算手法の確立が期待される。

#### [参考文献]

- [1] S. Tanimoto, N. Yoshihda, S. L. Ten-no, and H. Nakano, *J. Chem. Inf. Model.*, **59** 3770 (2019).
- [2] B. Ladoczki and S. L. Ten-no, *J. Chem. Phys.*, **151** 114113 (2019).
- [3] T. Tsuchimochi and S. L. Ten-no, *J. Chem. Theor. Comput.*, **15** 6688 (2019).

### (3) MODYLAS 汎用分子動力学計算ソフト

#### [開発目標]

原子数：1億～10億

計算時間：3～10 ms/step

高分子電解質膜に特徴的な大域的構造とそれに由来する膜強度やイオン伝導度、また電極・電解質膜界面等の解析が可能な1億～10億原子系に対する分子動力学計算を実現するMODYLASを開発する。

#### [開発内容]

サブ課題Bにて記載したようにMODYLASの高度化・開発を継続し、特に、FMM (fast multipole method) および粒子対計算に関わる新規通信アルゴリズム (MTD法) をMODYLASに実装し、最適化した。また、「京」、FX100上でSIMD最適化を行い、また圧力テンソル評価用FMM計算、EVB法などソフト全体のチューニングを行った。これにより、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終わるという当初目標達成の見通しを得た。

#### 1) 計算性能の高速化

MODYLASの計算は大きく分けてFMM計算部の演算と通信、対相互作用計算部の演算と通信とからなる。この中で、昨年度までにFMM演算に対して基底関数のsolid harmonicsへの置換、漸化式、多極子の対称性の利用、極座標軸の回転による単純化など新規アルゴリズムの実装を行い、相互作用直接計算において演算時間を約40%削減し、FMM演算の演算量を約1/6にまで削減し、演算時間も1/4に削減することに成功してきた。今年度は、新規な通信アルゴリズムMTD法を開発し、これをMODYLASに実装し、チューニングした。一方で、SIMD最適化、圧力テンソル評価用FMM計算などソフト全体の最適化を行った。これらにより、「京」コンピュータを用いたベンチマークにおいては現公開版MODYLASと比較して2.4倍の計算速度性能を実現した (図4-2-3-5)。

もしポスト「京」において「京」並みの最適化ができた場合、「京」と比較して100倍の計算性能が達成でき、ポスト「京」の10分の1の計算資源を用いて1億原子系のMD計算1ステップを3 msで終わることが可能となる。

## 2) プロトン移動の記述

また、hydroniumイオンによる単純な輸送に加えて、化学反応の組み換えによるプロトン移動反応、さらにはGrotthuss機構をも含むプロトン輸送を記述できるEVBモデルをMODYLASに実装し、並列化を行った。自由エネルギー計算に関しても、MODYLASにおいて熱力学積分法を必要に応じた形式で汎用的に利用できるよう、相互作用関数中への摂動パラメータ $\lambda$ の導入やFMM計算におけるbackground chargeの取り扱いの整備を行い、いずれもMODYLASに実装し、検証を行った。

## 3) 界面、不均一系の物質輸送の評価

不均一系においては分子の拡散係数は位置に依存する。この位置に依存した分子の拡散係数を効率的に評価する新規計算方法を開発した。これは、注目している分子を空間的にflat-bottomed potentialを用いて空間的に拘束することにより、位置拘束をかけながらも動力学に影響を与えない方法に基づいて拡散係数を評価するものである。この位置に依存した拡散係数つまり移動度と、位置に依存した自由エネルギーと合わせて動的モンテカルロ計算を行うことにより、溶質の大域的な浸透係数を透過経路と共に評価することができる。本年度は、簡単な疎水性モデル界面における分子の拡散係数の位置依存性の議論を通してこの方法の検証を行った。これにより、燃料電池電極三相界面や電解質膜バルク中の酸素、水素、プロトンなど物質輸送を分子構造と関連させながら定量的に議論することが可能となり、電極、アイオノマー材料の開発、界面構造の最適化に大きく貢献できる。

### [参考文献]

- [1] K. Takeda, Y. Andoh, W. Shinoda, and S. Okazaki, “Molecular Behavior of Linear Alkylbenzene Sulfonate in Hydrated Crystal, Tilted Gel, and Liquid Crystal Phases Studied by Molecular Dynamics Simulation”, *Langmuir* **35**, 10877–10884(2019).
- [2] K. Fujimoto, R. S. Payal, T. Hattori, W. Shinoda, M. Nakagaki, S. Sakaki, and S. Okazaki, “Development of dissociative force field for all-atomistic molecular dynamics calculation of fracture of polymers”, *J. Comp. Chem.* **40**, 2571–2576(2019).
- [3] K. Fujimoto, Z. Tang, W. Shinoda, and S. Okazaki, “All-atom molecular dynamics study of impact fracture of glassy polymers. I: Molecular mechanism of brittleness of PMMA and ductility of PC”, *Polymer*, **178**, 121570(2019).

## (4) stat-CPMD 第一原理分子動力学ソフト

### [開発目標]

燃料電池・二次電池の現実的な電極-電解質界面の第一原理計算解析を行うには5千原子以

上の計算セルによる長時間分子動力学サンプリングが必要となる。負荷の高い電子状態計算カーネル部分のさらなるチューニングによって、実行効率の低下を最小限にしながらこの規模のセルサイズの第一原理分子動力学を可能とし、さらなるサンプリングの多重並列化を実装して10万オーダーのノード数利用を実現する。

計算規模：原子数 五千規模

機能：・サンプリング並列化、マルチプル並列化

- ・QM/MMなどの連成シミュレーション向けのインターフェース開発
- ・反応自由エネルギー計算手法の高効率化
- ・電気化学反応・界面酸化還元反応の記述手法開発
- ・電子相関、長距離力の導入など電子状態計算の改良

[開発内容]

サブ課題Bにて記載したように以下の開発を行った。基盤アプリstat-CPMDの開発に関しては、ポスト「京」のアーキテクチャに対応する形でメモリ、I/O関連の課題解決に加えて、ロードインバランスの調査を行い、高効率並列化計算を可能とする改良を行なった。

多重並列化による高効率化学反応自由エネルギー計算を目的とする基盤アプリstat-CPMDについては、いままでFFT等の電子状態計算カーネルの高速化が終了し、ひとまず目標値である5000原子以上の系に対する第一原理サンプリング計算の実施に成功した。一方で、ポスト「京」コンピュータのアーキテクチャが徐々に明らかになり、大規模計算におけるメモリのボトルネック化が想定される事態となったことから、メモリ削減に関する調査および実装を行なった。また、I/O負荷および親プロセスのメモリ負荷の軽減に向けた各MPIプロセスから／への直接I/Oの実装も終了した。最終年度は、想定されるロードインバランスの調査と対策を行った。プロファイルによる調査結果では、調査に供した入力データで大きなインバランスは発生しなかったが、今後の対策として、リスタート時の負荷バランス改善策を実装し、その動作を確認した。これにより大規模計算実行時の困難さが軽減できると考えられる。

さらにstat-CPMDの公開に向けては、リクエストに応じたパッチ配布のWEBシステムを構築しているところである。

## (5) コデザイン

[目的]

ポスト「京」プロジェクトでは、アプリケーション開発者と計算機システム開発者の協調によりアプリケーションとシステムを協調設計していく。重点課題に関するアプリケーション開発およびポスト「京」開発において、ポスト「京」開発主体と重点課題の実施機関との間で、ポスト「京」のシステムアーキテクチャ等とアプリケーションの設計開発に関し、相互に要求性能・機能や評価結果等についてのフィードバックを行いながら設計開発を同時に進める。重点課題5では、コデザインの対象アプリ（ターゲットアプリ）としてNTChemを選出している。また、ターゲットアプリケーションに対するコデザインの成果およびチューニングのノウハウをマニュアル化することで、他のアプリケーションの高度化へ繋げる。

## [実施内容]

重点課題アプリ5(コデザイン)WGを本年度は8回開催し、NTChemのボトルネックであるRI-MP2計算における密行列演算の性能改善に注力した。本年度のコデザイン詳細設計では、以下を行った。

### ○ ポスト「京」性能推定手法および推定値の精査

- ・「京」 ベースライン測定結果および演算・通信アルゴリズム特性の評価に基づくカーネル選定妥当性の精査
- ・ポスト「京」ターゲット問題におけるカーネル性能評価妥当性の精査

### ○ NTChemの性能向上の取り組み

- 並列数の限界の突破：メモリ分割、通信データ量削減(データ圧縮)
- ホットスポットの高速化：行列積演算71.2%⇒ポスト「京」にチューニングされたDGEMMの活用
- 一部に単精度計算導入：メモリ量、演算時間、通信時間削減  
単精度でもエネルギー誤差は許容範囲に
- メモリ量削減アルゴリズム開発：12.2GB →7.7 GBに削減 (ポスト「京」CMG内)
- ファイル読み込み時間削減

これらにより、「京」と比して40倍以上の性能向上が得られる見積もりとなり、ポスト「京」における当初計画の性能実現の見通しを得た。

### ○ 高度化技術の展開：チューニングのドキュメント化、シミュレータの活用へ

また、コデザイン活動の中で、ポスト「京」システムへの要求として、一番効率良く行列積計算ができる自動行列サイズ選択機能(自動タイリング機能)をもったDGEMM及びSGEMM(倍精度及び単精度行列行列積ルーチン)と組込み関数の高速化を要請した。

- 重点課題5におけるターゲットアプリケーションとしてNTChem (MP2電子相関部) を選定し、富士通・理研・実施機関のメンバーで重点課題アプリ5ワーキンググループを継続的に月1回で開催 (全61回) (図4-2-5-1)。
- ポスト「京」でのターゲット問題 (540原子分子の電子相関計算) を設定し、その計算実現のために、ホットスポットの高速化、メモリ分割版アルゴリズム、単精度-倍精度混合精度化、I/O削減などを実施。
- これにより、現状で「京」と比較して40倍以上の性能が期待できる。ポスト「京」における当初計画性能が実現できる見通し。
- 今後、コデザイン報告書 (チューニングガイド) などを通してポスト「京」でのアプリ開発に必要な情報が開示されていく予定。

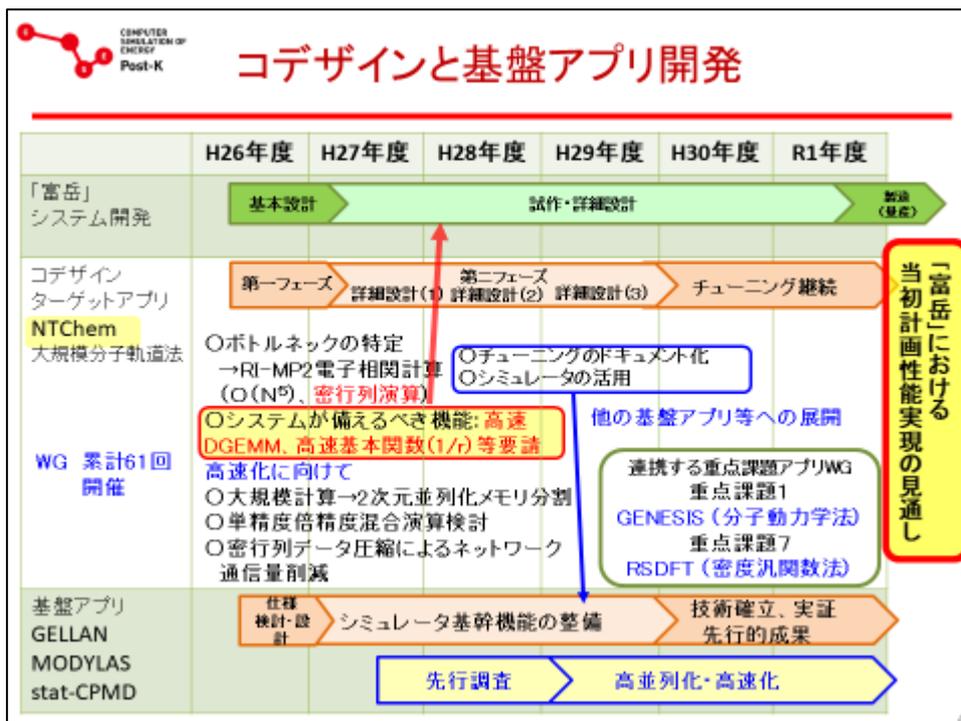


図 4-2-5-1 CODEザインと基盤アプリ開発

#### 4-2-6. インフォマティクス活用 WG

[責任者] 館山佳尚 (物材機構)

[背景と目的]

本重点課題では、「複雑で複合的な分子・物質過程に対する電子・分子レベルでの全系シミュレーション」に基づきエネルギーの基盤技術を研究開発している。即ち、研究対象となる物質は無限に存在する。限られた時間・計算機資源の中で、研究成果を最大化するためには、機械学習やデータサイエンスの活用はきわめて重要である。本重点課題ではポスト「京」に向けたシミュレータ開発に注力しているところではあるが、課題参加者においては、他プロジェクト等も含め機械学習やデータサイエンスの技術活用に関し、既に以下のような研究を推進している。

- ・スーパーコンピュータを利用したハイスループット・コンピューティングに基づいたマテリアルズ・インフォマティクスによる太陽電池と半導体光触媒の新材料設計 (理研R-CCS 中嶋)
- ・機械学習による最適な太陽電池材料と半導体光触媒材料のシミュレーション設計に向けたデータベース作成 (理研R-CCS 中嶋)
- ・ハイスループット第一原理MD計算による構造物性相関のデータベース化 (物材機構 館山)
- ・電解液・界面被膜トラジェクトリのパーシステントダイアグラム解析 (物材機構 館山)
- ・高分子破壊標準データベースプロトタイプ構築 (名大 岡崎)
- ・粒子間相互作用パラメータの最適化による、より正確な物性予測の可能性追求 (岡山大 田中)
- ・機械学習と反応経路地図を活用した吸着・触媒活性の評価・解析 (北大 武次)
- ・機械学習と反応経路地図を利用した化学反応MDトラジェクトリの自動分類 (北大 武次)
- ・DFTB計算パラメータ開発で群知能の一つである粒子群最適化法を用いた最適解の探索 (早大 中井)

これらの研究を活かし、機械学習やデータサイエンスの技術活用を検討する。物質予測に向けた研究にはスーパーコンピュータと人工知能を合わせた活動が重要であり、エネルギー変換・エネルギー貯蔵・物質変換に向けた材料探索のためのインフォマティクス活用ワーキンググループ (責任者: 館山佳尚・物材機構) を設置し、エネルギー材料課題への積極的活用の可能性を組織的に検討する。本ワーキンググループにて、特に先行的に実施しているスーパーコンピュータと人工知能を組み合わせた研究研究から、本重点課題内で横断的に活用可能な事例を選定し、注力して研究を推進する。

[成果の概要]

第5回公開シンポジウム等でのIA-WGセッション及び7月28日のWG等を通して、各研究課題におけるインフォマティクス活用情報を交換し、ポスト「京」に向けたインフォマティクスへの取り組み方について議論した。

[活動実績]

- ア) 2018/8/20-22 若手研究会にて、インフォマティクスセッション開催  
武次研・小林（触媒）、岡崎研・藤本（高分子）による自身の関連研究紹介。  
AI, ML に関する技術情報交換、意見交換を行い、エネルギー課題に有意な方向性を検討した。
- イ) 2019/12/11-12 公開シンポジウムにて、インフォマティクス活用 WG セッション開催  
館山が IA-WG の趣旨紹介。  
館山研・Jalem（二次電池）、中嶋メンバー（太陽電池）による自身の ML/AI 関連研究紹介。
- ウ) 2019/07/28 2019 年度第 1 回 IA-WG 開催



COMPUTER  
SIMULATION OF  
ENERGY  
Post-K

## インフォマティクス活用WG

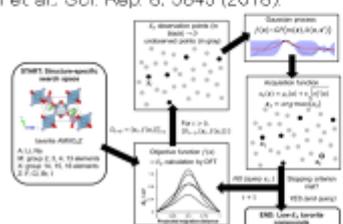
---

**1. 趣旨:** エネルギー新規基盤技術開発でAIを活用するためのインフォマティクス活用WG(IA-WG)を設置し、エネルギー問題への積極的活用の可能性を検討する。

**2. 体制:** 館山(責任者、サブ課題B)、中嶋(サブ課題A)、中井(サブ課題C)、武次(サブ課題C)、岡崎(オブザーバー、重点課題5責任者)

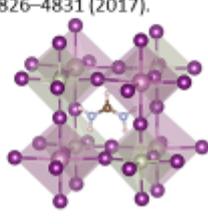
高イオン伝導度固体電解質探索 (NIMS)

ハイスループットDFT計算+  
ベイズ最適化アルゴリズム開発  
R. Jalem et al., Sci. Rep. 8, 5845 (2018)



ペロブスカイト太陽電池材料探索 (理研)

ハイスループットDFT計算  
T. Nakajima, K. Sawada, J. Phys. Chem. Lett. 8, 4826-4831 (2017).



1

図 4-2-6-1 インフォマティクス活用 WG

#### 4-2-7. プロジェクトの企画・改善提案

プロジェクト推進上の課題、或いは課題になると思われる事項について、幅広く検討を行い、課題責任者と協議し、プロジェクトを遅滞なく推進するための企画や改善策を運営委員会へ提案した。併せて、プロジェクト推進のために課題責任者の補佐を行った。

#### 4-2-8. プロジェクトの総合的推進

本プロジェクト全体の連携を密としつつ円滑に運営していくため、以下のように運営委員会を開催し、参画各機関の連携・調整し、事業を推進した。

7/28 第15回運営委員会：重点課題本格実施フェーズの成果、物材機構の材料データプラットフォームセンターとの連携、成果創出フェーズに向けた対応等について協議した。

3/10 第16回運営委員会：令和元年度成果報告書や重点課題本格実施フェーズの成果等について協議を行った。

第6回公開シンポジウムを開催し、成果の報告と共に諮問委員、オブザーバーからご講評を頂く予定だったが、新型コロナウイルス感染拡大を防止するためにシンポジウムの開催を中止した。

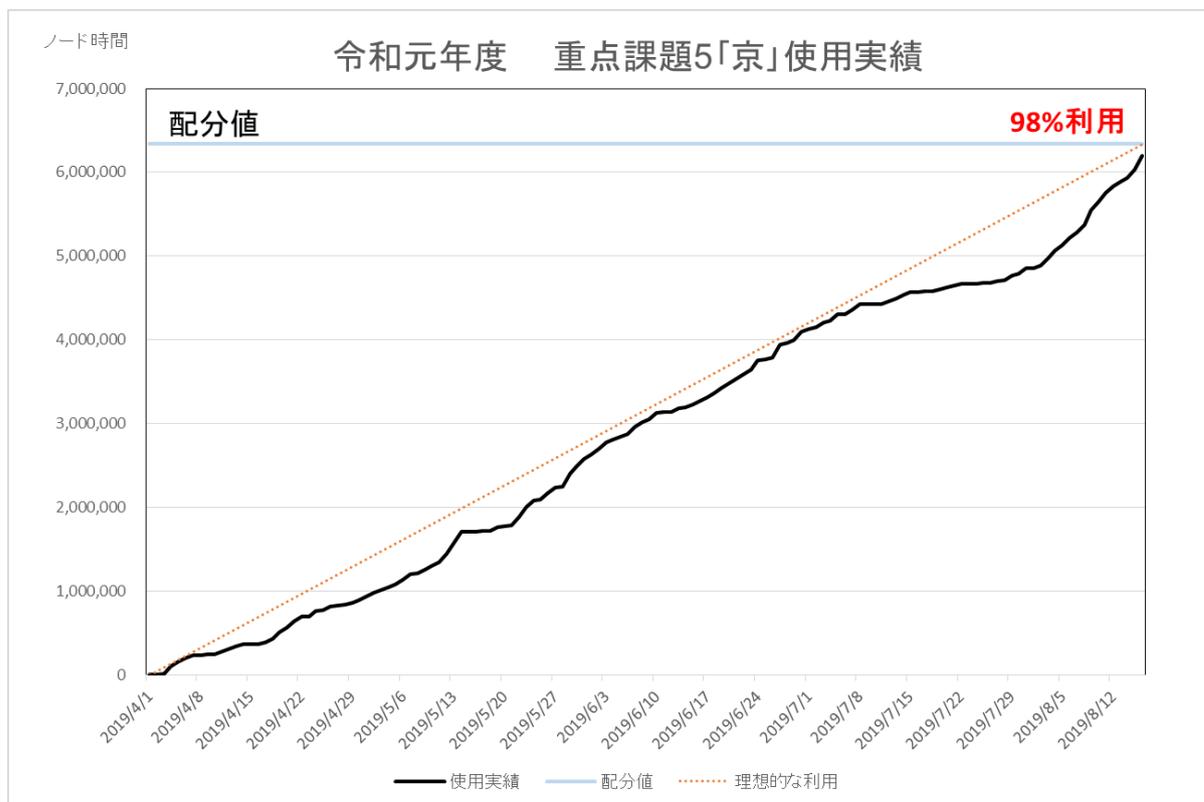
本プロジェクトで得られた成果については、広報や研究活動を通じて積極的に公表し、今後の展開に資した（成果報告作成、研究成果説明ビデオナレーション追加、11/01 第6回成果報告会出展、11/9 理研計算科学研究センター一般公開出展、研究成果の重点課題5ホームページ掲載）。

ポスト「京」に向けて開発するシミュレータのコアとなる基盤アプリ（NTChem、GELLAN、MODYLAS、stat-CPMD）及びDC-DFTB-Kについては、研究者による機能の開発と並行して、ポスト「京」開発ベンダーとポスト「京」をターゲットとした高度化や性能向上のための調査を実施した（外注）。

民間研究者や実験研究者との連携を深め、研究開発の促進と成果の普及のため、連携推進ワークショップを12回開催（第14回～第25回）し、共通の課題や連携について議論した。重点課題5 第6回公開シンポジウム（最終報告会）（3/10）で、招待講演2件、本プロジェクトの成果報告を口頭発表とポスター発表にて行い、参加した企業研究者への普及や情報交換を、また諮問委員には最終成果に対しご講評をいただく予定であったが、新型コロナウイルス対策のため中止となった。また、第8回材料系ワークショップ～「富岳」時代の材料系シミュレーションの最前線～（10/18）、第9回材料系ワークショップ～「富岳」で飛躍へ！計算データの価値～（2/17-18）を高度情報科学技術研究機構と共催した。

ポスドク（研究員）については、第2回若手勉強会（若手研究者によるワークショップ）（8/28-30）を開催し、若手実験研究者に招待講演をいただき若手研究者間で共通の課題や計算科学手法等について密な議論を行った。また、本課題で開発するアプリを利活用する人材の育成を

狙って、量子化学(参加者 79 名、講師 9 名)、分子シミュレーション(参加者 123 名、講師 19 名)のスクールなどを開催した。



計算資源を効率良く利活用するために計算資源のマネジメントを実施した。「京」の計算資源は、サブ課題毎に利用量が割り当てられている。毎月サブ課題の計算資源の利用状況を確認し、利用が滞っているサブ課題には状況を確認し、計算資源の計画的利用や利用計画の見直しを促した。以上のような「京」の計算資源のマネジメントにより配分量の98%を使い切り、配分計算資源を有効に利用することができた。

#### 4-3. 活動（研究会等）

[研究会等主催・共催・出展など]

| 日程      | 行事名                                | 開催場所等   |
|---------|------------------------------------|---|
| 4/26    | 第14回連携推進ワークショップ                    | 名古屋大学工学研究科1号館227会議室                           |
| 5/20    | 重点課題5サブ課題会議                        | 名古屋ABO HALL 403号室                             |
| 5/23    | 第15回連携推進ワークショップ                    | ステーションコンファレンス万世橋 406                          |
| 6/ 4    | 重点課題5サブ課題会議                        | 名古屋ABO HALL 403号室                             |
| 6/12    | 第16回連携推進ワークショップ                    | 名古屋大学東京オフィス                                   |
| 6/17    | 第17回連携推進ワークショップ                    | 名古屋大学東京オフィス                                   |
| 6/24    | 重点課題5サブ課題会議                        | AP品川 10F Fルーム                                 |
| 7/ 2    | 第18回連携推進ワークショップ                    | 名古屋ABO HALL 403号室                             |
| 7/13    | 第19回連携推進ワークショップ                    | TKP東京駅セントラルコンファレンスセンター ミーティングルーム10E           |
| 7/28    | 2019年度第1回インフォマティクス活用ワーキンググループ      | AP品川 9F Jルーム                                  |
| 7/28    | <b>第15回運営委員会</b>                   | AP品川 9F Jルーム                                  |
| 8/26    | 第20回連携推進ワークショップ                    | ステーションコンファレンス万世橋 406                          |
| 8/26    | 第21回連携推進ワークショップ                    | 東京大学工学部8号館502会議室                              |
| 8/28-30 | <b>第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)</b>   | 入鹿の里 MUSICA<br>参加者20名                         |
| 9/ 2-5  | ポスト「京」重点課題5 オータムカレンダー -分子シミュレーション- | 岡崎コンファレンスセンター<br>参加者123名、講師19名、合計142名         |
| 9/ 5    | 第22回連携推進ワークショップ                    | TKP東京駅八重洲カンファレンスセンター<br>ミーティングルーム7E           |
| 9/ 6    | 計算物質科学協議会設立に向けた打合せ                 | 名古屋大学東京オフィス会議室                                |
| 9/ 9-11 | 第23回分子シミュレーション学会 夏季研究会（協賛）         | 奥州秋保温泉 蘭亭<br>参加者30名、講師3名、合計33名                |
| 9/21    | 第23回連携推進ワークショップ                    | TKP東京駅八重洲カンファレンスセンター<br>ミーティングルーム9E<br>参加者19名 |
| 10/18   | 第8回材料系ワークショップ(共催)                  | 秋葉原UDX 4階 NEXT-1<br>参加者88名（内企業72名）            |
| 10/26   | 第24回連携推進ワークショップ                    | 名古屋大学東京オフィス                                   |
| 11/ 1   | 第6回HPCIシステム利用研究課題 成果報告会（出展）        | THE GRAND HALL（品川）                            |
| 11/ 2   | 第25回連携推進ワークショップ                    | 名古屋大学東京オフィス                                   |

|              |                                       |   |
|--------------|---------------------------------------|---|
| 11/ 9        | 理研計算科学研究センター一般公開<br>(出展)              | 理化学研究所計算科学研究センター  |
| 12/16-<br>18 | ポスト「京」重点課題5 ウィンタース<br>クール -量子化学-      | 岡崎コンファレンスセンター<br>参加者79名、講師9名、合計88名                            |
| 2/17-<br>18  | 第9回材料系ワークショップ(共催)                     | 秋葉原コンベンションホール<br>17日：参加者184名 (内企業79名)<br>18日：参加者155名 (内企業81名) |
| 3/10         | <b>第16回運営委員会</b>                      | TV会議  |
| 3/10         | <b>第6回公開シンポジウム【中止】</b>                | 岡崎コンファレンスセンター 2F 小会議室   |
| 3/26         | 第10回NTChemワークショップ (共催)<br><b>【延期】</b> | 理研計算科学研究センター  |

#### 4-4. 実施体制

| 業務項目                            | 実施場所                          | 担当責任者                                 |
|---------------------------------|-------------------------------|---------------------------------------|
| ①サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保 - 太陽光エネルギー | イ) 国立大学法人神戸大学                 | 大学院科学技術イノベーション研究科 教授 天能 精一郎           |
|                                 | ロ) 国立研究開発法人理化学研究所             | 計算科学研究センター チームリーダー 中嶋 隆人              |
|                                 | ハ) 国立大学法人京都大学                 | 学際融合教育研究センター 触媒・電池元素戦略ユニット 特任教授 山下 晃一 |
| ②サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 - 電気エネルギー    | イ) 国立大学法人東京大学                 | 物性研究所<br>准教授 杉野 修                     |
|                                 | ロ) 国立研究開発法人物質・材料研究機構          | エネルギー・環境材料研究拠点<br>グループリーダー 館山 佳尚      |
|                                 | ハ) 国立大学法人名古屋大学                | 大学院情報学研究科<br>教授 長岡 正隆                 |
|                                 | ニ) 国立大学法人名古屋大学                | 大学院工学研究科<br>教授 岡崎 進                   |
| ③サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 - 化学エネルギー  | イ) 国立大学法人岡山大学                 | 異分野基礎科学研究所<br>教授 田中 秀樹                |
|                                 | ロ) 国立大学法人北海道大学                | 大学院理学研究院<br>教授 武次 徹也                  |
|                                 | ハ) 学校法人早稲田大学                  | 先進理工学部<br>教授 中井浩巳                     |
|                                 | ニ) 大学共同利用機関法人自然科学研究機構 分子科学研究所 | 理論・計算分子科学領域<br>准教授 奥村 久士              |
| ④基盤アプリ設計・開発                     | 国立研究開発法人理化学研究所                | 計算科学研究センター<br>チームリーダー 中嶋 隆人           |
| ⑤プロジェクトの企画・改善提案                 | 国立大学法人名古屋大学                   | 大学院工学研究科<br>教授 岡崎 進                   |
|                                 | 国立大学法人神戸大学                    | 大学院科学技術イノベーション研究科 教授 天能 精一郎           |
| ⑥プロジェクトの総合的推進                   | 大学共同利用機関法人自然科学研究機構 分子科学研究所    | 分子科学研究所<br>教授 岡崎 進                    |

令和元年度

「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、  
利用の新規基盤技術の開発」

成果報告書 別添1

Note

## 目次

|   |    |
|---|----|
| (1) 会議開催報告 .....                                  | 1  |
| K01 第15回運営委員会.....                                | 1  |
| K02 第16回運営委員会.....                                | 3  |
| K03 第14回連携推進ワークショップ -FOCUSとの連携.....               | 5  |
| K04 重点課題5サブ課題会議 .....                             | 5  |
| K05 第15回連携推進ワークショップ -電池.....                      | 5  |
| K06 重点課題5サブ課題会議 .....                             | 6  |
| K07 第16回連携推進ワークショップ -サブ課題B、インフォマティクス活用WG.....     | 6  |
| K08 第17回連携推進ワークショップ -電池.....                      | 6  |
| K09 重点課題5サブ課題会議 .....                             | 7  |
| K10 第18回連携推進ワークショップ -サブ課題C .....                  | 7  |
| K11 第19回連携推進ワークショップ -電池.....                      | 7  |
| K12 2019年度第1回インフォマティクス活用ワーキンググループ .....           | 8  |
| K13 第20回連携推進ワークショップ -電池.....                      | 8  |
| K14 第21回連携推進ワークショップ -燃料電池.....                    | 9  |
| K15 第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ) .....               | 10 |
| K16 ポスト「京」重点課題5 オータムカレッジ -分子シミュレーション-.....        | 12 |
| K17 第22回連携推進ワークショップ -サブ課題C .....                  | 14 |
| K18 計算物質科学協議会設立に向けた打合せ.....                       | 14 |
| K19 第23回分子シミュレーション学会 夏季研究会(協賛) .....              | 14 |
| K20 第23回連携推進ワークショップ -サブ課題C .....                  | 15 |
| K21 第8回材料系ワークショップ(共催) .....                       | 17 |
| K22 第24回連携推進ワークショップ -サブ課題B .....                  | 19 |
| K23 第25回連携推進ワークショップ -サブ課題B .....                  | 19 |
| K24 ポスト「京」重点課題5 ウィンタースクール -量子化学-.....             | 20 |
| K25 第9回材料系ワークショップ(共催) .....                       | 21 |
| K26 第6回公開シンポジウム(新型コロナウイルス対策のため中止) .....           | 23 |
| K27 第10回NTChemワークショップ(共催)(新型コロナウイルス対策のため延期) ..... | 23 |
| (2) 会議参加報告 .....                                  | 24 |
| S01 HPCI コンソーシアム令和元年度通常総会 .....                   | 24 |
| S02 重点・萌芽的課題向け説明会 .....                           | 24 |
| S03 第6回計算物質科学連絡会議.....                            | 25 |
| S04 第6回「京」を中核とするHPCIシステム利用研究課題 成果報告会 .....        | 25 |
| S05 2019年度 理研計算科学研究センター一般公開(出展) .....             | 28 |
| S06 第7回計算物質科学連絡会議.....                            | 28 |
| S07 今後のHPCIシステムの構築とその利用に関する意見交換会 .....            | 28 |

|                                 |    |
|---------------------------------|----|
| (3) コデザイン検討会議報告 .....           | 29 |
| C01 第54回重点課題アプリ5ワーキンググループ ..... | 29 |
| C02 第55回重点課題アプリ5ワーキンググループ ..... | 29 |
| C03 第56回重点課題アプリ5ワーキンググループ ..... | 29 |
| C04 第57回重点課題アプリ5ワーキンググループ ..... | 30 |
| C05 第60回重点課題アプリ5ワーキンググループ ..... | 30 |
| (4) 学会等発表実績 .....               | 31 |
| 1. 学会等における口頭・ポスター発表 .....       | 31 |
| (a) 口頭発表 .....                  | 31 |
| (b) ポスター発表 .....                | 42 |
| (c) 招待講演 .....                  | 64 |
| 2. 学会誌・雑誌等における論文掲載 .....        | 77 |
| 3. プレス発表 .....                  | 86 |
| (5) 特許出願状況 .....                | 87 |

## (1) 会議開催報告

| 会議開催報告 K01 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第15回運営委員会 |
| 日時         | 2019年7月28日(日) 16:00～18:10                      |
| 場所         | AP品川 9階 Jルーム                                   |
| 参加者        | 岡崎、天能、中嶋、杉野、館山、長岡、田中、武次、中井、奥村、CSE事務局           |

### 重点課題5「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」 第15回運営委員会議事概要

日時：2019年7月28日(日) 16:00～18:10

場所：AP品川 9階 Jルーム

参加：岡崎、天能、中嶋、杉野、館山、長岡、田中、武次、中井、奥村、CSE事務局

#### 議題

司会 天能

#### I. 確認事項

前回(12/10)議事録案、議事概要案

天能 資料1、資料2

○特に異議無く承認した。

#### II. 報告事項

1. 文科省 坂下室長訪問(5/15)、重点課題後継施策に関する説明会(5/30)について

岡崎 資料3

○文科省の重点課題継続施策に関する説明会の報告があった。

#### III. 審議事項

(1) 成果創出フェーズに向けて

岡崎

○重点課題5の成果の取りまとめについて審議が行われ、サブ課題毎に成果等を取りまとめることが承認された。

(2) 物材機構の材料データプラットフォームセンターについて 加藤 資料4

○材料データプラットフォームセンターの紹介があり、連携検討を進めることが承認された。

#### IV. その他

○基盤アプリ設計開発WGから、今年度の活動状況について報告があった。

○インフォーマティクス活用WGから、活動報告と今後の活動予定の報告があった。

○広報WGから、第6回公開シンポジウムのプログラム案と会場案の説明があった。

○資料7にもとづいて、NDAの今後の取扱いとゴードンベル賞向け「富岳」の資源利用計画について報告があった。

## V. 報告資料

- |   |        |
|---|--------|
| (1) 文科省 HPCI 計画推進委員会(第 39 回、5/24)                           | 資料 5   |
| (2) 文科省 HPCI 計画推進委員会(第 40 回、7/3)                            | 資料 6   |
| (3) 理研 今後の NDA の取扱について(7/25)                                | 資料 7   |
| (4) HPCI コンソーシアム通常総会(5/21)                                  | 資料 8   |
| (5) HPCI コンソーシアム「HPCI システムの今後の運営の在り方に関する調査検討ワーキンググループ」(7/8) | 資料 9   |
| (6) 文科省 将来の HPCI の在り方に関する検討ワーキンググループ(6/6)                   | 資料 1 0 |
| (7) 第 2 回若手勉強会(8/28-30)について                                 | 資料 1 1 |
| (8) WG の活動について  |        |
| (ア) 基盤アプリ設計開発 WG  | 資料 1 2 |
| (イ) インフォーマティクス活用 WG   | 資料 1 3 |
| (ウ) 広報 WG   | 資料 1 4 |
| (9) 「京」の計算資源使用実績  | 資料 1 5 |
| (10) 論文の謝辞への重点課題 5 掲載依頼                                     | 資料 1 6 |

## VI. 今後の予定

- 8 月 28 日(水)～30 日(金) 第 2 回若手勉強会@入鹿の里 MUSICA
- 9 月 2 日(月)～5 日(木) オータムカレッジ 分子シミュレーション@岡崎コンファレンスセンター
- 9 月 9 日(月)～11 日(水) 分子シミュレーション学会 夏季研究会@奥州秋保温泉 蘭亭
- 10 月 18 日(金) 第 8 回材料系ワークショップ
- 12 月 16 日(月)～18 日(水) ウィンタースクール量子化学@岡崎コンファレンスセンター
- 3 月 9 日(月)～10 日(火) 第 6 回公開シンポジウム@東京国際フォーラム ホール D5
- 以 上

| 会議開催報告 K02 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第16回運営委員会                 |
| 日時         | 2020年3月10日(火) 11:00～11:45                                      |
| 場所         | TV会議、分子研200会議室   |
| 参加者        | 岡崎、天能、山下、CSE事務局(分子研200会議室)<br>中嶋、山下、杉野、館山、長岡、田中、武次、中井、奥村(TV会議) |

重点課題5「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」  
第16回運営委員会議事概要

日時：2020年3月10日(火) 11:00～11:45

場所：TV会議、分子研200会議室

参加：岡崎、天能、中嶋、山下、杉野、館山、長岡、田中、武次、中井、奥村、事務局

議題

司会 天能

I. 確認事項

前回(7/28)議事録案、議事概要案  
資料2

天能 資料1、

○特に異議無く承認した。

II. 審議事項

(3) 令和元年度成果報告案について

加藤 資料3

○令和元年度成果報告では、インフォマティクス活用WGの活動報告と実施計画の最終目標の達成状況を追加記載することが承認された。

(4) 重点課題5 開発アプリケーション紹介パンフレット案について 石谷

○重点課題5で開発したアプリケーションを紹介するパンフレット案について事務局から説明があり、案通り承認された。

III. 報告事項

(11) 第2回若手勉強会(8/28-30)について

加藤 資料4

○招待講演の若手実験研究者を含め20名が参加し活発な討議が行われたと報告があった。

(12) 文科省 HPCI 計画推進委員会(第42回、2/28)

加藤 資料5

○新型コロナウイルス対策のため傍聴中止となったが、傍聴資料について報告があった。

(13) HPCI 第二階層の計算資源使用実績

加藤 資料6

○計算資源利用状況について報告があり、引き続き計画的に利用するように説明があった。

(14) 論文の謝辞への重点課題5掲載依頼

加藤 資料7

#### IV. その他

○岡崎委員長より、「全サブ課題で大きな成果を出していただき、感謝している。この成果が今後の研究に活かされ、コミュニティで活用されることを心より願っている。」と挨拶があった。

#### V. 今後の予定

- 3月30日(月) 令和元年度成果報告書、重点課題5 開発アプリ紹介パンフレット発送
- 4月10日(金) 令和元年度委託業務完了届提出期限
- 5月11日(月) 令和元年度業務参加者・協力者リスト更新版の分子研産学連携係へ提出締切
- 5月29日(金) 令和元年度「京」利用の成果公開方法の登録締切 (予定)
- 5月29日(金) 令和元年度成果報告書提出期限

#### VI. 参考資料

参考資料1 HPCI 計画推進委員会資料(第42回)

以 上

| 会議開催報告 K03 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第14回連携推進ワークショップ -FOCUS との連携              |
| 日時         | 2019年4月26日(金) 14:00 ~ 15:00   |
| 場所         | 名大工学研究科1号館 227 会議室  |
| 参加者        | FOCUS : FOCUS 普及促進グループ長 中谷<br>コベルコ科研 技術本部 計算科学センター技監 井上<br>重点課題5 : CSE 事務局 石谷 |
| 議事         | 1. FOCUS の状況について<br>2. 事例集への投稿について<br>3. その他                                  |

| 会議開催報告 K04 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 重点課題5サブ課題会議                                  |
| 日時         | 2019年5月20日(月) 15:00 ~ 17:00                  |
| 場所         | 名古屋 ABO HALL 403 号室                          |
| 参加者        | 岡崎、天能、山下、中嶋、館山、CSE 事務局                       |
| 議事         | 1. 研究進捗状況について<br>2. 研究成果の取りまとめについて<br>3. その他 |

| 会議開催報告 K05 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第15回連携推進ワークショップ -電池 |
| 日時         | 2019年5月23日(木) 11:00 ~ 17:00                              |
| 場所         | ステーションコンファレンス万世橋 406                                     |
| 参加者        | 杉野、館山、長岡、岡崎、森川、濱田、大谷、赤木、笠松、春山、CSE 事務局                    |
| 議事         | 1. HPCI 計算機資源の調整について<br>2. 研究進捗状況について<br>3. その他          |

| 会議開催報告 K06 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 重点課題5サブ課題会議  |
| 日時         | 2019年6月4日(火) 16:00 ~ 18:00   |
| 場所         | 名古屋 ABO HALL 403号室   |
| 参加者        | 岡崎、天能、山下、中嶋、館山、CSE事務局  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 研究成果報告について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K07 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第16回連携推進ワークショップ -サブ課題B、インフォマティクス活用WG  |
| 日時         | 2019年6月12日(水) 12:30 ~ 15:00  |
| 場所         | 名古屋大学東京オフィス応接室   |
| 参加者        | 杉野、館山、岡崎   |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. インフォマティクス活用WGの検討状況について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K08 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第17回連携推進ワークショップ -電池  |
| 日時         | 2019年6月17日(月) 18:00 ~ 20:00   |
| 場所         | 名古屋大学東京オフィス会議室  |
| 参加者        | 杉野、長岡、館山、岡崎   |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 推進方針や課題について意見交換</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K09 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 重点課題5サブ課題会議   |
| 日時         | 2019年6月24日(月) 13:00～15:00   |
| 場所         | AP品川 10階 Fルーム   |
| 参加者        | 岡崎、天能、山下、中嶋、館山、CSE事務局   |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 運営委員会開催について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K10 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第18回連携推進ワークショップ -サブ課題C  |
| 日時         | 2019年7月2日(火) 17:00～19:00   |
| 場所         | 名古屋 ABO HALL 403号室   |
| 参加者        | 田中、武次、中井、岡崎  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 研究成果報告について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K11 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第19回連携推進ワークショップ -電池   |
| 日時         | 2019年7月13日(土) 11:00～14:00  |
| 場所         | TKP 東京駅セントラルカンファレンスセンター ミーティングルーム 10E  |
| 参加者        | 杉野、館山、長岡、岡崎  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 研究成果報告について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K12 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>2019年度第1回インフォマティクス活用ワーキンググループ |
| 日時         | 2019年7月28日(日) 15:00 ~ 16:00  |
| 場所         | A P品川 9階 Jルーム  |
| 参加者        | 館山、中嶋、武次、中井、岡崎、CSE 事務局   |
| 議事         | 1. 第15回運営員会報告事項について<br>2. 今後の活動予定について<br>3. その他                    |

| 会議開催報告 K13 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第20回連携推進ワークショップ -電池                   |
| 日時         | 2019年8月26日(月) 10:00 ~ 16:30  |
| 場所         | ステーションコンファレンス万世橋 404A  |
| 参加者        | 杉野、館山、長岡、岡崎、濱田、赤木、笠松、春山、藤本、永井、山本、<br>X. Gao、L. Yan、D. Azhikodan、高橋、CSE 事務局 |
| 議事         | 1. 研究進捗状況について<br>2. 各種連携について<br>3. 今後の予定について<br>4. その他                     |

| 会議開催報告 K14 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第21回連携推進ワークショップ -燃料電池  |
| 日時         | 2019年8月26日(月) 17:00 ~ 18:30   |
| 場所         | 東京大学工学部 8号館 5階 502 会議室  |
| 参加者        | 重点課題6：吉村、鹿園、望月、後藤、船井<br>重点課題5：岡崎、杉野、館山、中井、CSE事務局  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究状況の説明</li> <li>2. 共通の課題について意見交換</li> <li>3. 各種連携について意見交換</li> <li>4. 今後の予定について</li> <li>5. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K15 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ) |
| 日時         | 2019年8月28日(水)～30日(金)   |
| 場所         | 入鹿の里 MUSICA  |
| 参加者        | 20名  |

プログラム \*敬称略

|                         |                                    |  |
|-------------------------|------------------------------------|--|
| 第1日目(8/28)              |                                    |  |
| セッション1 座長: 笠松 秀輔(山形大学)  |                                    |  |
| 15:00 - 16:00           | 受付                                 |  |
| 16:00 - 16:30           | 挨拶・説明等                             |  |
| 16:30 - 17:00           | 研究発表<br>[サブ課題A]<br>西口 和孝<br>(神戸大学) | 「Quantum chemistry approach to periodic solid systems:a Wannierized on-site cluster method」  |
| 17:00 - 17:30           | 研究発表<br>[サブ課題A]<br>常田 貴夫<br>(神戸大学) | 「Reactive orbital energy theory and its recent progress」   |
| 18:00 - 19:00           | 夕食                                 |  |
| 19:30 - 23:00           | 情報交換会/懇親会                          |  |
| 第2日目(8/29)              |                                    |  |
| セッション2 座長: 西村 好史(早稲田大学) |                                    |  |
| 10:30 - 11:00           | 研究発表[サブ課題A]<br>川嶋 英佑<br>(理化学研究所)   | 「Virtual Screening of Non-Fullerene Acceptors for Organic Photovoltaics by Density Functional Theory and Dynamic Monte Carlo Method」 |
| 11:00 - 11:30           | 研究発表[サブ課題A]<br>金子 正徳(京都大学)         | 「DFT study of perovskite oxide and oxynitride materials for photocatalysis」  |
| 12:00 - 13:00           | 昼休み                                |  |
| 13:00 - 14:30           | 自由討議                               |  |

|                        |                                 |  |
|------------------------|---------------------------------|--|
| セッション3 座長：藤本 和士(名古屋大学) |                                 |  |
| 14:30 - 15:30          | 招待講演<br>武安 光太郎<br>(筑波大学)        | 「Recent improvement of N-doped graphene catalysts for oxygen reduction reaction by hydrophobization」     |
| 15:30 - 16:00          | 研究発表[サブ課題B]<br>北村 勇吉<br>(名古屋大学) | 「Exploring Free Energy Surface: Free Energy Optimization and Vibrational Frequency Analysis in Solution」 |
| 16:00 - 16:30          | 休憩                              |  |
| 16:30 - 17:00          | 研究発表[サブ課題B]<br>田中 佑一<br>(名古屋大学) | 「3D-RISM-SCF Study on Solvatochromism and Solvation Structures of Brooker's Merocyanine」                 |
| 17:30 - 18:30          | 夕食                              |  |
| 19:30 - 23:00          | 情報交換会／懇親会                       |  |
| 第3日目 (8/30)            |                                 |  |
| セッション4 座長：矢ヶ崎 琢磨(岡山大学) |                                 |  |
| 10:00 - 10:30          | 研究発表[サブ課題B]<br>永井 哲郎<br>(名古屋大学) | 「Toward understanding of substance transportation in polymer membrane」                                   |
| 10:30 - 11:00          | 自由討議                            |  |
| 11:00 - 11:30          | まとめ                             |  |

| 会議開催報告 K16 |                                   |
|------------|-----------------------------------|
| 会議名称       | ポスト「京」重点課題5 オータムカレッジ -分子シミュレーション- |
| 日時         | 2019年9月2日(月)～5日(木)                |
| 場所         | 岡崎コンファレンスセンター                     |
| 参加者        | 123名 講師19名 合計142名                 |

プログラム \*敬称略

第1日目：2019年9月2日(月)

12:30-13:15 受付

13:15-13:30 開会式

13:30-15:00 松本充弘(京都大学)「シミュレーションの全体像・概論」

15:10-16:40 吉井範行(名古屋大学)「力学、解析力学、数値解法、拘束動力学」

17:00-18:30 奥村久士(生命創成探究センター)「各種統計アンサンブルの生成法」

第2日目：2019年9月3日(火)

9:00-10:30 甲賀研一郎(岡山大学)「統計力学」

10:40-12:10 三上益弘(慶應義塾大学)「原子間・分子間相互作用エネルギー関数と長距離力計算法」

12:10-13:30 昼食

13:30-14:30 森田明弘(東北大学)「分子シミュレーションと理論化学」

14:40-15:40 長岡正隆(名古屋大学)「化学反応と分子シミュレーション」

16:00-17:30 松林伸幸(大阪大学)「自由エネルギー計算」

17:40-18:00 樋渡保秋(金沢大学)「コンピュータ・レジェンド」

18:15-19:45 懇親会

第3日目：2019年9月4日(水)

9:00-10:00 岡崎圭一(分子科学研究所)「反応速度論とマルコフモデル」

10:10-11:10 篠田 渉(名古屋大学)「階層的分子モデリング-粗視化の方法について-

11:20-12:20 高田彰二(京都大学)「機械学習と分子シミュレーション」

12:20-13:40 昼食

13:40-14:40 杉井泰介(株式会社日立製作所)「分子シミュレーションの活用～企業における取り組み方と事例～」

14:50-15:50 藤崎弘士(日本医科大学)「生体分子の構造変化経路サンプリング」

16:10-17:10 志賀基之(日本原子力研究開発機構)「自由エネルギー計算手法・アラカルト」

17:20-18:20 芝 隼人 (東北大学) 「ガラス動力学のシミュレーション ― 基本手法と最近の発展」

第4日目 : 2019年9月5日 (木)

9:00-10:00 安藤嘉倫 (名古屋大学) 「分子シミュレーションの高速・並列化 ― 最近の進展 ―」

10:10-11:10 三浦伸一 (金沢大学) 「経路積分分子動力学法」

11:20-12:20 畝山多加志 (名古屋大学) 「高分子の粗視化分子シミュレーション」

12:20-12:35 閉会式・修了書授与

| 会議開催報告 K17 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第22回連携推進ワークショップ -サブ課題C |
| 日時         | 2019年9月5日(木) 13:00 ~ 17:00                                  |
| 場所         | TKP 東京駅八重洲カンファレンスセンター ミーティングルーム 7E                          |
| 参加者        | 田中、武次、中井、松本、小林、清野   |
| 議事         | 1. 研究進捗状況について<br>2. 各種連携について<br>3. 今後の予定について<br>4. その他      |

| 会議参加報告 K18 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 計算物質科学協議会設立に向けた打合せ  |
| 日時         | 2019年9月6日(金) 17:00 ~ 21:00  |
| 場所         | 名古屋大学東京オフィス会議室  |
| 参加者        | 重点課題5: 岡崎、天能  |
| 議事         | 東大物性研、分子研 RCCS、東北大金研、計算物質科学の重点課題5、重点課題7、萌芽的課題、PCoMS、Mi <sup>2</sup> i 連携のための協議会設立について |

| 会議開催報告 K19 |                             |
|------------|-----------------------------|
| 会議名称       | 第23回分子シミュレーション学会 夏季研究会 (協賛) |
| 主催         | 分子シミュレーション研究会               |
| 日時         | 2019年9月9日(月) ~ 11日(水)       |
| 場所         | 奥州秋保温泉 蘭亭                   |
| 参加者        | 30名 講師3名 合計33名              |

| 会議開催報告 K20 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第 23 回連携推進ワークショップ -サブ課題C エネルギー・資源の有効<br>利用 -化学エネルギー |
| 日時         | 2019年9月21日(土) 13:00 ~ 17:30  |
| 場所         | TKP 東京駅八重洲カンファレンスセンター カンファレンスルーム 9E  |
| 参加者        | 19名  |

プログラム \*敬称略

|                               |                          |   |
|-------------------------------|--------------------------|---|
| セッション1 座長：(岡山大異分野基礎科学研) 田中 秀樹 |                          |   |
| 13:00 - 13:10                 | (早大先進理工学部)<br>中井 浩巳      | 趣旨説明  |
| 13:10 - 13:30                 | (早大先進理工学部)<br>中井 浩巳      | 成果発表 (CO <sub>2</sub> の分離・回収)                 |
| 13:30 - 13:50                 | (北大院理学研究院)<br>武次 徹也      | 成果発表 (触媒)                                     |
| 13:50 - 14:10                 | (岡山大異分野基礎科学研)<br>松本 正和   | 成果発表 (ハイドレート)                                 |
| 14:10 - 14:30                 | 休憩                       |   |
| セッション2 座長：(北大院理学研究院) 武次 徹也    |                          |   |
| 14:30 - 14:50                 | (北大院理学研究院)<br>前田 理       | 「反応経路自動探索 GRRM プログラム<br>の開発：大規模計算への取り組み」      |
| 14:50 - 15:10                 | (北大触媒科学研)<br>長谷川 淳也      | 「二酸化炭素の有効利用に向けた理<br>論と実験のインタープレイ」             |
| 15:10 - 15:30                 | (早大先進理工学部)<br>関根 泰       | 「二酸化炭素回収・利用技術の現状<br>と今後」                      |
| 15:30 - 15:50                 | 休憩                       |   |
| セッション3 座長：(早大先進理工学部) 中井 浩巳    |                          |   |
| 15:50 - 16:10                 | (早大創造理工学部)<br>中垣 隆雄      | 「CCUS の技術動向と計算化学への期<br>待」                     |
| 16:10 - 16:30                 | (福井大学術研究院工学系部門)<br>玉井 良則 | 「分子シミュレーションによる高効<br>率 CO <sub>2</sub> 分離膜の探索」 |

|               |                        |   |
|---------------|------------------------|---|
| 16:30 - 16:50 | (阪大院基礎工学研究科)<br>松林 伸幸  | 「CO <sub>2</sub> 分離に向けた高分子材料の全<br>原子 MD 解析」 |
| 16:50 - 17:10 | (分子研／名大院工学研究科)<br>岡崎 進 | まとめ   |

| 会議開催報告 K21 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 第8回材料系ワークショップ ～「富岳」時代の材料系シミュレーションの最前線～（共催） |
| 主催         | 一般財団法人 高度情報科学技術研究機構                        |
| 日時         | 2019年10月18日(金) 10:00～17:30                 |
| 場所         | 秋葉原UDX 4階 NEXT-1                           |
| 参加者        | 88名 内企業72名                                 |

プログラム \*敬称略

司会：白鳥 和矢(三菱ケミカル株式会社, 産応協)

|             |   |
|-------------|---|
| 10:00-10:05 | 開会挨拶<br>塩原 紀行 (高度情報科学技術研究機構)  |
| 10:05-10:20 | 「京」から「富岳」への移行期における RIST の利用支援－材料系アプリケーションの利用環境整備の状況<br>草間 義紀 (高度情報科学技術研究機構) |
| 10:20-10:40 | 材料系アプリケーションの利用について<br>吉澤 香奈子 (高度情報科学技術研究機構)                                 |
| 10:40-11:15 | 粗視化モデルにおける粘着剥離シミュレーションの研究<br>岩方 裕一 (リンテック株式会社)                              |
| 11:15-11:50 | 高分子材料の全原子分子動力学計算<br>藤本 和士 (名古屋大学)   |
| 11:50-12:50 | <ランチタイム>  |
| 12:50-13:25 | 第一原理ダイナミクスによる材料の物性・反応解析<br>重田 育照 (筑波大学)                                     |
| 13:25-14:00 | 機械学習を活用したゴム材料開発<br>小石 正隆 (横浜ゴム株式会社)   |
| 14:00-14:20 | スーパーコンピュータ「富岳」の開発<br>清水 俊幸 (富士通株式会社)  |

|             |  |
|-------------|--|
| 14:20-14:35 | <休憩>   |
| 14:35-15:10 | 材料計算における量子コンピュータと HPC の展望について<br>湊 雄一郎 (MDR 株式会社)  |
| 15:10-15:45 | 分子動力学計算データを用いた機械学習<br>泰岡 顕治 (慶應義塾大学)   |
| 15:45-15:50 | <休憩>   |
|             | 「将来の材料系シミュレーションを支えるスーパーコンピュータ」   |
| 15:50-17:15 | パネルディスカッション<br>モデレータ：古宇田 光 (東京大学物性研究所)<br>パネリスト：泰岡 顕治 (慶應義塾大学) / 湊 雄一郎 (MDR 株式会社)<br>/ 清水 俊幸 (富士通株式会社) / 奥田 基 (高度情報科学技術研究機構) |
| 17:15-17:30 | HPCI・アプリケーション利用相談、情報交換 (希望者のみ)   |

| 会議開催報告 K22 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第24回連携推進ワークショップ -サブ課題B  |
| 日時         | 2019年10月26日(土) 10:00 ~ 13:00   |
| 場所         | 名古屋大学東京オフィス  |
| 参加者        | 杉野、館山、岡崎、CSE事務局  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 研究進捗状況について</li> <li>2. 成果報告について</li> <li>3. 今後の予定について</li> <li>4. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K23 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第25回連携推進ワークショップ -サブ課題B   |
| 日時         | 2019年11月2日(土) 10:00 ~ 14:00   |
| 場所         | 名古屋大学東京オフィス   |
| 参加者        | 杉野、館山、岡崎  |
| 議事         | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 成果報告について</li> <li>2. 今後の予定について</li> <li>3. その他</li> </ol> |

| 会議開催報告 K24 |                              |
|------------|------------------------------|
| 会議名称       | ポスト「京」重点課題5 ウィンタースクール -量子化学- |
| 日時         | 2019年12月16日(月)～18日(水)        |
| 場所         | 岡崎コンファレンスセンター                |
| 参加者        | 79名 講師9名 合計88名               |

プログラム \*敬称略

12月16日(月)

司会：藤田貴敏(分子研)

13:25 - 13:40 開会式：岩田末廣校長

13:40 - 15:10 小林正人(北海道大学)「Hartree-Fock(-Roothaan)法：理論概要から詳細、数値結果まで」

15:20 - 16:50 中谷直輝(首都大学東京)「電子相関と post-HF 法」

17:00 - 18:30 神谷宗明(岐阜大学)「密度汎関数理論の基礎」

12月17日(火)

司会：川嶋英佑(R-CCS)

9:00 - 10:30 福田良一(京都大学)「電子励起状態の計算化学」

10:40 - 12:10 岸亮平(大阪大学)「量子化学に基づく分子物性の予測と解釈」

12:10 - 13:30 昼食

司会：吉川武司(早稲田大学)

13:30 - 15:00 原渕祐(北海道大学)「量子化学計算を用いた反応経路解析」

15:10 - 16:40 和佐田祐子(名古屋工業大学)「GaussianによるSCFおよび構造最適化計算の実際」

16:50 - 17:50 受講者の研究発表 (poster) 受講者の研究発表 (poster) ポスター発表

18:00 - 19:30 懇親会

12月18日(水)

司会：五十幡康弘(早稲田大学)

9:00 - 10:30 清野淳司(早稲田大学)「相対論的量子化学における理論・計算手法の基礎」

10:40 - 12:10 白井聡一(豊田中央研究所)「企業の材料研究における量子化学の役割」

12:15 - 12:30 修了証授与、閉会式：岩田末廣 校長

| 会議開催報告 K25 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 第9回材料系ワークショップ ～「富岳」で飛躍へ！計算データの価値～<br>(共催)    |
| 主催         | 一般財団法人 高度情報科学技術研究機構                          |
| 日時         | 2020年2月17日(月) 10:00～18:00、18日(火) 10:00～17:00 |
| 場所         | 秋葉原コンベンションホール                                |
| 参加者        | 17日：184名 内企業79名<br>18日：155名 内企業81名           |

プログラム \*敬称略

2/17(月)

司会：吉澤 香奈子(高度情報科学技術研究機構)

|             |  |
|-------------|--|
| 10:00-10:05 | 開会挨拶<br>草間 義紀(高度情報科学技術研究機構)                                    |
| 10:05-10:40 | 萌芽的課題「基礎科学の挑戦－複合・マルチスケール問題を通じた極限の探求」<br>久保 百司(東北大学)            |
| 10:40-11:00 | 高精度第一原理計算手法の開発 - 量子コンピュータ・新物質構造探索・レーザー加工への展開<br>松下 雄一郎(東京工業大学) |
| 11:00-11:35 | 重点課題(6)における材料・分子系のシミュレーション事例、ならびにデータ科学との連携事例<br>望月 祐志(立教大学)    |
| 11:35-12:50 | <ランチタイム>   |
| 12:50-14:20 | ポスター発表(ポスト「京」重点課題(7)・萌芽的課題(1)で創出された成果紹介)                       |
| 14:20-14:55 | 重点課題(5)「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>岡崎 進(名古屋大学)        |
| 14:55-15:30 | 重点課題(7)「次世代の産業を支える新機能デバイス、高性能材料の開発」                            |

|                           |   |
|---------------------------|---|
|                           | 常行 真司(東京大学)   |
| 15:30-15:50               | <休憩>  |
| 15:50-16:10               | HPCI 利用環境と利用支援：HPCI における産業利用推進の取り組み<br>塩原 紀行(高度情報科学技術研究機構)  |
| 16:10-16:45               | 鉄鋼材料の高強度化に向けた基礎研究と産学連携<br>澤田 英明(日本製鉄株式会社)   |
| 16:45-16:50               | <休憩>  |
| 「計算物質科学におけるエコシステムの構築は可能か」 |   |
| 16:50-18:00               | パネルディスカッション<br>モデレータ：古宇田 光(東京大学物性研究所)<br>パネリスト：江原 正博(分子科学研究所) / 久保 百司(東北大学) / 森川 良忠(大阪大学) / 尾崎 泰助(東京大学物性研究所) / 茂本 勇(東レ株式会社, 産応協) / 奥田 基(高度情報科学技術研究機構) |
| 18:00-20:00               | 意見交換会(希望者のみ：参加費 2,000 円)<br>HPCI・アプリケーション利用相談、情報交換(希望者のみ)   |

2/18(火)

司会：杉山 肇(三菱ケミカル株式会社, 産応協)

|             |  |
|-------------|--|
| 10:00-10:50 | データを中心とした研究開発の課題と将来への期待<br>庄司 哲也(トヨタ自動車株式会社)             |
| 10:50-11:40 | 固体と液体の界面における電気化学反応シミュレーションに関するチュートリアル<br>大谷 実(産業技術総合研究所) |
| 11:40-13:00 | <ランチタイム>   |
| 13:00-13:35 | 地震現象に類似した固体塑性挙動に対する原子スケール解析<br>新山 友暁(金沢大学)               |
| 13:35-14:10 | ボルツマン機械で迫る高温超伝導の発現メカニズム<br>山地 洋平(東京大学)                   |

|                       |  |
|-----------------------|--|
| 14:10-14:45           | パナソニックにおける材料開発のデジタルイゼーションについて<br>藤井 幹也(パナソニック株式会社)   |
| 14:45-15:20           | JSRにおけるマテリアルズ・インフォマティクスと量子コンピューティングの取組<br>大西 裕也(JSR 株式会社)  |
| 15:20-15:40           | <休憩>   |
| 「技術と人をつなぐ産学コミュニティの形成」 |  |
| 15:40-17:00           | パネルディスカッション<br>モデレータ：寺田 弥生(東北大学)<br>パネリスト：新山 友暁(金沢大学) / 山地 洋平(東京大学) / 大西 裕也(JSR 株式会社) / 藤井 幹也(パナソニック株式会社) / 吉澤 香奈子(高度情報科学技術研究機構) |
| 17:00-17:30           | HPCI・アプリケーション利用相談、情報交換(希望者のみ)  |

| 会議開催報告 K26 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | 「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」<br>第6回公開シンポジウム【新型コロナウイルス対策のため中止】 |
| 日時         | 2020年3月10日(火) 13:00 ~ 18:00  |
| 場所         | 岡崎コンファレンスセンター  |

| 会議開催報告 K27 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 第10回NTChemワークショップ(共催)【新型コロナウイルス対策のため延期】 |
| 日時         | 2020年3月26日(木) 13:00 ~ 18:10             |
| 場所         | 理研計算科学研究センター                            |

## (2) 会議参加報告

| 会議参加報告 S01 |  |
|------------|--|
| 会議名称       | HPCI コンソーシアム令和元年度通常総会  |
| 日時         | 2019年5月21日(火) 15:00 ~ 17:00  |
| 場所         | 東京大学理学部4号館3階 1320号室  |
| 参加者        | 加藤   |
| 議事         | 1. 平成30年度事業報告<br>2. 平成30年度会計報告および監査報告<br>3. 令和元年度事業計画<br>4. 平成31年度(令和元年度)予算計画<br>5. ポスト「京」による成果創出に向けた提言について<br>6. HPCI システムの運用方針に関する提言について<br>7. 報告 会員の入退会について<br>8. その他 |

| 会議参加報告 S02 |                             |
|------------|-----------------------------|
| 会議名称       | 重点・萌芽的課題向け説明会               |
| 日時         | 2019年7月25日(木) 11:00 ~ 12:00 |
| 場所         | 理化学研究所 計算科学研究センター           |
| 参加者        | 加藤                          |
| 議事         | 1. 今後のNDA等の取扱について<br>2. その他 |

| 会議参加報告 S03 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 第6回計算物質科学連絡会議   |
| 日時         | 2019年7月31日(木) 18:00 ~ 20:00                                   |
| 場所         | 東北大学東京分室 会議室  |
| 参加者        | 岡崎、天能   |
| 議事         | 計算物質科学の重点課題5、重点課題7、萌芽的課題、PCoMS、Mi <sup>2</sup> i 間の連携のための情報交換 |

| 会議参加報告 S04 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 第6回「京」を中核とする HPCI システム利用研究課題 成果報告会<br>～スーパーコンピュータ「富岳」の胎動、計算科学、AI の融合に向けて～<br>(ポスター出展) |
| 日時         | 2019年11月1日(金) 10:00 ~ 17:40   |
| 場所         | THE GRAND HALL (品川)   |
| 参加者        | 加藤  |

プログラム \*敬称略

10:00 - 10:20

開会挨拶：関 昌弘 (一般財団法人高度情報科学技術研究機構 理事長)

開会挨拶：加藤 千幸 (一般社団法人 HPCI コンソーシアム 理事長)

開会挨拶：松岡 聡 (国立研究開発法人理化学研究所 計算科学研究センター長)

来賓挨拶：文部科学省

10:20 - 10:40

基調講演：石川 裕 (理化学研究所 計算科学研究センター プロジェクトリーダー)  
「富岳スーパーコンピュータの開発状況」

10:40 - 11:00

基調講演：三好 建正 (理化学研究所 計算科学研究センター チームリーダー)  
「気象予報におけるビッグデータ同化と AI の協働に向けて」

11:00 - 11:20

基調講演：小石 正隆 (横浜ゴム株式会社 理事)

「富岳への期待：「機械学習」と「計算科学」で切り拓く革新的な材料開発と製品開発」

11:20 - 12:20

パネルディスカッション：「データサイエンスと HPC の協働を考える」

モデレーター：朴 泰祐（筑波大学 教授）

パネリスト：三好 建正（理化学研究所 計算科学研究センター チームリーダー）

佐藤 賢斗（理化学研究所 計算科学研究センター チームリーダー）

奥野 恭史（京都大学 教授）

小石 正隆（横浜ゴム株式会社 理事）

三宅 隆（産業技術総合研究所 研究チーム長）

高橋 恒一（理化学研究所 生命機能科学研究センター チームリーダー）

12:20 - 13:20 < 昼食 >

13:20 - 14:50

Session1：ポスターセッション

Session2：優秀成果賞受賞課題による成果発表

座長：安池 智一（放送大学）

14:50 - 15:05

ボルツマン輻射流体コードを用いた回転大質量星の重力崩壊計算（hp180111）

原田 了（東京大学 宇宙線研究所）

15:05 - 15:20

先進ガスタービン用遷音速軸流圧縮機の衝撃波を伴う乱流場の LES 解析  
（hp180081）

古川 雅人（九州大学 大学院工学研究院 機械工学部門）

15:20 - 15:35

自転車競技における走行中の最適位置取りのための空力解析（hp180146）

青木 尊之（東京工業大学 学術国際情報センター）

15:35 - 15:50

合金凝固時の等軸晶の高精度予測シミュレーション法の確立（hp180152）

高木 知弘（京都工芸繊維大学 機械工学系）

15:50 - 16:10 < 休憩 >

Session3：優秀成果賞受賞課題による成果発表

座長：押山 淳（名古屋大学）

16:10 - 16:25

へム輸送体によるへム鉄取り込みの全容解明（hp180009）

田村 康一（理化学研究所 計算科学研究センター 粒子系生物物理研究チーム）

16:25 - 16:40

創薬応用を目指した XFEL テンプレートマッチング法によるクロマチン構造多形解析に関する研究 (hp180123)

徳久 淳師 (理化学研究所 RCH/MIH/R-CCS)

16:40 - 16:55

第一原理量子モンテカルロシミュレーションによるグラフェンの圧力誘起半金属-絶縁体転移 (hp170308)

柚木 清司 (理化学研究所 計算科学研究センター 量子系物質科学研究チーム)

16:55 - 17:10

有機ソフトクリスタルの弾性・光応答機構の解明 (hp180078)

河東田 道夫 (高度情報科学技術研究機構 計算科学技術部)

17:10 - 17:35

表彰、講評：小柳 義夫 (成果報告会プログラム委員会 委員長)

17:35 - 17:40

閉会挨拶：高津 英幸 (一般財団法人高度情報科学技術研究機構 常務理事・神戸センター長)

| 会議参加報告 S05 |                             |
|------------|-----------------------------|
| 会議名称       | 2019年度 理研計算科学研究センター一般公開(出展) |
| 主催         | 理化学研究所 計算科学研究センター           |
| 日時         | 2019年11月9日(土) 10:00 ~ 16:30 |
| 場所         | 理化学研究所 計算科学研究センター           |

| 会議参加報告 S06 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 第7回計算物質科学連絡会議   |
| 日時         | 2020年1月14日(火) 18:00 ~ 20:00                                   |
| 場所         | ステーションコンファレンス東京 5F 502  |
| 参加者        | 岡崎、天能   |
| 議事         | 計算物質科学の重点課題5、重点課題7、萌芽的課題、PCoMS、Mi <sup>2</sup> i 間の連携のための情報交換 |

| 会議参加報告 S07 |   |
|------------|---|
| 会議名称       | 今後のHPCIシステムの構築とその利用に関する意見交換会  |
| 日時         | 2020年1月27日(月) 15:00 ~ 17:00   |
| 場所         | TKP 東京駅セントラルカンファレンスセンター 11階 ホール11A  |
| 参加者        | 加藤  |
| プログラム      | <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 趣旨説明</li> <li>2. 「富岳」開発状況</li> <li>3. 「今後のHPCIシステムの構築とその利用に関する基本的な考え方について」 報告書(案)の紹介</li> <li>4. 会場から意見交換</li> <li>5. 閉会挨拶</li> </ol> |

### (3) コデザイン検討会議報告

| コデザイン検討会議報告 C01 |                                  |
|-----------------|----------------------------------|
| 会議名称            | 第54回重点課題アプリ5ワーキンググループ            |
| 日時              | 2019年4月26日(金) 14:00 ~ 16:00      |
| 場所              | 理研 計算科学研究センター                    |
| 参加者             | 土持                               |
| 議事              | 1. 重点課題5開発アプリの性能評価について<br>2. その他 |

| コデザイン検討会議報告 C02 |                                  |
|-----------------|----------------------------------|
| 会議名称            | 第55回重点課題アプリ5ワーキンググループ            |
| 日時              | 2019年5月21日(火) 13:00 ~ 15:00      |
| 場所              | 理研 計算科学研究センター                    |
| 参加者             | 土持                               |
| 議事              | 1. 重点課題5開発アプリの性能評価について<br>2. その他 |

| コデザイン検討会議報告 C03 |                                  |
|-----------------|----------------------------------|
| 会議名称            | 第56回重点課題アプリ5ワーキンググループ            |
| 日時              | 2019年7月9日(火) 10:00 ~ 12:00       |
| 場所              | 理研 計算科学研究センター                    |
| 参加者             | 土持                               |
| 議事              | 1. 重点課題5開発アプリの性能評価について<br>2. その他 |

| コデザイン検討会議報告 C04 |                                    |
|-----------------|------------------------------------|
| 会議名称            | 第 57 回重点課題アプリ 5 ワーキンググループ          |
| 日時              | 2019 年 8 月 2 日(金) 13:00 ~ 15:00    |
| 場所              | 理研 計算科学研究センター                      |
| 参加者             | 土持                                 |
| 議事              | 1. 重点課題 5 開発アプリの性能評価について<br>2. その他 |

| コデザイン検討会議報告 C05 |                                    |
|-----------------|------------------------------------|
| 会議名称            | 第 60 回重点課題アプリ 5 ワーキンググループ          |
| 日時              | 2020 年 1 月 24 日(金) 13:00 ~ 15:00   |
| 場所              | 理研 計算科学研究センター                      |
| 参加者             | 土持                                 |
| 議事              | 1. 重点課題 5 開発アプリの性能評価について<br>2. その他 |

様式 21

(4) 学会等発表実績

委託業務題目「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」

機関名 大学共同利用機関法人 自然科学研究機構 分子科学研究所

1. 学会等における口頭・ポスター発表

(a) 口頭発表

| 発表した成果（発表題目）  | 発表者氏名      | 発表した場所（学会等名）   | 発表した時期     | 国内・外の別 |
|---|------------|--|------------|--------|
| 拡張 Koopmans 定理を用いた強相関係におけるイオン化ポテンシャルの計算   | 土持崇嗣、天能精一郎 | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年 5 月 | 国内     |
| Quantum chemistry approach to periodic solid systems:a Wannierized on-site cluster method | 西口和孝       | ポスト「京」重点課題 5 第 2 回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里 MUSICA)  | 2019 年 8 月 | 国内     |
| Reactive orbital energy theory and its recent progress                                    | 常田貴夫       | ポスト「京」重点課題 5 第 2 回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里 MUSICA)  | 2019 年 8 月 | 国内     |
| Second-order perturbation theory with spin-projected Hartree-Fock                         | 土持崇嗣       | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年 9 月 | 国外     |

|  |  |   |              |    |
|--|--|---|--------------|----|
| Virtual Screening of Non-Fullerene Acceptors for Organic Photovoltaics by Density Functional Theory and Dynamic Monte Carlo Method | 川嶋英佑   | ポスト「京」重点課題5第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里MUSICA)  | 2019年<br>8月  | 国内 |
| 化学反応ダイナミクスとエネルギー変換の分子論   | 山下晃一   | 慶應義塾大学理工学部化学科化学特別講義   | 2019年<br>4月  | 国内 |
| Entropy Promotes Charge Separation in Bulk Heterojunction Organic Photovoltaics  | Eisuke Kawashima, Mikiya Fujii, Koichi Yamashita | The 29th International Conference on Photochemistry "Device-Inspired Photochemistry and Photophysics" | 2019年<br>7月  | 国外 |
| DFT study of perovskite oxide and oxynitride materials for photocatalysis  | 金子正徳   | ポスト「京」重点課題5第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里MUSICA)  | 2019年<br>8月  | 国内 |
| ペロブスカイト型酸窒化物におけるアニオン配置の回帰および予測モデル  | 金子正徳、山下晃一  | 日本コンピュータ化学会 2019 秋季年会   | 2019年<br>10月 | 国内 |
| Entropy Promotes Charge Separation in Bulk Heterojunction Organic Photovoltaics  | Eisuke Kawashima, Mikiya Fujii, Koichi Yamashita | 29th International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-29)                         | 2019年<br>11月 | 国外 |

|  |   |   |             |    |
|--|---|---|-------------|----|
| Electronic Structures of Doped BaTaO <sub>2</sub> N: A DFT Study   | Koichi Yamashita, Hiroki Iriguchi, Masanori Kaneko  | 3rd International Solar Fuels Conference (ISF-3) International Conference on Artificial Photosynthesis-2019 (ICARP2019) | 2019 年 11 月 | 国内 |
| NO + CO Reaction on Rh Surface: DFT Investigation Combined with Microkinetic Analysis  | Atsushi Ishikawa, Yoshitaka Tateyama                | Spring 2019 ACS National Meeting  | 2019 年 4 月  | 国外 |
| DFT computational study on stability and ion diffusion in Na <sub>3</sub> SbS <sub>4</sub> solid electrolyte for all-solid-state batteries   | Randy Jalem, Yoshitaka Tateyama                     | 22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)  | 2019 年 6 月  | 国外 |
| Combined Methods from High-Throughput Density Functional Theory and Materials Informatics to Efficiently Find Novel Solid Electrolyte Candidates for All-Solid-State Battery Application | Randy Jalem   | CECAM Workshop: Accelerating material discovery by smart high-throughput computations                                   | 2019 年 7 月  | 国外 |
| Exploring Material Spaces Using High-Throughput DFT Calculations and Bayesian Optimization for Discovery of All-Solid-State Battery Materials  | Randy Jalem   | 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-11)                             | 2019 年 7 月  | 国外 |
| Structure Search and Property Analysis of Interfaces between Cathode and Solid Electrolyte in All-Solid-State Battery via DFT-CALYPSO Method   | Bo Gao, Randy Jalem, Yanming Ma, Yoshitaka Tateyama | 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-11)                             | 2019 年 7 月  | 国外 |

|  |  |   |             |    |
|--|--|---|-------------|----|
| Theoretical Study on Termination Dependent Redox Reactivity of Boron-Doped Diamond / Water Interface   | Yoshitaka Tateyama, Shota Iizuka, Keisuke Natsui, Yasuaki Einaga | ISE 70th Annual Meeting   | 2019 年 8 月  | 国外 |
| Density functional theory-based microkinetic analysis of oxidative coupling of methane catalyzed by pure and lithium-doped magnesium oxide               | Atsushi Ishikawa, Yoshitaka Tateyama                             | 8th Asia Pacific Congress on Catalysis (APCAT-8)                      | 2019 年 8 月  | 国外 |
| Density Functional Theory-Based Microkinetic Analysis of Oxidative Coupling of Methane Catalyzed by Pure and Lithium-Doped Magnesium Oxide               | Atsushi Ishikawa, Yoshitaka Tateyama                             | EuropaCat201  | 2019 年 8 月  | 国外 |
| LiNi <sub>0.5</sub> Mn <sub>1.5</sub> O <sub>4</sub> 正極／電解液界面における電解液分子の吸着状態及び酸化分解機構に関する第一原理計算研究  | 館山佳尚、後瀉啓介、奥野幸洋   | 第 13 回分子科学討論会   | 2019 年 9 月  | 国内 |
| DFT-based study on the electrode-contact stability and ion transport of Na <sub>3</sub> SbS <sub>4</sub> solid electrolyte for all-solid-state batteries | Randy Jalem, Yoshitaka Tateyama                                  | 第 60 回電池討論会   | 2019 年 11 月 | 国外 |
| Insights on the electrode-contact stability and ion conduction mechanism in Na <sub>3</sub> SbS <sub>4</sub> solid electrolyte by DFT-based calculations | Randy Jalem, Yoshitaka Tateyama                                  | 10th Asian Conference on Electrochemical Power Sources 2019 (ACEPS10) | 2019 年 11 月 | 国外 |
| Structure Search and Property Analysis of Interfaces between Cathode and Solid Electrolyte in All-Solid-State Battery via DFT-CALYPSO Method             | Bo Gao, Randy Jalem, Yanming Ma, Yoshitaka Tateyama              | 10th Asian Conference on Electrochemical Power Sources 2019 (ACEPS10) | 2019 年 11 月 | 国外 |

|  |  |   |                |        |
|--|--|---|----------------|--------|
| Computational screening of novel solid electrolyte candidates for all-solid-state battery by high-throughput DFT and data science techniques | Randy Jalem,<br>Yoshitaka<br>Tateyama,<br>Ichiro<br>Takeuchi,<br>Masanobu<br>Nakayama, | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)   | 2019 年<br>12 月 | 国<br>外 |
| 自由エネルギー面探索:溶液中の自由エネルギー最適化と振動数解析  | 北村勇吉   | ポスト「京」重点課題5第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里MUSICA)                                    | 2019 年<br>8 月  | 国<br>内 |
| 3D-RISM-SCF法によるブルッカーメロシアニンのソルバトクロミズムと溶媒和構造に関する研究   | 田中佑一   | ポスト「京」重点課題5第2回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里MUSICA)                                    | 2019 年<br>8 月  | 国<br>内 |
| 分子凝集状態の複合反応系に対する Red Moon 方法論にもとづく計算化学   | 長岡 正隆, 鈴木雄一, 竹中 規雄, 高柳 昌芳  | 第 13 回分子科学討論会 名古屋 2019 (名古屋大学)  | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| Theoretical Study of Salt Concentration Effect on SEI Film Formation in Non-Flammable Electrolyte.   | A. Bouibes,<br>N. Takenaka,<br>S. Saha,<br>M. Nagaoka                                  | 第 60 回電池討論会 (国立京都国際会館)  | 2019 年<br>11 月 | 国<br>内 |
| Performance evaluation of the MODYLAS application on modern multi-core and many-core environments  | S. Ohshima,<br>S. Suzuki,<br>T. Sakashita,<br>M. Ogino,<br>T. Katagiri,<br>Y. Andoh    | The 33rd IEEE International Parallel and Distributed Processing Symposium Workshops | 2019 年<br>5 月  | 国<br>外 |
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究 I: 延性と脆性  | 藤本和士、湯之也、篠田渉、岡崎進   | 第 68 回高分子学会年次大会   | 2019 年<br>5 月  | 国<br>内 |

|   |   |  |            |    |
|---|---|--|------------|----|
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究 II：分子論的解釈  | 湯之也、藤本和士、篠田渉、岡崎進  | 第 68 回高分子学会年次大会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 全原子分子動力学計算による純ブタジエンゴム破壊の分子機構の研究   | パヤル ラジデ ィープ、藤本和士、ジャン チャンウーン、篠田渉、武井祐樹、島広志、角田克彦、岡崎進○                    | 第 68 回高分子学会年次大会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| ガラス状高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究 All-atom Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers                                    | 藤本和士、湯之也、篠田渉、岡崎進  | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 高速多重極展開法における圧力テンソル計算のベクトル表示による高速化 Acceleration of pressure tensor calculation of fast multipole method by a vector-representation | 吉井範行、安藤嘉倫、坂下達哉、岡崎進  | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| Novel method to evaluate position-dependent diffusion constant of small molecules in heterogeneous systems                        | T. Nagai, S. Tsurumaki, R. Urano, K. Fujimoto, W. Shinoda, S. Okazaki | the 36th International Conference on Solution Chemistry (ICSC2019) | 2019 年 8 月 | 国外 |
| Toward understanding of substance transportation in polymer membrane  | 永井哲郎  | ポスト「京」重点課題 5 第 2 回若手勉強会(若手研究者によるワークショップ)(入鹿の里 MUSICA)              | 2019 年 8 月 | 国内 |

|   |                                     |                                 |                |        |
|---|-------------------------------------|---------------------------------|----------------|--------|
| Molecular dynamics study of thermodynamic stability of a polymer solution; non-solvent induced phase separation of PVDF/NMP/water   | T. Taddese, M. Kitabata, S. Okazaki | Joint EMLG/JMLG conference 2019 | 2019 年<br>9 月  | 国<br>外 |
| 非対称な脂質組成を持った脂質二重層膜内での脂質分子側方凝集に関する理論的研究<br>Molecular dynamics simulation study on lateral clustering of lipid molecules in lipid bilayers with anisotropic lipid composition | 安藤嘉倫、早川志保、岡崎進                       | 第 13 回分子科学討論会                   | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| 静電相互作用計算に高速多重展開法を用いたときの<br>圧力テンソル計算の高速化<br>Acceleration of Pressure Tensor Calculation in Fast Multipole Method   | 吉井範行、安藤嘉倫、坂下達哉、岡崎進                  | 第 13 回分子科学討論会                   | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| 分子動力学シミュレーションによる poly(vinylidene fluoride) (PVDF) 表面における良溶媒および良/貧混合溶媒による濡れ性の分子論的研究  | 北畑雅弘、セデンタデセ、岡崎進                     | 第 68 回高分子討論会                    | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究: ミクロの視点における降伏現象の解明   | 湯之也、藤本和士、篠田涉、岡崎進                    | 第 68 回高分子討論会                    | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究  | 藤本和士、湯之也、岡崎進                        | 第 68 回高分子討論会                    | 2019 年<br>9 月  | 国<br>内 |
| 細胞膜内でのコレステロール分子側方凝集に関する理論的研究<br>Theoretical study on lateral aggregation of cholesterol molecules in cell plasma membranes  | 安藤嘉倫、早川志保、岡崎進                       | 第 42 回溶液化学シンポジウム                | 2019 年<br>10 月 | 国<br>内 |

|  |   |  |                |    |
|--|---|--|----------------|----|
| 高分子溶液における非溶媒誘起相分離過程の自由エネルギー解析—全原子分子動力学計算<br>Free energy analysis of Non-solvent Induced Phase Separation in Polymer Solution - All-atom Molecular Dynamics Calculation | セデン タデセ、北畑雅弘、岡崎進                          | 第 42 回溶液化学シンポジウム   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| Molecular dynamics study of thermodynamic stability of a polymer solution;<br>non-solvent induced phase separation of PVDF/NMP/water                                   | T. Taddese,<br>M. Kitabata,<br>S. Okazaki | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| All-atom Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers  | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki    | Materials Research Meeting 2019                          | 2019 年<br>12 月 | 国外 |
| All-atom Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers  | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki    | 第 29 回日本 MRS 年次大会, 万国橋会議センター                             | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| 次期スパコン「富岳」での大規模・長時間分子動力学計算実現のためのソフトウェア MODYLAS の性能向上   | 安藤嘉倫、坂下達哉、張家超、朱喆、浦野諒、藤本和士、吉井範行、岡崎進        | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂                              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 不均一系での物質輸送を評価の際に利用する位置に依存した拡散係数の新規評価方法   | 永井哲郎、弦巻周平、浦野諒、藤本和士、篠田渉、岡崎進                | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂                              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 分子動力学計算による界面活性剤含水ラメラの構造決定および分子挙動に関する研究   | 武田康助、安藤嘉倫、篠田渉、岡崎進                         | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂                              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| Poly(vinylidene fluoride) (PVDF) 表面における良溶媒および良/貧混合溶媒による濡れ性の分子論的研究  | 北畑雅弘、Tseden Taddese、岡崎進                   | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂                              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |

|   |  |   |                |    |
|---|--|---|----------------|----|
| CO <sub>2</sub> ハイドレートの基礎科学とその産業的可能性  | 松本 正和  | 文部科学省 ポスト「京」重点課題5 連携推進ワークショップ サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 -化学エネルギー (東京)                       | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| 水溶液の液-液相転移  | 矢ヶ崎琢磨, 松本正和, 田中秀樹  | 第 33 回分子シミュレーション討論会   | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 非調和下方歪みに基づくポテンシャルエネルギー超曲面の代数幾何的解析   | 海老澤 修一, 堤 拓朗, 武次徹也                                       | 第 22 回理論化学討論会 (札幌)  | 2019 年<br>5 月  | 国内 |
| OMS-2 担持 Au 触媒におけるピペリドン分子の C-H 結合活性化機構に関する理論的研究   | 宮崎 玲, 金 雄傑, 吉井 大地, 谷田部 孝文, 山口 和也, 水野 哲孝, 長谷川 淳也          | 第 22 回理論化学討論会 (札幌)  | 2019 年<br>5 月  | 国内 |
| From static to dynamic picture: elucidation of dynamics effects from on-the-fly trajectory analyses     | Tsutsumi Takuro, Ono Yuriko, Arai Zin, Taketsugu Tetsuya | 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics                                      | 2019 年<br>6 月  | 国内 |
| Visualization technique of dynamical reaction pathways: application to non-IRC pathways of SN2 reaction | Takuro Tsutsumi, Yuriko Ono, Zin Arai, Tetsuya Taketsugu | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年<br>7 月  | 国内 |
| 触媒活性予測のための表面モデル計算データベースの構築とメタン水蒸気改質触媒への応用   | 小林正人, 小野田遼, 武次徹也   | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)  | 2019 年<br>9 月  | 国内 |

|  |   |  |                |    |
|--|---|--|----------------|----|
| 二座ホスフィン配位金クラスターの発光特性における配位子環境の影響                               | 七分勇勝, 岩佐豪, 武次徹也, 小西克明                                       | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)   | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| Au/OMS-2 触媒によるピペリドン分子の C-H 結合活性化機構に関する理論的研究                    | 宮崎玲・金雄傑・吉井大地・谷田 部孝文・山口和也・水野哲孝・長谷川淳也                         | 第 124 回触媒討論会   | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| 触媒への理論的アプローチ: 未知機構解明と未知触媒提案にむけて                                | 武次徹也  | 文部科学省 ポスト「京」重点課題 5 連携推進ワークショップ サブ課題 C エネルギー・資源の有効利用 – 化学エネルギー (東京)   | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| Theory of Chemical Reaction: Reaction Path and Dynamics Effect | Kohei Oda, Takuro Tsutsumi, Kenji Furuya, Tetsuya Taketsugu | The 15th Nanjing University-Hokkaido University-NIMS Joint Symposium | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| 相関エネルギー密度の完全基底極限に基づく機械学習型電子相関モデルの開発                            | 五十幡康弘, 髙嶋拓朗, 清野淳司, 吉川武司, 中井浩巳                               | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年<br>5 月  | 国内 |
| 分割統治型密度汎関数強束縛法によるペロブスカイト太陽電池材料におけるポーラロン形成動力学シミュレーション           | 浦谷 浩輝, 周建斌, 中井 浩巳   | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年<br>5 月  | 国内 |
| 相対論的量子化学計算プログラム RAQET の公開                                      | 五十幡康弘, 吉川武司, 中井浩巳   | 日本コンピュータ化学会 2019 年春季年会   | 2019 年<br>6 月  | 国内 |
| 触媒担体の格子酸素が関わる NO-CO 反応の理論的解析                                   | 藤代天佑, 大越昌樹, 中井浩巳  | 日本コンピュータ化学会 2019 年春季年会   | 2019 年<br>6 月  | 国内 |

|  |   |   |                |    |
|--|---|---|----------------|----|
| ペロブスカイト太陽電池材料におけるポーラロン形成の量子的分子動力学シミュレーション                                    | 浦谷浩輝、周 建斌、中井 浩巳   | 日本コンピュータ化学会 2019 年春季年会  | 2019 年<br>6 月  | 国内 |
| Local Hybrid Functionals for Relativistic 1s Core Orbital Shifts             | T. M. Maier,<br>Y. Iwabata,<br>H. Nakai                               | 18th International Conference on Density-Functional Theory and its Applications | 2019 年<br>7 月  | 国外 |
| Machine-Learned Electron Correlation Model in the Form of Density Functional | Y. Iwabata,<br>T. Nudelman,<br>J. Seino,<br>T. Yoshikawa,<br>H. Nakai | 18th International Conference on Density-Functional Theory and its Applications | 2019 年<br>7 月  | 国外 |
| 重点課題5サブ課題C 中井G 成果報告と今後の展開  | 中井浩巳  | 文部科学省 ポスト「京」重点課題5 連携推進ワークショップ サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 –化学エネルギー (東京)                 | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| 鉛ハライドペロブスカイト材料におけるポーラロン形成過程の量子分子動力学シミュレーション                                  | 浦谷 浩輝、周 建斌、中井 浩巳  | 第 13 回分子科学討論会   | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| 機械学習型電子相関モデルの開発と数値検証   | 五十幡康弘、髙嶋拓朗、清野淳司、吉川武司、藤澤遼、中井浩巳   | 第 42 回ケモインフォマティクス討論会  | 2019 年<br>10 月 | 国内 |

## (b) ポスター発表

| 発表した成果（発表題目）   | 発表者氏名   | 発表した場所（学会等名）   | 発表した時期         | 国内・外の別 |
|--|---|--|----------------|--------|
| Stochastic perturbation theory in a limited configuration space  | Ladoczki<br>Bence, 天能精一郎  | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年<br>5 月  | 国内     |
| 拡張 Koopmans 定理を用いた強相関係におけるイオン化ポテンシャルの計算  | 土持崇嗣、天能精一郎  | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年<br>5 月  | 国内     |
| Ionization potentials for multi-reference systems via post-PHF: Extended Koopmans Theorem  | 土持崇嗣、天能精一郎  | 9th Molecular Quantum Mechanics Conference (MQM2019)                                     | 2019 年<br>6 月  | 国外     |
| 強電子相関係のイオン化ポテンシャル  | 土持崇嗣、天能精一郎  | 第 13 回分子化学討論会  | 2019 年<br>9 月  | 国内     |
| First-principles study of the interfaces of SrTiO <sub>3</sub> with mediator and cocatalyst for the hydrogen evolution in the Z-scheme artificial photosynthesis | Shotaro Sakurai,<br>Kotaro Okano,<br>Kazutaka Nishiguchi, 天能精一郎 | International Workshop on Frontier of Science and Technology for Solar Energy Conversion | 2019 年<br>11 月 | 国内     |
| 非フラーレン型有機薄膜太陽電池の D/A 遷移におけるフッ素化の役割   | 太田 希、村岡 梓、山下晃一  | 第 13 回分子科学討論会（名古屋大学東山キャンパス）  | 2019 年<br>9 月  | 国内     |
| Charge Carrier Trapping at Surface Defects and Optical Properties of Perovskites   | Koichi Yamashita  | Faraday Discussion : Ultrafast Photoinduced Energy and Charge Transfer (Ventura, USA)    | 2019 年<br>8 月  | 国外     |

|   |  |   |                |    |
|---|--|---|----------------|----|
| 非フラーレン型有機薄膜太陽電池のアクセプター分子の光吸収性   | 池山すみれ、村岡梓、山下晃一                                       | 日本コンピュータ化学会 2019 秋季年会   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| DFT 計算による (Na) <sub>n</sub> の安定構造と NMR 解析   | 寿崎文音、村岡梓、山下晃一  | 日本コンピュータ化学会 2019 秋季年会   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| 非フラーレン型アクセプター分子が示す有機薄膜太陽電池の D/A 遷移の特徴   | 太田希、山下晃一、村岡梓   | 日本コンピュータ化学会 2019 秋季年会   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| 酸化タングステン光触媒の電子-フォノン相互作用   | 金子正徳、山下晃一  | 日本コンピュータ化学会 2019 秋季年会   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| Effects of Magnesium-Organohalogenate complex in Magnesium Ion Battery electrolytes: A Car-Parrinello Molecular Dynamics (CPMD) Study   | Ashu Choudhary, Keitaro Sodeyama, Yoshitaka Tateyama | CPMD Meeting 2019   | 2019 年<br>7 月  | 国外 |
| First-Principles Study on Na <sup>+</sup> Ion Transport in Na <sub>3</sub> SbS <sub>4</sub> Solid Electrolyte for All-Solid-State Na Ion Battery  | Randy Jalem, Yoshitaka Tateyama                      | 2nd World conference on Solid Electrolytes for Advanced Applications: Garnets and Competitors | 2019 年<br>9 月  | 国外 |
| Atomic-Scale Insight into Surface Morphology and Stability of Interface between Garnet Li <sub>7</sub> La <sub>3</sub> Zr <sub>2</sub> O <sub>12</sub> and Li Metal from First Principles | Bo Gao, Randy Jalem, Yoshitaka Tateyama              | 2nd World conference on Solid Electrolytes for Advanced Applications: Garnets and Competitors | 2019 年<br>9 月  | 国外 |
| Genetic Algorithm Based Force Field Parameterization for Lithium-Ion Battery Applications   | Xichan Gao, Yoshitaka Tateyama, Kazuto Akagi         | 計算物質科学人材育成コンソーシアム (PCoMS) シンポジウム  | 2019 年<br>10 月 | 国外 |

|   |   |   |             |    |
|---|---|---|-------------|----|
| Force Field Parameterization using Genetic Algorithm for Lithium-Ion Battery Applications   | Xichan Gao, Yoshitaka Tateyama, Kazuto Akagi                                    | 2nd Asian Workshop on First-Principles Electronic structure Calculations (ASIAN-22) | 2019 年 10 月 | 国外 |
| AMP2: A Package for Automated Ab-initio Calculation for Crystalline Materials   | Yong Youn, Miso Lee, Changho Hong, Doyeon Kim, Kanghoon Yim, Yoshitaka Tateyama | 2nd Asian Workshop on First-Principles Electronic structure Calculations (ASIAN-22) | 2019 年 10 月 | 国外 |
| The Oxidative Coupling of Methane Catalyzed by MgO; A First-Principle Based Microkinetics and Ab-initio Molecular Dynamics Study                                    | Atsushi Ishikawa, Yoshitaka Tateyama  | 2nd Asian Workshop on First-Principles Electronic structure Calculations (ASIAN-22) | 2019 年 10 月 | 国外 |
| Structure Search and Property Analysis of Interfaces between Cathode and Solid Electrolyte in All-Solid-State Battery via DFT-CALYPSO Method                        | Bo Gao, Yanming Ma, Yoshitaka Tateyama  | 2nd Asian Workshop on First-Principles Electronic structure Calculations (ASIAN-22) | 2019 年 10 月 | 国外 |
| Microscope mechanism of Li-ion transport at Interfaces between LiCoO <sub>2</sub> Cathode and Sulfide Electrolyte in All-Solid-State Battery via DFT-CALYPSO Method | Bo Gao, Randy Jalem, Yanming Ma, Yoshitaka Tateyama                             | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)   | 2019 年 12 月 | 国外 |

|   |   |  |             |    |
|---|---|--|-------------|----|
| Effects of Magnesium-Organohaloaluminate complex in Magnesium Ion Battery Electrolytes: A Car-Parrinello Molecular Dynamics Study   | Ashu Choudhary, Keitaro Sodeyama, Yoshitaka Tateyama                      | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)                            | 2019 年 12 月 | 国外 |
| Lithium Diffusion Mechanism in Highly Concentrated Electrolytes via First-Principles Molecular Dynamics Sampling  | Yang Sun, Keitaro Sodeyama, Yuki Yamada, Atsuo Yamada, Yoshitaka Tateyama | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)                            | 2019 年 12 月 | 国外 |
| Multiple Adsorption Modes and Decomposition Pathways of Carbonate Electrolyte Molecules at $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ Cathode Interfaces: Ab Initio Study | Yoshitaka Tateyama, Keisuke Ushirogata, Ganes Shukri, Yukihiro Okuno      | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)                            | 2019 年 12 月 | 国外 |
| Microscopic Mechanism of SEI Layer Formation in Highly Concentrated Electrolytes Based on the Nonflammable Trimethyl Phosphate Solvent                                      | A. Bouibes, N. Takenaka, S. Saha, M. Nagaoka                              | Materials Research Meeting (MRM2019) (横浜シンポジア)                       | 2019 年 12 月 | 国外 |
| Microscopic Mechanism of SEI Film Formation in Highly Concentrated Electrolytes Based on Nonflammable Trimethyl Phosphate Solvent   | A. Bouibes, N. Takenaka, S. Saha, M. Nagaoka                              | APATCC2019 (Abercrombie Business School of the University of Sydney) | 2019 年 10 月 | 国外 |
| ansa-zirconocene 触媒によるプロピレン重合反応における立体規則性の理論的解析  | 田中 佑一、守屋 宏一、鈴木 雄一、三澤 奈々、古賀 伸明、長岡 正隆                                       | 第 13 回分子科学討論会 名古屋 2019 (名古屋大学)                                       | 2019 年 9 月  | 国内 |

|  |  |  |            |    |
|--|--|--|------------|----|
| フェノキシイミン触媒によるオレフィン重合反応における活性点開放機構の理論的解析  | 守屋 宏一、Soumen Saha、田中 佑一、三澤 奈々、鈴木雄一、古賀 伸明、長岡 正隆               | 第 13 回分子科学討論会 名古屋 2019 (名古屋大学)                           | 2019 年 9 月 | 国内 |
| Microscopic Mechanism of SEI Layer Formation in Highly Concentrated Electrolytes Based on the Nonflammable Trimethyl Phosphate Solvent | Amine Bouibes, Norio Takenaka, Soumen Saha, Masataka Nagaoka | 化学反応経路探索のニューフロンティア (SRPS2019) (名古屋大学)                    | 2019 年 9 月 | 国内 |
| 非晶高分子衝撃破壊に関する分子論的研究Ⅲ：圧縮破壊  | 石川博章、藤本 和士、湯之也、岡崎進   | 第 68 回高分子学会年次大会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 非晶高分子の圧縮破壊に関する分子論的研究 All-atom Molecular Dynamics Study of Compressive Fracture of Glassy Polymers                                      | 石川博章、藤本 和士、湯之也、岡崎進   | 第 22 回理論化学討論会  | 2019 年 5 月 | 国内 |
| Performance improvement of MODYLAS using remote direct memory access on the K computer   | M. Nakao, H. Murai, M. Sato, Y. Andoh, S. Okazaki            | The 48th International Conference on Parallel Processing | 2019 年 8 月 | 国内 |
| 分子動力学法を用いたナノチャンネル内における負圧下での水の安定性メカニズムの解明 Molecular dynamics study on stability of liquid water under negative pressure in nanochannels | 伊藤有毅、安藤 嘉倫、岡崎進   | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年 9 月 | 国内 |
| 非晶高分子衝撃破壊に関する分子論的研究Ⅲ：圧縮破壊  | 石川博章、藤本 和士、湯之也、岡崎進   | 第 68 回高分子討論会   | 2019 年 9 月 | 国内 |

|  |  |  |                |    |
|--|--|--|----------------|----|
| 不均一系における位置に依存した拡散係数の新規評価手法 Novel method to evaluate the position-dependent diffusion constant in heterogeneous systems   | 永井哲郎、弦巻周平、藤本和士、岡崎進                                       | 計算物質科学人材育成コンソーシアム (PCoMS) シンポジウム & 計算物質科学スーパーコンピュータ事業報告会 | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| ミセルが多数分散する溶液中における溶質分子の拡散 Diffusivity of solute molecules in micellar solution  | 吉井範行、岡崎進   | 第 42 回溶液化学シンポジウム   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| Molecular dynamics study on correlation of membrane properties between outer and inner leaflets of cell plasma membranes | Y. Andoh,<br>S. Hayakawa,<br>S. Okazaki                  | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| Extensions of Fast Multipole Method for Molecular Dynamics Simulations   | N. Yoshii,<br>Y. Andoh,<br>S. Okazaki                    | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers : Compressive Fracture                                    | H. Ishikawa,<br>K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki   | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| All-atom Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers: On the Yielding Phenomenon                      | Z. Tang,<br>K. Fujimoto,<br>S. Okazaki                   | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| A new method to obtain position dependent-diffusion constant with flat-bottom potential                                  | T. Nagai,<br>S. Tsurumaki,<br>K. Fujimoto,<br>S. Okazaki | The 5th International Conference on Molecular Simulation | 2019 年<br>11 月 | 国外 |

|   |  |  |                |    |
|---|--|--|----------------|----|
| Molecular Dynamics Study of Compressive Fracture of Glassy Polymers   | H. Ishikawa,<br>K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki | Materials Research Meeting 2019          | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究  | 藤本和士、湯之也、岡崎進   | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 次期スパコン「富岳」での大規模・長時間分子動力学計算実現のためのソフトウェア MODYLAS の性能向上  | 安藤嘉倫、坂下達哉、張家超、朱喆、浦野諒、藤本和士、吉井範行、岡崎進                     | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 親水性壁に挟まれた負圧下にある水液膜内の分子構造およびダイナミクスに関する研究   | 伊藤有毅、安藤嘉倫、岡崎進  | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 非晶高分子の衝撃破壊に関する分子論的研究:ミクロの視点における降伏現象の解明  | 湯之也、藤本和士、岡崎進   | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 非晶高分子圧縮破壊に関する分子論的研究   | 石川博章、藤本和士、湯之也、岡崎進                                      | 第 33 回分子シミュレーション討論会、名古屋市公会堂              | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| All-atom Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers   | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki                 | Materials Research Meeting 2019, 横浜シンポジア | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| All-Atomistic Molecular Dynamics Study of Impact Fracture of Glassy Polymers:Molecular Mechanism of Brittleness and Ductility | Z. Tang,<br>K. Fujimoto,<br>W. Shinoda,<br>S. Okazaki  | Materials Research Meeting 2019, 横浜シンポジア | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 遷移金属クラスターを用いたアンモニア分解反応の理論的研究  | 毛利広野、岩佐豪、武次徹也  | ナノ学会第 17 回大会                             | 2019 年<br>5 月  | 国内 |
| Au <sub>25</sub> (SR) <sub>18</sub> <sup>-</sup> クラスターの触媒機構の解明に向けた理論的研究   | 高原里奈・岩佐豪・武次徹也  | ナノ学会第 17 回大会                             | 2019 年<br>5 月  | 国内 |

|   |  |               |               |    |
|---|--|---------------|---------------|----|
| o-ニトロフェノールの励起状態分子内プロトン移動と光解離過程に対する理論的研究   | 和田 諒, 堤 拓朗, 新田 優輝, 関川 太郎, 武次 徹也  | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| Controlled intersystem crossing in iron porphycene substituted myoglobin for cyclopropanation reaction: a theoretical study                                     | Liming Zhao, Akira Nakayama, Koji Oohora, Hiroyuki Meichin, Takashi Hayashi, Jun-ya Hasegawa | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| Origin of the enantioselectivity of Ru(III)-Chiral disulfonate hybrid catalysis for C-H bond functionalization  | 高 敏, 大保政貴, 長谷川淳也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| Mechanistic Study of the Asymmetric Dehydrative Allylative Cyclization of Alcohols to Cyclic Ethers Catalyzed CpRu Complex of Chiral Picolinic Acid-type Ligand | Manussada Ratanasak, Shinji Tanaka, Masato Kitamura, Jun-ya Hasegawa                         | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| Ligand Controlled Intersystem crossing of hydrogen binding reaction on Metallocene  | Fuyu Yin, Min Gao, Akira Nakayama, Jun-ya Hasegawa   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| 金属ドーブされた酸化セリウムによるメタンの C-H 結合活性化に関する理論的研究  | 伊勢家 正裕, 中山 哲, 長谷川 淳也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年<br>5 月 | 国内 |

|   |  |               |            |    |
|---|--|---------------|------------|----|
| Soft X-ray Emission Spectroscopy of Crystalline and Amorphous Li-Si Alloys in Lithium-Ion Batteries Anode | Andrey Lyalin, Vladimir Kuznetsov, Akira Nakayama, Igor Abarenkov, Ilya Tupitsyn, Igor Gabis, Kohei Uosaki and Tetsuya Taketsugu | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 演算子変換を用いた効率的時間発展:3 項間漸化式法の拡張  | 赤間 知子, 武次 徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 多次元データ縮約法による動的反応経路の可視化  | 堤 拓朗, 小野 ゆり子, 荒井 迅, 武次徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 単核 $\text{ReO}_x/\text{CeO}_2$ 触媒による脱酸素脱水反応の理論的研究   | 保坂 龍, 中山 哲, 田村 正純, 中川 善直, 富重 圭一, 長谷川 淳也  | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 分割統治エネルギー勾配計算に対するバッファ領域自動制御法の開発   | 藤森 俊和, 小林 正人, 武次徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 金チオラートクラスターの触媒機構の解明に向けた理論的研究  | 高原 里奈, 岩佐 豪, 武次 徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 金属クラスターを用いたアンモニア分解反応経路の探索   | 毛利 広野, 岩佐 豪, 武次 徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| プラズモン増強ラマン分光法における電磁気学的増強に関する理論研究  | 竹中 将斗, 岩佐 豪, 武次 徹也   | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |

|   |   |               |            |    |
|---|---|---------------|------------|----|
| 金錯体二量体の励起状態計算:CC2法と DFT-D3 法の比較検討   | 岩佐 豪, 武次徹也                                | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 希土類錯体の 4f 軌道凍結近似計算と回転最適化による改良   | 大場 祐汰, 小林 正人, 武次徹也                        | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| ヒドロキシメチルフルフラールの不安定性: 系統的計算化学に基づく研究  | 田代 啓介, 小林 正人, 中島 清隆, 武次 徹也                | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| CF <sub>3</sub> <sup>+</sup> -CO 衝突反応の動力学: 固有反応座標と AIMD 解析                          | 織田 耕平, 堤 拓朗, 古屋 謙治, 武次 徹也                 | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| MgO-SiO <sub>2</sub> 系高温融体の系統的 DFTB-MD シミュレーションとパーシステント・ホモロジー 解析: ガラスへのなりやすさの理解にむけて | 宮越 洸二, 小林 正人, 小野寺 陽平, 小原 真司, 武次徹也         | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| Theoretical study on aryl isocyanides adsorbed on the Pt(111) surface               | 王 奔, 高 敏, 武次 徹也                           | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| Ar-PtCO の振動スペクトルにおける異常な希ガス効果  | 小野 ゆり子, 八木 清, 高柳 敏幸, 武次 徹也                | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| がん光免疫療法薬剤 IR700 の細胞障害機構に関する計算化学的研究  | 原田 芽生, 小林 正人, 安藤 完太, 高倉 栄男, 小川 美香子, 武次 徹也 | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |
| 金属クラスター触媒による NO 還元反応に関する理論的研究   | 近藤 有輔, 岩佐 豪, 武次 徹也                        | 第 22 回理論化学討論会 | 2019 年 5 月 | 国内 |

|  |  |  |               |    |
|--|--|--|---------------|----|
| Reaction pathways and dynamical effects on the $\text{CF}_3^+ + \text{CO}$ collision reaction                      | ODA, Kohei,<br>TSUTSUMI,<br>Takuro,<br>FURUYA, Kenji,<br>TAKETSUGU,<br>Tetsuya               | 35th Symposium on<br>Chemical Kinetics<br>and Dynamics | 2019 年<br>6 月 | 国内 |
| Algebraic geometric analysis of chemical reaction based on anharmonic downward distortion                          | Ebisawa<br>Shuichi,<br>Tstsumi<br>Takuro,<br>Taketsugu<br>Tetsuya                            | 35th Symposium on<br>Chemical Kinetics<br>and Dynamics | 2019 年<br>6 月 | 国内 |
| Ab initio dynamics study on the excited-state intramolecular proton transfer and dissociation of ortho-nitrophenol | Wada Satoi,<br>Tsutsumi<br>Takuro, Nitta<br>Yuuki,<br>Sekikawa Taro,<br>Taketsugu<br>Tetsuya | 35th Symposium on<br>Chemical Kinetics<br>and Dynamics | 2019 年<br>6 月 | 国内 |

|   |   |   |               |        |
|---|---|---|---------------|--------|
| Study on nonradiative decay process and trans $\rightarrow$ cis photoisomerization of the most simple cinnamate | KINOSHITA, Shin-nosuke;<br>INOKUCHI, Yoshiya;<br>NAGAMORI, Keigo; NAKATA, Hiroyuki;<br>ONITSUKA, Yuuki;<br>KOHGUCHI, Hiroshi; AKAI, Nobuyuki;<br>SHIRAOGAWA, Takafumi;<br>EHARA, Masahiro;<br>YAMAZAKI, Kaoru;<br>HARABUCHI, Yu;<br>MAEDA, Satoshi;<br>TAKETSUGU, Tetsuya;<br>EBATA, Takayuki | 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics                                      | 2019 年<br>6 月 | 国<br>内 |
| On-the-fly molecular dynamics simulations of the excited-state branching reaction of stilbene derivatives       | Tetsuya Taketsugu, Yu Harabuchi, Takuro Tsutsumi, Rina Yamamoto, Satoshi Maeda  | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年<br>7 月 | 国<br>内 |
| Visualization technique of dynamical reaction pathways: application to non-IRC pathways of SN2 reaction         | Takuro Tsutsumi, Yuriko Ono, Zin Arai, Tetsuya Taketsugu  | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年<br>7 月 | 国<br>内 |

|  |  |   |            |    |
|--|--|---|------------|----|
| Automated Error Control and Static Electron Correlation Treatment in Divide-and-Conquer Method                               | Masato Kobayashi, Toshikazu Fujimori, Ryosuke Kodama, Tetsuya Taketsugu        | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年 7 月 | 国内 |
| Development of efficient time-evolution method based on operator transformation: three-term recurrence-relation method       | Tomoko Akama, Osamu Kobayashi, Shinkoh Nanbu, Tetsuya Taketsugu                | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年 7 月 | 国内 |
| Theoretical study of static and dynamic reaction pathways on collision reaction of $CF_3^+$ and CO                           | ODA, Kohei, TSUTSUMI, Takuro, FURUYA, Kenji, TAKETSUGU, Tetsuya                | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年 7 月 | 国内 |
| Algebraic geometric analysis of ADDF paths around one equilibrium  | S. EBISAWA, T. TSUTSUMI, T. TAKETSUGU  | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年 7 月 | 国内 |
| Ab initio molecular dynamics study of excited-state intramolecular proton transfer and the dissociation of ortho-nitrophenol | Satoi Wada, Takuro Tsutsumi, Yuuki Nitta, Taro Sekikawa, and Tetsuya Taketsugu | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama) | 2019 年 7 月 | 国内 |
| 1,2-ブタジエン励起緩和過程の振動マッピング解析  | 小西里緒, 堤拓朗, 高敏, 小野ゆり子, 原渕祐, 武次徹也  | 化学反応経路探索のニューフロンティア 2019 (名古屋)   | 2019 年 9 月 | 国内 |

|   |                                      |                              |               |    |
|---|--------------------------------------|------------------------------|---------------|----|
| LE- $\Delta$ SCF 法を用いた電荷移動状態の反応経路探索                                   | 竹中将斗, 岩佐豪, 武次徹也                      | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| Au <sub>25</sub> (SR) <sub>18</sub> <sup>-</sup> クラスターの触媒反応に関する理論的研究  | 高原里奈, 岩佐豪, 武次徹也                      | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 次元縮約法による ab initio MD 古典軌道の射影と動力学効果に関する理論的研究                          | 堤拓朗, 小野ゆり子, 荒井迅, 武次徹也                | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 金属クラスターモデルを用いたアンモニア分解反応の理論的研究   | 毛利広野, 岩佐豪, 武次徹也                      | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 近接場光誘起の電子励起状態   | 岩佐豪, 竹中将斗, 武次徹也                      | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| Theoretical study on aryl isocyanides adsorbed on the Pt(111) surface | Ben Wang, Min Gao, Tetsuya Taketsugu | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 固有反応座標に従わない動的な反応経路に関する理論的研究   | 織田耕平, 堤拓朗, 古屋謙治, 武次徹也                | 化学反応経路探索のニューフロンティア2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| AIMD 振動マッピング解析と 1,2-ブタジエン励起緩和過程への適用                                   | 小西里緒, 堤拓朗, 高敏, 小野ゆり子, 原潤祐, 武次徹也      | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)     | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| チップ増強ラマン分光イメージングの理論研究   | 竹中将斗, 岩佐豪, 武次徹也                      | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)     | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 金チオラートクラスターの触媒機構の解明に向けた理論的研究  | 高原里奈, 岩佐豪, 武次徹也                      | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)     | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 演算子変換を用いた効率的時間発展:3 項間漸化式法の開発と拡張                                       | 赤間知子, 武次徹也                           | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋)     | 2019 年<br>9 月 | 国内 |

|  |  |                          |               |    |
|--|--|--------------------------|---------------|----|
| 金属 4 量体を用いたアンモニア分解反応の理論的研究   | 毛利広野, 岩佐豪, 武次徹也  | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 時間分解光電子分光法による <i>o</i> -ニトロフェノールの超高速光解離反応の観測   | 新田 優輝, Oliver Schalk, 和田諒, 堤拓朗, 武次徹也<br>金島圭佑, 関川太郎                   | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 近接場光が誘起する電子励起状態  | 岩佐豪, 竹中将斗, 武次徹也  | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| Theoretical study on aryl isocyanides adsorbed on the Pt(111) surface  | Ben Wang, Min Gao, Tetsuya Taketsugu                                 | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 動力学効果による固有反応経路の破綻に関する理論的研究   | 織田耕平, 堤拓朗, 古屋謙治, 武次徹也  | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| ミオグロビンのシクロプロパン化反応における項間交差の制御:鉄ポルフィセン置換の効果に関する理論的研究   | 趙黎明, 中山哲, 大洞光司, 林高史, 長谷川淳也   | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| Theoretical Study on the Mechanism and Enantioselectivity of the Asymmetric Dehydrative Cyclization of Alcohol to Cyclic Ether | Manussada Ratanasak, Shinji Tanaka, Masato Kitamura, Jun-ya Hasegawa | 第 13 回分子科学討論会 2019 (名古屋) | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 単核 $\text{ReO}_x/\text{CeO}_2$ 触媒による脱酸素脱水反応の理論的研究  | 保坂龍・中山哲・田村正純・中川善直・富重圭一・長谷川淳也   | 第 124 回触媒討論会             | 2019 年<br>9 月 | 国内 |

|   |  |   |             |     |
|---|--|---|-------------|-----|
| Computational Studies of Adsorption and SERS Spectra of 2,2'-Bipyridyl on Au, Ag, and Au-Ag Nanoalloy                                 | Masato Takenaka, Yoshikazu Hashimoto, Takeshi Iwasa, Tetsuya Taketsugu, Gediminas Seniutinas, Armandas Balcytis, Saulius Juodkazis, Yoshiaki Nishijima | The 9th Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC-9)       | 2019 年 9 月  | 国 外 |
| Energy-Based Automatic Fragmentation in the Linear-Scaling Divide-and-Conquer Electron Correlation Calculations                       | Toshikazu Fujimori, Masato Kobayashi, Tetsuya Taketsugu  | The 9th Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC-9)       | 2019 年 9 月  | 国 外 |
| 主座標分析による静的反応経路の可視化と動的反応経路の埋め込み  | 堤拓朗, 小野ゆり子, 荒井迅, 武次徹也  | 第 42 回ケモインフォマティクス討論会 (東大本郷)   | 2019 年 10 月 | 国 内 |
| Computational study of vibrational frequency and natural population analysis for aryl isocyanide molecules adsorbed on the Pt surface | Ben Wang, Min Gao, and Tetsuya Taketsugu   | Theoretical and High Performance Computational Chemistry 2019 (ICT-HPCC19) (Guiyang, China) | 2019 年 11 月 | 国 外 |
| フェノール-アンモニアクラスターの励起プロトン共役電子移動反応に関する理論的研究  | 岩田健一郎, 堤拓朗, 和田諒, 武次徹也  | 化学系学協会北海道支部 2020 年冬季研究発表会 (札幌)  | 2020 年 1 月  | 国 内 |
| 有機修飾 Au <sub>25</sub> クラスターにおける金コア構造と光物性の関係性の解明   | 宮本真帆, 岩佐豪, 武次徹也  | 化学系学協会北海道支部 2020 年冬季研究発表会 (札幌)  | 2020 年 1 月  | 国 内 |

|   |                                |                                      |               |    |
|---|--------------------------------|--------------------------------------|---------------|----|
| 最適汎関数を自動生成するオンデマンド DFT の開発                      | 伊藤小夜子、小林正人、常田貴夫、武次徹也           | 化学系学協会北海道支部 2020 年冬季研究発表会（札幌）        | 2020 年<br>1 月 | 国内 |
| 高精度励起状態計算のための RT-TDHF 法の開発                      | 西田叡倫、赤間知子、小林正人、武次徹也            | 化学系学協会北海道支部 2020 年冬季研究発表会（札幌）        | 2020 年<br>1 月 | 国内 |
| 近接場光によるジメチルスフィド解離反応の理論研究                        | 戸田敬二郎、岩佐豪、武次徹也                 | 化学系学協会北海道支部 2020 年冬季研究発表会（札幌）        | 2020 年<br>1 月 | 国内 |
| GPGPU に基づく分割統治型密度汎関数強束縛法の高速化                    | 吉川 武司、中井浩巳                     | 物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の新展開」 | 2019 年<br>4 月 | 国内 |
| DC-DFTB-MD 法によるバクテリオロドプシンの長距離プロトン移動反応の理論的解析     | 小野純一、岡田千果、西村好史、中井浩巳            | 第 22 回理論化学討論会                        | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| 有限温度法に基づく単参照型励起状態計算手法の開発                        | 吉川 武司、土井俊輝、中井 浩巳               | 第 22 回理論化学討論会                        | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| 機械学習型半局所的運動エネルギー汎関数に基づく orbital-free 密度汎関数理論の開発 | 清野淳司、影山 椋、藤波美起登、五十幡康弘、中井浩巳     | 第 22 回理論化学討論会                        | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| インフォーマティクス手法による結合エネルギー密度解析の高精度化                 | 中村海里、清野淳司、中井浩巳                 | 第 22 回理論化学討論会                        | 2019 年<br>5 月 | 国内 |
| インフォーマティクス手法を活用した結合エネルギー密度解析の開発                 | 中村海里、清野淳司、中井浩巳                 | 日本コンピュータ化学会 2019 年春季年会               | 2019 年<br>6 月 | 国内 |
| カチオン性イリジウム触媒を用いた均一系触媒反応における相対論効果                | 高島千波、五十幡康弘、栗田久樹、高野秀明、柴田高範、中井浩巳 | 日本コンピュータ化学会 2019 年春季年会               | 2019 年<br>6 月 | 国内 |

|  |  |  |               |        |
|--|--|--|---------------|--------|
| Relativistic 1s Core Orbital Shifts using Local Hybrid Functionals                                       | T. M. Maier,<br>Y. Ikabata,<br>H. Nakai                | 10th congress of the International Society of Theoretical Chemical Physics (ISTCP-X) | 2019 年<br>7 月 | 国<br>外 |
| Divide-and-conquer DFTB-MD simulations of polaron formation process in a lead halide perovskite material | Hiroki Uratani,<br>Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai        | 10th congress of the International Society of Theoretical Chemical Physics (ISTCP-X) | 2019 年<br>7 月 | 国<br>外 |
| ジアザジボレチジン誘導体の励起状態特性に関する理論的研究   | 五十幡康弘, 庄子良晃, 福島孝典, 中井浩巳                                | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| 球面調和型基底関数を用いた凍結内殻ポテンシャル法の高精度化  | 樽見望都, 清野淳司, 中井浩巳                                       | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| 円錐交差構造の電子状態に関する知見の探索とその応用  | 稲森真由, 五十幡康弘, 中井浩巳                                      | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| 長距離補正法に基づく分割統治型時間依存密度汎関数強束縛法の開発と光異性化への応用   | 河本奈々, 吉川武司, 中井浩巳                                       | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| 密度汎関数強束縛法による Rh ナノクラスター上の NO 解離過程の理論的解析  | 中村崇玖, 周建斌, 吉川武司, 大越昌樹, 小野純一, Aditya Wibawa Sakti, 中井浩巳 | 第 13 回分子科学討論会  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |

|  |  |  |               |        |
|--|--|--|---------------|--------|
| Semi-local machine-learned kinetic energy density functional for orbital-free density functional theory                      | Junji Seino,<br>Ryo Kageyama,<br>Mikito Fujinami,<br>Yasuhiro Ikabata,<br>Hiromi Nakai | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Linear-scaling divide-and-conquer finite-temperature self-consistent field for static correlation systems                    | Takeshi Yoshikawa,<br>Toshiki Doi,<br>Hiromi Nakai                                     | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Recent Development of Automatized Density-Functional Tight-Binding Parameterization for Metal-Containing Systems             | Chien-Pin Chou, Aditya Wibawa Sakti,<br>Hiromi Nakai                                   | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Machine learning study for optimization of reaction conditions including discrete variables with small number of experiments | Mikito Fujinami,<br>Hiroki Maekawara,<br>Junji Seino,<br>Hiromi Nakai                  | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |

|   |  |  |                |        |
|---|--|--|----------------|--------|
| Large-scale quantum-mechanical molecular dynamics simulations of polaron formation process in a lead halide perovskite material using divide-and-conquer type density-functional tight-binding method | Hiroki Uratani,<br>Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai  | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月  | 国<br>外 |
| Key factor of S0/S1 minimum energy conical intersection   | Mayu Inamori,<br>Yasuhiro Ikabata,<br>Takeshi Yoshikawa,<br>Hiromi Nakai                   | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月  | 国<br>外 |
| Practical excited-state simulation of thousands of atoms  | Nana Komoto,<br>Takeshi Yoshikawa,<br>Junichi Ono,<br>Yoshifumi Nishimura,<br>Hiromi Nakai | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月  | 国<br>外 |
| Density-Functional Tight-Binding Metadynamics Study of Oxy-Carbon Diffusion on (100)- $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Surface  | Aditya Wibawa Sakti,<br>Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai                                       | CECAM-Workshop "Thinking outside the box - beyond machine learning for quantum chemistry"                    | 2019 年<br>10 月 | 国<br>外 |
| Long-time quantum molecular dynamics simulations based on divide-and-conquer density-functional tight-binding method for sodium-ion transport in electrolyte solutions                                | Junichi Ono,<br>Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai   | CECAM-Workshop "Thinking outside the box - beyond machine learning for quantum chemistry"                    | 2019 年<br>10 月 | 国<br>外 |

|   |  |   |             |     |
|---|--|---|-------------|-----|
| Hierarchical parallelization of DFTB simulations with DCDFTBMD  | Yoshifumi Nishimura, Hiromi Nakai  | CECAM-Workshop "Thinking outside the box - beyond machine learning for quantum chemistry" | 2019 年 10 月 | 国 外 |
| バクテリオロドプシンのプロトン貯蔵・放出過程に関する大規模量子的分子動力学シミュレーション   | 竹村俊晃、小野純一、西村好史、中井浩巳  | 第 9 回 CSJ 化学フェスタ 2019   | 2019 年 10 月 | 国 内 |
| 光受容タンパク質の光励起プロトンダイナミクスの研究   | 吉川武司、河本奈々、小野純一、今井みの莉、中井浩巳  | 第 6 回「京」を中核とする HPCI システム利用研究課題成果報告会   | 2019 年 11 月 | 国 内 |
| バクテリオロドプシンのプロトン貯蔵・放出過程に関する DC-DFTB-MD シミュレーション  | 竹村俊晃、小野純一、西村好史、中井浩巳  | 第 33 回分子シミュレーション討論会   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| Mg-MOF-74 による二酸化炭素固定化反応の DFTB-MD, MetaD シミュレーション  | 土屋佑太、周建斌、Aditya Wibawa Sakti、中井浩巳  | 第 33 回分子シミュレーション討論会   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| Microscopic mechanism of diffusion processes in dilute electrolyte solutions for sodium-ion batteries | Junichi Ono, Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai  | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| Density-Functional Tight-Binding Study on Oxygen Vacancy Diffusion in Ceria Systems                   | Aditya Wibawa Sakti, Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai  | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| Reversible sodium metal electrodes: Is fluorine an essential interphasial component?                  | Kyosuke Doi, Yuki Yamada, Masaki Okoshi, Junichi Ono, Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai, Atsuo Yamada | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)   | 2019 年 12 月 | 国 内 |

|   |  |   |                |    |
|---|--|---|----------------|----|
| Machine-Learned Kinetic Energy Functional in Isolated Systems and its Combination with Orbital-Free Density Functional Theory | Junji Seino,<br>Ryo Kageyama,<br>Mikito Fujinami,<br>Yasuhiro Ikabata,<br>Hiromi Nakai | Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 量子コンピュータによる量子化学計算   | 高梨倫哉、吉川武司、中井浩巳   | 第 9 回量子化学スクール                             | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| バクテリオロドプシンのプロトン貯蔵・放出過程に関する DC-DFTB-MD シミュレーション  | 竹村俊晃、小野純一、西村好史、中井浩巳  | 第 9 回量子化学スクール                             | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| Python による量子化学計算  | 田嶋一輝、吉川武司、中井浩巳   | 第 9 回量子化学スクール                             | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| Mg-MOF-74 による二酸化炭素固定化反応の DFTB-MD, MetaD シミュレーション  | 土屋佑太、周建斌、Aditya Wibawa Sakti、中井浩巳  | 第 9 回量子化学スクール                             | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| ハイスループット・シミュレーションに向けた MD 計算の自動化   | 清水伊織、Aditya Wibawa Sakti、藤波美起登、中井浩巳  | 第 9 回量子化学スクール                             | 2019 年<br>12 月 | 国内 |

## (c) 招待講演

| 発表した成果（発表題目）   | 発表者氏名 | 発表した場所（学会等名）   | 発表した時期   | 国内・外の別 |
|--|-------|--|----------|--------|
| Selected coupled-cluster and stochastic perturbation theory                  | 天能精一郎 | New Frontiers in Electron Correlation Workshop   | 2019年6月  | 国外     |
| Full coupled-cluster reduction for strongly correlated electrons             | 天能精一郎 | 9th Molecular Quantum Mechanics Conference (MQM2019)   | 2019年6月  | 国外     |
| Explicitly correlated F12 theory on modern electronic structure calculations | 天能精一郎 | 10th Triennial Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ISTCP2019)            | 2019年7月  | 国外     |
| Full coupled-cluster reduction for strongly correlated electrons             | 天能精一郎 | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019年9月  | 国外     |
| Selected coupled-cluster for strong electron correlation                     | 天能精一郎 | Workshop on Strongly Correlated Electrons  | 2019年10月 | 国外     |

|  |  |   |             |     |
|--|--|---|-------------|-----|
| Materials design of hole-transporting materials for perovskite solar cells                   | T. Nakajima, T. Matsuoka                         | Asia-Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry 2019                           | 2019 年 10 月 | 国 外 |
| 京を利用した第一原理計算とマテリアルズ・インフォマティクスによる新材料設計  | 中嶋隆人   | 高分子同友会勉強会   | 2019 年 7 月  | 国 内 |
| スーパーコンピュータを利用した第一原理シミュレーションによる新材料設計  | 中嶋隆人   | 新化学技術推進協会 先端化学・材料技術 部会講演会   | 2019 年 5 月  | 国 内 |
| スーパーコンピュータを利用した分子シミュレーションとインフォマティクスによる新材料設計  | 中嶋隆人   | “AI と有機合成化学” 第 4 回公開講演 会  | 2020 年 2 月  | 国 内 |
| 分析・解析技術としての量子化学シミュレーションとインフォマティクス～NMR を中心に   | 中嶋隆人   | 理研シンポジウム 第 20 回 分析・解析 技術と化学の最先端   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| 驚くべきスパコンの世界-その活用と未来展望-   | 中嶋隆人   | 量子科学技術研究開 発機構学術情報流通 講座  | 2019 年 11 月 | 国 内 |
| シミュレーションとインフォマティクスの融合による新材料設計 - 富岳に向けて-  | 中嶋隆人   | 第 5 回キャタリスト インフォマティクス シンポジウム  | 2019 年 11 月 | 国 内 |
| 第一原理計算とスーパーコンピュータによる新材料設計  | 中嶋隆人   | 開拓プロジェクト 「階層縦断的アプ ローチによる革新的光 エネルギー変換系の 開拓」第 1 回シンポ ジウム  | 2019 年 4 月  | 国 内 |
| Post Lithium Ion Batteries: Characterization of Phosphorous and Tin for Potassium-ion Anodes | Saeid ARABNEJAD, Megumi KOJIMA, Koichi YAMASHITA | International Conference on Material Strength and Applied Mechanics (MSAM 2019) (Kiev, Ukraine) | 2019 年 5 月  | 国 外 |

|  |  |   |             |    |
|--|--|---|-------------|----|
| Post Lithium Ion Batteries: Theoretical Characterization of Phosphorous and Tin for Potassium-ion Anodes           | Saeid ARABNEJAD, Megumi KOJIMA, Koichi YAMASHITA   | EMN Amsterdam Meeting 2019 : Energy Storage Materials (Amsterdam, The Netherland)   | 2019 年 6 月  | 国外 |
| Charge Carrier Trapping at Surface Defects and Optical Properties of Perovskites                                   | Koichi Yamashita                                   | 2019 MRS Spring Meeting & Exhibit Symposium ES15: Fundamental Understanding of the Multifaceted Optoelectronic Properties of Halide Perovskites | 2019 年 4 月  | 国外 |
| Entropy Promotes Charge Separation in Bulk Heterojunction Organic Photovoltaics                                    | Koichi Yamashita                                   | The 24th International Workshop on QUANTUM SYSTEMS IN CHEMISTRY, PHYSICS, AND BIOLOGY (QSCP-XXIV) (Odessa, Ukraine)                             | 2019 年 8 月  | 国外 |
| Electronic Structures of Doped BaTaO <sub>2</sub> N: A DFT Study & Carrier Relaxation Time of BaTaO <sub>2</sub> N | Koichi Yamashita, Hiroki Iriguchi, Masanori Kaneko | 5th EMN Meeting on Computation and Theory   | 2019 年 11 月 | 国外 |
| DFT Studies on Li-Ions Around Electrode-Solid Electrolyte Interfaces via Efficient Structure Search Techniques     | 館山佳尚   | 2019 MRS Spring Meeting and Exhibit   | 2019 年 4 月  | 国外 |

|  |             |   |                |    |
|--|-------------|---|----------------|----|
| Approaches and Challenges in Finding Promising Novel Solid Electrolytes for All-Solid-State Battery Application by Materials Simulations and Machine Learning Techniques | Randy Jalem | 44th NIMS-MADIS Open Seminar Series   | 2019 年<br>6 月  | 国内 |
| 第一原理計算からみた蓄電池界面のイオン・電子状態   | 館山佳尚        | 第 74 回固体イオニクス研究会  | 2019 年<br>7 月  | 国内 |
| DFT sampling approach of interface and surface processes in battery and catalyst   | 館山佳尚        | CPMD Meeting 2019   | 2019 年<br>7 月  | 国外 |
| DFT studies on ionic and electronic states around electrode/solid-electrolyte interfaces via efficient structure search techniques                                       | 館山佳尚        | 2nd World conference on Solid Electrolytes for Advanced Applications: Garnets and Competitors | 2019 年<br>9 月  | 国外 |
| 第一原理計算と反応速度論の融合による触媒活性の理論的予測   | 石川敦之        | 第 124 回触媒討論会  | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| DFT Sampling Studies on Interface Ionics at Disordered Heterogeneous Solid-Solid Interfaces  | 館山佳尚        | 2nd Asian Workshop on First-Principles Electronic structure Calculations (ASIAN-22)           | 2019 年<br>10 月 | 国外 |
| Smart and Data-efficient Exploration of Novel Solid Electrolytes by DFT and Machine Learning   | Randy Jalem | NIMS WEEK 2019  | 2019 年<br>10 月 | 国外 |

|  |             |   |             |     |
|--|-------------|---|-------------|-----|
| Computational and Theoretical Electrochemistry of Li-ion States around Electrode / Solid Electrolyte Interfaces                            | 館山佳尚        | 10th Asian Conference on Electrochemical Power Sources 2019 (ACEPS10) | 2019 年 11 月 | 国 外 |
| Density functional theory-based microkinetic analysis of oxidative coupling of methane catalyzed by pure and lithium-doped magnesium oxide | 石川敦之        | The 5th EMN Meeting on Computation and Theory                         | 2019 年 11 月 | 国 外 |
| DFT and informatics approaches for finding novel solid electrolytes for all-solid-state batteries  | Randy Jalem | 第 29 回日本 MRS 年次大会   | 2019 年 11 月 | 国 内 |
| エネルギー物質科学と界面イオニクス・エレクトロニクス   | 館山佳尚        | 第 58 回玉城嘉十郎教授記念公開学術講演会  | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| 第一原理酸化還元反応シミュレーション   | 館山佳尚        | 第 33 回分子シミュレーション討論会   | 2019 年 12 月 | 国 内 |
| 「京」を用いた蓄電池の計算科学研究  | 館山佳尚        | 高分子同友会勉強会   | 2020 年 1 月  | 国 内 |
| 「京」コンピュータを駆使した第一原理 MD 法による電解液開発支援  | 館山佳尚        | 第 4 回元素戦略シンポジウム   | 2020 年 2 月  | 国 内 |
| 計算分子技術 Red Moon 法による二次電池電解液開発に向けた理論的研究   | 長岡正隆        | 日本物理学会 2019 年秋季大会 (岐阜大学)  | 2019 年 9 月  | 国 内 |

|   |            |   |                |    |
|---|------------|---|----------------|----|
| Toward Understanding Reaction Mechanism of Enzymatic Catalyzation: A Treatment using Red Moon Methodology | M. Nagaoka | The 10th Toyota RIKEN International Workshop on Science of Life Phenomena Woven by Water and Biomolecules (Toyota Physical and Chemical Research Institute) | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| A Computational Molecular Technology for Complex Chemical Reaction Systems: Red Moon Methodology          | M. Nagaoka | Twenty-fourth International Workshop on Quantum Systems in Chemistry, Physics, and Biology (QSCP-XXIV), (Odessa, Ukraine)                                   | 2019 年<br>8 月  | 国外 |
| A Computational Molecular Technology for Complex Chemical Reaction Systems: Red Moon Methodology          | M. Nagaoka | APATCC2019 (Abercrombie Business School of the University of Sydney)  | 2019 年<br>10 月 | 国外 |
| 二次電池用電解液の開発に向けた理論化学的研究: 計算分子技術 Red Moon 法の適用  | 長岡正隆       | 新電池構想部会「電解質の革新とナトリウムイオン蓄電池の新展開」(AP 横浜)  | 2019 年<br>9 月  | 国内 |
| 化学反応エルゴードグラフィに向けた自由エネルギー面探索: 溶液中の構造最適化と振動解析   | 北村勇吉       | 化学反応経路探索のニューフロンティア (SRPS2019) (名古屋大学)   | 2019 年<br>9 月  | 国内 |

|  |   |   |                |        |
|--|---|---|----------------|--------|
| 分子動力学計算と NMR 測定による<br>両親媒性分子集合体の溶液化学<br>Solution chemistry of<br>amphiphilic molecular assemblies<br>by molecular dynamics<br>calculations and NMR<br>measurements | 吉井範行                                      | 第 42 回溶液化学シ<br>ンポジウム  | 2019 年<br>10 月 | 国<br>内 |
| Molecular dynamics study of<br>thermodynamic stability of a<br>polymer solution; non-solvent<br>induced phase separation of<br>PVDF/NMP/water                      | T. Taddese,<br>M. Kitabata,<br>S. Okazaki | The 5th<br>International<br>Conference on<br>Molecular<br>Simulation, Lotte<br>Hotel Jeju (Korea) | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| All-atom Molecular Dynamics<br>Study of Impact Fracture of<br>Glassy Polymers  | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki    | The 5th<br>International<br>Conference on<br>Molecular<br>Simulation, Lotte<br>Hotel Jeju (Korea) | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| 高分子材料の大規模分子動力学計<br>算の現状  | 岡崎 進                                      | 第 28 回ポリマー材<br>料フォーラム, ウィ<br>ンクあいち  | 2019 年<br>11 月 | 国<br>内 |
| All-Atomistic Molecular Dynamics<br>Study of Impact Fracture of<br>Glassy<br>Polymers  | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>S. Okazaki    | Materials Research<br>Meeting 2019, 横浜<br>シンポジア   | 2019 年<br>12 月 | 国<br>内 |
| 分子動力学シミュレーションによ<br>るクラスレートハイドレートの生<br>成・分解と阻害剤の研究  | 矢ヶ崎琢磨                                     | 第 55 回 GH 研究会   | 2019 年<br>8 月  | 国<br>内 |
| 水と氷の準安定状態の相図   | 矢ヶ崎琢磨                                     | シンポジウム「氷の<br>分子科学 II」(埼玉<br>大学)   | 2019 年<br>10 月 | 国<br>内 |
| 水, 氷, クラスレートハイドレート<br>の基礎科学とその工学的可能性   | 田中秀樹                                      | 第 65 回熱エネルギー<br>有効利用研究会   | 2019 年<br>11 月 | 国<br>内 |

|  |   |   |                |    |
|--|---|---|----------------|----|
| 水, 氷, 包接水和物の安定性と熱物性  | 田中秀樹  | スーパーコンピュータワークショップ<br>2019   | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
| 固体表面で生じる熱い氷  | 松本正和  | PCoMS シンポジウム<br>& 計算物質科学スーパーコンピュータ共用事業報告会   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| A new strategy for reaction path concept and dynamics effects                                  | Tetsuya Taketsugu, Takuro Tsutsumi, and Yuriko Ono                              | The 23rd International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE23) | 2019 年<br>6 月  | 国外 |
| Methane to Ethane Conversion by Liquid Metal Indium: A DFT Mechanistic Study                   | Y. Ohtsuka, A. Nakayama, Y. Nishikawa, H. Ogihara, I. Yamanaka, and J. Hasegawa | The 23rd International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE23) | 2019 年<br>6 月  | 国外 |
| Reaction pathways and dynamics of the excited-state branching reaction of stilbene derivatives | T. Taketsugu  | International Symposium on Ultrafast Molecular Dynamics (UMD2019) (Sendai)                  | 2019 年<br>7 月  | 国内 |
| 理論化学の視点からの触媒 (Computational catalysis: Theory, Models and Applications)                        | 高 敏   | XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (QRS2019 Workshop) (Saitama)       | 2019 年<br>7 月  | 国内 |
| A DFT Mechanistic Study of Dehydrogenative Methane Coupling by Liquid Metal Indium             | Y. Ohtsuka, A. Nakayama, Y. Nishikawa, H. Ogihara, I. Yamanaka, and J. Hasegawa | 7th international symposium of Institute for Catalysis                                      | 2019 年<br>7 月  | 国外 |

|   |   |   |               |    |
|---|---|---|---------------|----|
| メタン脱水素カップリングにおける液体インジウムの触媒機構に関する理論的研究   | 長谷川淳也   | 第 124 回触媒討論会<br>(長崎大学)  | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| 二酸化炭素の有効利用に向けた理論と実験のインタープレイ   | 長谷川淳也   | 文部科学省 ポスト<br>「京」重点課題 5 連<br>携推進ワークショップ<br>サブ課題 C エネ<br>ルギー・資源の有効<br>利用 - 化学エネル<br>ギー (東京)               | 2019 年<br>9 月 | 国内 |
| Reaction path concept: Intrinsic Reaction Coordinate, Anharmonic Downward Distortion Following, and Ab Initio MD  | Tetsuya Taketsugu,<br>Takuro Tsutsumi,<br>Shuichi Ebisawa, and<br>Yuriko Ono  | The 9th<br>Asia-Pacific<br>Association of<br>Theoretical and<br>Computational<br>Chemists<br>(APATCC-9) | 2019 年<br>9 月 | 国外 |
| Theoretical Investigation for the Mechanism of Copolymerization of CO <sub>2</sub> and Cyclohexene Oxide Catalyzed by Novel Bifunctional Al(III) Porphyrin Catalyst | Manussada Ratanasak,<br>Jingyuan Deng,<br>Hideki Tokuda,<br>Chihiro Maeda,<br>Tadashi Ema,<br>Kyoko Nozaki,<br>Jun-ya<br>Hasegawa | The 9th<br>Asia-Pacific<br>Association of<br>Theoretical and<br>Computational<br>Chemists<br>(APATCC-9) | 2019 年<br>9 月 | 国外 |
| Surface model calculation database for predicting catalytic activity: An application to methane steam reforming   | Masato Kobayashi,<br>Haruka Onoda,<br>Tetsuya Taketsugu   | The 9th<br>Asia-Pacific<br>Association of<br>Theoretical and<br>Computational<br>Chemists<br>(APATCC-9) | 2019 年<br>9 月 | 国外 |

|   |              |   |                |    |
|---|--------------|---|----------------|----|
| Reaction path concept and dynamics effects: ab initio approach  | T. Taketsugu | ICReDD workshop: International & Interdisciplinary Workshop on Chemical Reaction Dynamics - Mathematics Informatics, and Physics Meet Chemistry (Sapporo) | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| 量子化学計算に基づくダイナミクス研究の展開   | 武次徹也         | 日本化学会 2019 青森地区講演会 (弘前)   | 2019 年<br>10 月 | 国内 |
| Excited-state branching reaction of stilbene derivatives  | T. Taketsugu | Theoretical and High Performance Computational Chemistry 2019 (ICT-HPCC19) (Guiyang, China)   | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| Theoretical elucidation of photo-reaction mechanism: applications to stilbene derivatives   | T. Taketsugu | The 15th Nanjing University-Hokkaido University-NIMS Joint Symposium (Nanjing, China)   | 2019 年<br>11 月 | 国外 |
| Theoretical Analyses of Condensed-Phase Chemical Reactions Based on Divide-and-Conquer Density-Functional Tight-Binding Molecular Dynamics (DC-DFTB-MD) Simulations | 中井浩巳         | 第 3 5 回化学反応討論会  | 2019 年<br>6 月  | 国内 |
| Relativistic density functional theory with picture-change corrected electron density   | Hiromi Nakai | 10th congress of the International Society of Theoretical Chemical Physics (ISTCP-X)  | 2019 年<br>7 月  | 国外 |

|  |  |  |               |        |
|--|--|--|---------------|--------|
| Orbital-free density functional theory calculation combined with semi-local machine-learned kinetic energy density functional  | J. Seino,<br>R. Kageyama,<br>M. Fujinami,<br>Y. Ikabata,<br>H. Nakai                                 | 2nd Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development (GFMAT-2)                | 2019 年<br>7 月 | 国<br>外 |
| インフォマテクスを導入した密度汎関数理論の開発  | 清野淳司   | 第 29 回格子欠陥フォーラム「格子欠陥とマテリアルズ・インフォマテクス」  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| Clarification of proton transfer reactions in photoreceptive proteins using large-scale quantum molecular dynamics simulations | Junichi Ono,<br>Chika Okada,<br>Yoshifumi<br>Nishimura,<br>Hiromi Nakai                              | 第 57 回日本生物物理学会年会   | 2019 年<br>9 月 | 国<br>内 |
| How Can Artificial Intelligence Help Quantum Chemists?   | Hiromi Nakai   | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Machine-learned electron correlation model for accurate reproduction of correlation energy at the basis-set limit              | Yasuhiro<br>Ikabata,<br>Takuro<br>Nudejima,<br>Junji Seino,<br>Takeshi<br>Yoshikawa,<br>Hiromi Nakai | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |

|  |   |  |             |    |
|--|---|--|-------------|----|
| Density-Functional Tight-Binding Metadynamics Study of Oxy-Carbon Diffusion on (100)- $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Surface | Aditya Wibawa Sakti,<br>Chien-Pin Chou, Hiromi Nakai                            | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年 9 月  | 国外 |
| Large-scale quantum-mechanical molecular dynamics simulations for the long-distance proton transfer in bacteriorhodopsin               | Junichi Ono, Chika Okada, Yoshifumi Nishimura, Hiromi Nakai                     | The Ninth Conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists (APATCC 2019) | 2019 年 9 月  | 国外 |
| Semi - local machine-learned kinetic energy density functional with third-order gradients of electron density                          | Hiromi Nakai  | CECAM-Workshop "Thinking outside the box - beyond machine learning for quantum chemistry"                    | 2019 年 10 月 | 国外 |
| GPU-Accelerated Large-Scale Excited-State Simulation Based on Divide-and-Conquer Time-Dependent Density-Functional Tight-Binding       | Takeshi Yoshikawa   | 8th ADAC Workshop  | 2019 年 10 月 | 国内 |
| Machine-Learned Correlation Model for Accurate and Efficient Computation of Correlation Energy   | Yasuhiro Ikabata, Takuro Nudejima, Junji Seino, Takeshi Yoshikawa, Hiromi Nakai | The 5th International Conference on Molecular Simulation (ICMS2019)  | 2019 年 11 月 | 国外 |

|                           |      |                   |                |    |
|---------------------------|------|-------------------|----------------|----|
| 大規模量子化学計算の開発と量子計算への適用に向けて | 吉川武司 | 量子化学と量子情報・量子生命の接点 | 2019 年<br>12 月 | 国内 |
|---------------------------|------|-------------------|----------------|----|

## 2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

| 掲載した論文（発表題目）  | 発表者氏名  | 発表した場所（学会誌・雑誌等名）   | 発表した時期         | 国内・外の別 |
|---|--|--|----------------|--------|
| Effect of Molecular Orientational Correlations on Solvation Free Energy Computed by Reference Interaction Site Model Theory | S.Tanimoto,<br>N.Yoshida,<br>天能精一郎、<br>H. Nakano | J. Chem. Inf. Model., <b>59</b><br>3770-3781 (2019)  | 2019 年<br>8 月  | 国外     |
| Stochastic perturbation theory in a limited configuration space   | B.Ladoczki,<br>天能精一郎                             | J. Chem. Phys., <b>151</b><br>114113 (2019)  | 2019 年<br>9 月  | 国外     |
| Second-order perturbation theory with spin-symmetry projected Hartree-Fock  | T. Tsuchimoch,<br>天能精一郎                          | J. Chem. Theor. Comp., <b>15</b> 6688<br>(2019).   | 2019 年<br>10 月 | 国外     |
| Trajectory surface hopping molecular dynamics simulation by spin-flip time-dependent density functional theory              | N. Minezawa,<br>T. Nakajima                      | J. Chem. Phys. <b>150</b> ,<br>204120 (2019).<br>10.1063/1.5096217   | 2019 年<br>5 月  | 国外     |
| Electron dynamics method using a locally projected group diabatic Fock matrix for molecules and aggregates                  | T. Yonehara,<br>T. Nakajima                      | Chem. Phys. <b>528</b> ,<br>110508 (2020).<br>10.1016/j.chemphys.<br>.2019.110508  | 2020 年<br>1 月  | 国外     |
| Excited-State Dynamics in NTChem  | T. Yonehara,<br>N. Minezawa,<br>T. Nakajima      | in Molecular Spectroscopy: A Quantum Chemistry Approach, edited by Y. Ozaki, M. J. Wojcik, J. Popp (Willey), 43-78 (2019). | 2019 年<br>5 月  | 国外     |

|  |  |   |               |        |
|--|--|---|---------------|--------|
| Quantum mechanical/molecular mechanical trajectory surface hopping molecular dynamics simulation by spin-flip time-dependent density functional theory | N. Minezawa,<br>T. Nakajima  | J. Chem. Phys. <b>152</b> ,<br>024119 (2020).   | 2020 年<br>1 月 | 国<br>外 |
| Entropy Promotes Charge Separation in Bulk Heterojunction Organic Photovoltaics  | E. Kawashima,<br>M. Fujii,<br>K. Yamashita   | J. Photochemistry & Photobiology A: Chemistry, <b>382</b> ,<br>111875 (6 pages)<br>(2019) | 2019 年<br>5 月 | 国<br>外 |
| Importance of Side-Chains on Molecular Characteristics of Interacting Organic Molecules  | K. Mishima,<br>K. Yamashita  | ACS Omega, <b>4</b> ,<br>10396–10404 (2019)   | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| First-principles approach to the first step of metal - phosphine bond formation to synthesize alloyed quantum dots using dissimilar metal precursor    | J. Nagakubo,<br>T. Nishihashi,<br>K. Mishima,<br>K. Yamashita  | Chem. Phys. <b>528</b> ,<br>110512 (2020)   | 2020 年<br>1 月 | 国<br>外 |
| Scaling Relation of Oxygen Reduction Reaction Intermediates at Defective TiO <sub>2</sub> Surfaces   | Yoshiyuki<br>Yamamoto, Shusu<br>ke<br>Kasamatsu, Osam<br>u Sugino                                      | J. Phys. Chem. c<br>2019, <b>123</b> , 32,<br>19486–19492                                 | 2019 年<br>7 月 | 国<br>外 |
| Reaction Energy Benchmarks of Hydrocarbon Combustion by Gaussian Basis and Plane Wave Basis Approaches   | Atsushi<br>Ishikawa,<br>Yoshitaka<br>Tateyama  | J. Comp. Chem. <b>40</b> ,<br>1866–1873   | 2019 年<br>4 月 | 国<br>外 |
| Electrochemical properties of fluorinated boron-doped diamond electrodes via fluorine-containing plasma treatment                                      | Chizu<br>Yamaguchi,<br>Keisuke<br>Natsui, Shota<br>Iizuka,<br>Yoshitaka<br>Tateyama,<br>Yasuaki Einaga | Phys. Chem. Chem.<br>Phys. <b>21</b> , 13788  | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |

|   |  |   |                |        |
|---|--|---|----------------|--------|
| Theoretical picture of positive electrode / solid electrolyte interface in all-solid-state battery from electrochemistry and semiconductor physics viewpoints                   | Yoshitaka<br>Tateyama, Bo<br>Gao, Randy<br>Jalem, Jun<br>Haruyama  | Curr. Opin.<br>Electrochem. <b>17</b> ,<br>149-157    | 2019 年<br>6 月  | 国<br>外 |
| On principal features of organic electrolyte molecules in lithium ion battery performance   | Takao Tsuneda,<br>Yoshitaka<br>Tateyama  | Phys. Chem. Chem.<br>Phys. <b>21</b> ,<br>22990-22998 | 2019 年<br>10 月 | 国<br>外 |
| Machine learning prediction of coordination energies for alkali group elements in battery electrolyte solvents  | Atsushi<br>Ishikawa,<br>Keitaro<br>Sodeyama,<br>Yasuhiko<br>Igarashi,<br>Tomofumi<br>Nakayama,<br>Yoshitaka<br>Tateyama,<br>Masato Okada | Phys. Chem. Chem.<br>Phys. <b>21</b> ,<br>26399-26405 | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| Li <sup>+</sup> Transport Mechanism at the Heterogeneous Cathode/Solid Electrolyte Interface in an All-Solid-State Battery via the First-Principles Structure Prediction Scheme | Bo Gao, Randy<br>Jalem, Yanming<br>Ma, Yoshitaka<br>Tateyama   | Chem. Mater. <b>32</b> ,<br>85-96                     | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| Possible high-potential ilmenite type Na <sub>1</sub> MO <sub>3</sub> (M = V-Ni) cathodes realized by dominant oxygen redox reaction  | M. H. N.<br>Assadi,<br>Masashi Okubo,<br>Atsuo Yamada,<br>Yoshitaka<br>Tateyama  | Phys. Rev. Mater.<br><b>4</b> , 015401                | 2020 年<br>1 月  | 国<br>外 |

|   |   |   |               |        |
|---|---|---|---------------|--------|
| Li-ion transport at the interface between a graphite anode and Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> solid electrolyte interphase: ab initio molecular dynamics study                 | Takeshi Baba,<br>Keitaro Sodeyama,<br>Yoshiumi Kawamura and<br>Yoshitaka Tateyama                           | Phys. Chem. Chem. Phys<br>DOI:<br>10.1039/c9cp06608j  | 2020 年<br>2 月 | 国<br>外 |
| Microscopic Origin of the Solid Electrolyte Interphase Formation in Fire Extinguishing Electrolyte: Formation of Pure Inorganic Layer in Highly Salt Concentration              | A. Bouibes,<br>N. Takenaka,<br>S. Saha,<br>M. Nagaoka   | The Journal of Physical Chemistry Letters,<br><b>10</b> , 5949–5955,<br>(2019)                            | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Computational Molecular Technology Toward Macroscopic Chemical Phenomena: Red Moon Methodology and its Related Applications   | M. Nagaoka,<br>M. Takayanagi,<br>Y. Suzuki,<br>K. Matsumoto,<br>S.K. Sankaran,<br>P. Uppula,<br>Y. Kitamura | Molecular Technology, Volume 3: Materials Innovation, (Eds., H. Tamamoto, T. Kato), P. 201–234,<br>(2019) | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |
| Vibrational Spectroscopy in Solution Through Perturbative Ab Initio Molecular Dynamics Simulations  | C. Bistafa,<br>Y. Kitamura,<br>M. Martins-Costa,<br>M. Nagaoka,<br>M. Ruiz-Lopez                            | Journal of Chemical Theory and Computation, <b>15</b> , 4615–4622, (2019)                                 | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Electrode Polarization Effects on Interfacial Kinetics of Ionic Liquid at Graphite Surface: An Extended Lagrangian-based Constant Potential Molecular Dynamics Simulation Study | T. Inagaki,<br>M. Nagaoka   | Journal of Computational Chemistry, <b>40</b> (24), 2131–2145, (2019)                                     | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |

|   |  |   |               |        |
|---|--|---|---------------|--------|
| Impact of Cis- versus Trans- Configuration of Butylene Carbonate Electrolyte on Microscopic Solid Electrolyte Interphase Formation Processes in Lithium-Ion Batteries                                       | K. Miyazaki,<br>N. Takenaka,<br>T. Fujie,<br>E. Watanabe,<br>Y. Yamada,<br>A. Yamada,<br>M. Nagaoka    | ACS Applied Materials & Interfaces, <b>11</b> (17), 15623-15629 (2019)  | 2019 年<br>4 月 | 国<br>外 |
| Development of dissociative force field for all-atomistic molecular dynamics calculation of fracture of polymers  | K. Fujimoto ,<br>R. S. Payal,<br>T. Hattori,<br>. Shinoda,<br>M. Nakagaki,<br>S. Sakaki,<br>S. Okazaki | J. Comput. Chem. 2019, <b>40</b> , 2571-2576.<br>DOI:<br>10.1002/jcc.26034  | 2019 年<br>7 月 | 国<br>外 |
| Performance evaluation of the MODYLAS application on modern multi-core and many-core environments   | S. Ohshima,<br>S. Suzuki,<br>T. Sakashita,<br>M. Ogino,<br>T. Katagiri,<br>Y. Andoh,                   | Proceedings - 2019 IEEE 33rd International Parallel and Distributed Processing Symposium Workshops, IPDPSW 2019, 787-796.<br>DOI:<br>10.1109/IPDPSW.2019.00129. | 2019 年<br>5 月 | 国<br>外 |
| Structure of Hydrated Crystal (Lc), Tilted Gel ( $L\beta'$ ), and Liquid Crystal ( $L\alpha$ ) Phases of Linear Alkylbenzene Sulfonate (LAS) Studied by X-ray Diffraction and Molecular Dynamics Simulation | K. Takeda,<br>Y. Andoh,<br>W. Shinoda,<br>S. Okazaki   | Langmuir, <b>35</b> , 9011-9019.  | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Molecular Behavior of Linear Alkylbenzene Sulfonate in Hydrated Crystal, Tilted Gel, and Liquid Crystal Phases Studied by Molecular Dynamics Simulation   | K. Takeda,<br>Y. Andoh,<br>W. Shinoda,<br>S. Okazaki   | Langmuir, <b>35</b> , 10877-10884.  | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |

|   |   |   |               |        |
|---|---|---|---------------|--------|
| Hydrogen Permeation in Hydrated Perfluorosulfonic Acid Polymer Membranes: Effect of Polymer Crystallinity and Equivalent Weight   | K. Takeuchi,<br>An-Tsung Kuo,<br>T. Hirai,<br>T. Miyajima,<br>S. Urata,<br>S. Terazono,<br>S. Okazaki, W. Shinoda | The Journal of Physical Chemistry C, <b>123</b> , 20628–20638.            | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |
| Molecular dynamics study of solubilization of cyclohexane, benzene, and phenol into mixed micelles composed of sodium dodecyl sulfate and octaethylene glycol monododecyl ether | K. Takeda,<br>K. Fujimoto,<br>N. Yoshii,<br>S. Okazaki  | J. Comput. Chem. <b>40</b> (2019), 2722–2729<br>DOI:<br>10.1002/jcc.26047 | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |
| Large-scale Molecular Dynamics Simulation of Perfluorosulfonic Acid Membranes: Remapping Coarse-Grained to All-Atomistic Simulations  | A. Kuo,<br>Y. Miyazaki,<br>C. Jang,<br>T. Miyajima,<br>S. Urata,<br>S. O. Nielsen,<br>S. Okazaki,<br>W. Shinoda   | Polymer, <b>181</b> (2019) 121766.  | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |
| All-atom molecular dynamics study of impact fracture of glassy polymers. I: Molecular mechanism of brittleness of PMMA and ductility of PC                                      | K. Fujimoto,<br>Z. Tang,<br>W. Shinoda,<br>S. Okazaki   | Polymer, <b>178</b> (2019) 121570.  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Molecular mechanism of material deformation and failure in butadiene rubber: Insight from all-atom molecular dynamics simulation using a bond breaking potential model          | R. S. Payal,<br>K. Fujimoto,<br>C. Jang,<br>S. Wataru,<br>Y. Takei,<br>H. Shima,<br>K. Tsunoda,<br>S. Okazaki     | POLYMER, <b>170</b> (2019), 113–119                                       | 2019 年<br>4 月 | 国<br>外 |

|   |   |   |               |        |
|---|---|---|---------------|--------|
| Fast multipole method for three dimensional systems with periodic boundary condition in two directions  | N. Yoshii,<br>Y. Andoh,<br>S. Okazaki                     | J Comput Chem.<br>2020;1-9.<br><a href="https://doi.org/10.1002/jcc.26141">https://doi.org/10.1002/jcc.26141</a>  | 2020 年<br>1 月 | 国<br>外 |
| Extension of the fast multipole method for the rectangular cells with an anisotropic partition tree structure   | Y. Andoh,<br>N. Yoshii,<br>S. Okazaki                     | J Comput Chem.<br>2020;1-15.<br><a href="https://doi.org/10.1002/jcc.26180">https://doi.org/10.1002/jcc.26180</a> | 2020 年<br>2 月 | 国<br>外 |
| Negative Thermal Expansivity of Ice: Comparison of the Monatomic mW Model with the All-Atom TIP4P/2005 Water Model  | M. M. Huda,<br>T. Yagasaki,<br>M. Matsumoto,<br>H. Tanaka | Crystals <b>9</b> , 248,<br>1-11 (2019).  | 2019 年<br>5 月 | 国<br>外 |
| A Bayesian approach for identification of ice Ih, ice Ic, high density, and low density liquid water with a torsional order parameter                             | M. Matsumoto,<br>T. Yagasaki,<br>H. Tanaka                | J. Chem. Phys. <b>150</b> ,<br>214504, 1-6 (2019).  | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Liquid-liquid separation of aqueous solutions: A molecular dynamics study   | T. Yagasaki,<br>M. Matsumoto,<br>H. Tanaka                | J. Chem. Phys. <b>150</b> ,<br>214506, 1-8 (2019).  | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Formation of hot ice caused by carbon nanobrushes   | T. Yagasaki,<br>M. Matsumoto,<br>H. Tanaka                | J. Chem. Phys. <b>151</b> ,<br>064702, 1-8(2019).   | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| On the role of intermolecular vibrational motions for ice polymorphs I: Volumetric properties of crystalline and amorphous ices                                   | H. Tanaka,<br>T. Yagasaki,<br>M. Matsumoto                | J. Chem. Phys. <b>151</b> ,<br>114501 1-14 (2019).  | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| On the role of intermolecular vibrational motions for ice polymorphs II: Atomic vibrational amplitudes and localization of phonons in ordered and disordered ices | H. Tanaka,<br>T. Yagasaki,<br>M. Matsumoto                | J. Chem. Phys. <b>152</b> ,<br>074501 (2020).   | 2020 年<br>2 月 | 国<br>外 |

|   |  |   |               |        |
|---|--|---|---------------|--------|
| DFT Mechanistic Study on the Complete Oxidation of Ethylene by the Silica-Supported Pt Catalyst: C-C Activation via the Ethylene Dioxide Intermediate | R. Miyazaki,<br>N. Nakatani,<br>S. V. Levchenko,<br>T. Yokoya,<br>K. Nakajima,<br>K. Hara,<br>A. Fukuoka, and<br>J. Hasegawa | J. Phys. Chem. C,<br><b>123</b> , 12706-12715<br>(2019) | 2019 年<br>5 月 | 国<br>外 |
| Adsorption Mediated Tandem Acid Catalyzed Cellulose Hydrolysis by Ortho-substituted Benzoic Acids   | D. P. De<br>Chavez, M. Gao,<br>H. Kobayashi,<br>A. Fukuoka,<br>J. Hasegawa   | Mol. Catal., <b>475</b> ,<br>110459 (2019)              | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Theoretical Study on the Rhodium-Catalyzed Hydrosilylation of C=C and C=O Double Bonds with Tertiary Silane   | L. Zhao,<br>N. Nakatani,<br>Y. Sunada,<br>H. Nagashima,<br>J. Hasegawa   | J. Org. Chem., <b>84</b> ,<br>8552-8561 (2019)          | 2019 年<br>6 月 | 国<br>外 |
| Anharmonic Vibrational Computations with a Quartic Force Field for Curvilinear Coordinates  | Y. Harabuchi,<br>R. Tani,<br>N. DeSilva,<br>B. Njegic,<br>M. S. Gordon,<br>and<br>T. Taketsugu                               | J. Chem. Phys.,<br><b>151</b> , 064104 (2019).          | 2019 年<br>8 月 | 国<br>外 |
| Roles of silver nanoclusters in surface-enhanced Raman spectroscopy   | T. Tsuneda,<br>T. Iwasa, and<br>T. Taketsugu   | J. Chem. Phys.,<br><b>151</b> , 094102 (2019).          | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |
| Theoretical Study on the C-H Activation of Methane by Liquid-Metal Indium: Catalytic Activity of Small Indium Clusters                                | Y. Ohtsuka,<br>Y. Nishikawa,<br>H. Ogiwara,<br>I. Yamanaka,<br>M. Ratanasak,<br>A. Nakayama,<br>J. Hasegawa                  | J. Phys. Chem. A,<br><b>123</b> , 8907-8912<br>(2019)   | 2019 年<br>9 月 | 国<br>外 |

|   |   |   |                |        |
|---|---|---|----------------|--------|
| Observations and theories of quantum effects in proton transfer electrode processes   | K. Sakaushi, A. Lyalin, and T. Taketsugu  | Current Opinion in Electrochemistry, <b>19</b> , 96-105 (2020).               | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| L-cysteine modified acacia gum as a multifunctional binder for lithium-sulfur batteries   | Q. Qi, Y. Deng, S. Gu, M. Gao, J. Hasegawa, G. Zhou, X. Lv, W. Lv, Q-H. Yang,     | ACS Appl. Mater. Interfaces, <b>11</b> , 47956-47962 (2019)                   | 2019 年<br>11 月 | 国<br>外 |
| Single-Phase Borophene on Ir(111): Formation, Structure and Decoupling from the Support   | N. A. Vinogradov, A. Lyalin, T. Taketsugu, A. S. Vinogradov, and A. Preobrajenski | ACS Nano, <b>13</b> , 14511-14518 (2019).                                     | 2019 年<br>12 月 | 国<br>外 |
| Surface adsorption model calculation database and its application to activity prediction of heterogeneous catalysts                   | M. Kobayashi, H. Onoda, Y. Kuroda, and T. Taketsugu                               | J. Comput. Chem. Jap., in press.  | 2020 年<br>2 月  | 国<br>内 |
| 分割統治型密度汎関数強束縛分子動力学(DC-DFTB-MD)法による表面反応シミュレーション: Pt(111)表面上のプロトン拡散   | 中井 浩巳, 西村 好史, Aditya Wibawa Sakti, Tanabat Mudchimo, 周建斌                          | 表面と真空 <b>62 卷 8 号</b> P.486-491 (2019)  | 2019 年<br>4 月  | 国<br>内 |
| Recent Advances in Quantum-Mechanical Molecular Dynamics Simulations of Proton Transfer Mechanism in Various Water-Based Environments | A. Sakti, Y. Nishimura, H. Nakai  | WIREs Computational Molecular Science 2019:e1419<br>DOI:<br>10.1002/wcms.1419 | 2019 年<br>4 月  | 国<br>外 |
| Quantum mechanical molecular dynamics simulations of polaron formation in methylammonium lead iodide perovskite                       | 浦谷 浩輝, 周建斌, 中井 浩巳   | Journal of Computer Chemistry, Japan  | 2019 年<br>8 月  | 国<br>内 |

### 3. プレス発表

| 掲載された成果                             | 発表者氏名                            | 発表メディア                 | 発表時期         | 国内・外の別 |
|-------------------------------------|----------------------------------|------------------------|--------------|--------|
| 複雑な固体材料界面の電子・イオン状態の高精度シミュレーション手法を開発 | 館山佳尚 ,<br>JALEM Randy,<br>GAO Bo | 掲載:日刊産業新聞、<br>NEWSPICK | 2019年<br>11月 | 国内     |

(5) 特許出願状況

委託業務題目「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発」

機関名 大学共同利用機関法人 自然科学研究機構 分子科学研究所

| 業務コード    | 実施年度 | 発明の名称 | 発明者 | 出願登録区分 | 出願番号(出願日) | 出願区分 | 出願国 | 登録番号(登録日) | メモ |
|----------|------|-------|-----|--------|-----------|------|-----|-----------|----|
| 14120014 | 01   | なし    |     |        |           |      |     |           |    |

公開版

「エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、  
利用の新規基盤技術の開発」  
実施計画

平成31年2月7日

大学共同利用機関法人自然科学研究機構  
分子科学研究所

岡崎 進

## 改訂履歴

| 版                         | 項目      | ページ              | 主な改訂内容（概要）  |
|---------------------------|---------|------------------|---|
| 初版<br>平成 28 年 2 月 29 日    |         |                  | 初版発行  |
| 第 2 版<br>平成 29 年 6 月 12 日 | —       | —                | 諮問委員会のご指摘、実験研究者からの意見等を反映し更新   |
|                           | 改訂履歴    | —                | 新規追加  |
|                           | 1. (1)  | 1                | 表 1-1 国内外の主な関連プロジェクトを最新情報に更新  |
|                           | 1. (2)  | 3                | サブ課題 B を諮問委員会のご指摘、実験研究者からの意見等を反映し更新                                 |
|                           | 1. (3)  | 5～6              | サブ課題 B を諮問委員会のご指摘、実験研究者からの意見等を反映し更新                                 |
|                           | 1. (3)  | 6～7              | サブ課題 C の計画を具体化  |
|                           | 1. (4)  | 9                | エネルギーの変換・貯蔵でサブ課題 B の更新に対応し訂正  |
|                           | 1. (5)  | 11～18            | サブ課題 A は具体化・詳細化、サブ課題 B は諮問委員会のご指摘、実験研究者からの意見等を反映し更新、サブ課題 C は具体化・詳細化 |
|                           | 1. (6)  | 19               | 図 1-2 推進体制を最新情報に更新  |
|                           | 1. (6)  | 20               | 図 1-3 運営体制に担当者氏名、所属を追加  |
|                           | 1. (6)  | 23～27            | 表 1-2 平成 29 年度以降の実施体制を最新情報に更新                                       |
|                           | 1. (7)  | 33               | 平成 29 年度分を配分量に更新  |
|                           | 2-2.    | 47～55            | サブ課題 B エネルギーの変換・貯蔵 - 電気エネルギーを諮問委員会のご指摘、実験研究者からの意見等を反映し更新            |
|                           | 2-3.(3) | 59～61            | 目標・期待される成果を具体化  |
|                           | 2-4-4.  | 66               | stat-CPMD を最新情報に更新  |
|                           | 別紙 1    | 72～73            | 平成 29 年度の体制に変更  |
|                           | 別紙 2    | 74               | 所要経費区分を「委託契約事務処理要領の改正（H29 年 3 月 17 日付け）」に対応し変更                      |
|                           | 別紙 3    | 75               | 平成 29 年度分を配分量に更新  |
| 別紙 4                      | 76      | 平成 29 年度分を配分量に更新 |   |
| 別紙 5                      | 77～80   | 最新情報に更新          |   |
| 第 3 版                     | —       | —                | 中間評価指摘事項を受け更新   |

|                           |          |            |  |
|---------------------------|----------|------------|--|
| 平成 29 年 12 月 22 日         | 1. (3)   | 8          | 図 1-1 ポスト「京」でなければできない研究をより具体化・詳細化                        |
|                           | 1. (5)   | 10         | 人工知能技術とシミュレーションの融合を作成、それに伴い 1. 実施概要の以降の項番を変更             |
|                           | 1. (7)   | 19         | 図 1-2 推進体制を最新情報に更新                                       |
|                           | 1. (7)   | 21         | 図 1-4 研究開発における連携についてを最新情報に更新                             |
|                           | 2-4-5    | 68         | 表 2-4-1 基盤アプリ設計開発を最新情報に更新                                |
|                           | 4.       | 72~80      | 中間評価時の指摘事項への対応状況を作成                                      |
| 第 4 版<br>平成 30 年 3 月 26 日 | —        | —          | 平成 30 年度予算および「京」計算資源配分決定を反映し更新                           |
|                           | 1. (8)   | 33         | 平成 30 年度分を配分量に更新   |
|                           | 別紙 2     | 83         | 平成 30 年度の所要経費に更新   |
|                           | 別紙 3     | 84         | 平成 30 年度分を配分量に更新   |
|                           | 別紙 4     | 85         | 平成 30 年度分を配分量に更新   |
| 第 5 版<br>平成 30 年 5 月 31 日 | —        | —          | 諮問委員会の審議結果を反映し更新   |
|                           | 1. (2)   | 3~4        | 研究開発内容を最新情報に更新、具体化・詳細化                                   |
|                           | 1. (3)   | 6          | サブ課題 B の計画を具体化・詳細化                                       |
|                           | 1. (3)   | 7          | サブ課題 C の計画を具体化・詳細化                                       |
|                           | 1. (4)   | 9          | 最新情報に更新  |
|                           | 1. (5)   | 10~11      | 諮問委員会の審議結果及び運営委員会の検討結果を反映し更新                             |
|                           | 1. (5)   | 11         | 図 1-2 インフォマティクス活用ワーキンググループ設置を追加、それに伴い 1. 実施概要の以降の図の項番を変更 |
|                           | 1. (6)   | 12~20      | 年次計画を具体化・詳細化   |
|                           | 1. (7)   | 21~22      | 実施体制を最新情報に更新   |
|                           | 1. (7)   | 21         | 図 1-3 推進体制を最新情報に更新                                       |
|                           | 1. (7)   | 22         | 図 1-4 運営体制を最新情報に更新                                       |
|                           | 1. (7)   | 23         | 図 1-5 研究開発における連携についてを最新情報に更新                             |
|                           | 1. (7)   | 25~30      | 表 1-2 平成 30 年度以降の実施体制を最新情報に更新                            |
|                           | 1. (7)   | 33~35      | 表 1-3 人員計画を最新情報に更新                                       |
|                           | 2-1. (5) | 48~49      | 実施体制を最新情報に更新   |
|                           | 2-1. (5) | 48         | 図 2-1-6 サブ課題 A 実施体制を最新情報に更新                              |
|                           | 2-2. (2) | 51~53      | 実施内容を最新情報に更新、具体化・詳細化                                     |
| 2-2. (3)                  | 54       | 計画を具体化・詳細化 |  |

|                          |         |       |   |
|--------------------------|---------|-------|---|
|                          | 2-2.(5) | 57~58 | 実施体制を最新情報に更新                                |
|                          | 2-3.(2) | 60~61 | 実施内容を最新情報に更新、具体化・詳細化                        |
|                          | 2-3.(3) | 62~63 | 計画を具体化・詳細化                                  |
|                          | 2-3.(4) | 64    | 具体化・詳細化                                     |
|                          | 2-3.(5) | 64~66 | 実施体制を最新情報に更新                                |
|                          | 2-3.(5) | 66    | 図 2-3-7 サブ課題 C 実施体制を最新情報に更新                 |
|                          | 2-4-5.  | 70    | 最新情報に更新                                     |
|                          | 2-4-5.  | 70    | 図 2-4-1 コデザインと重点課題間連携を最新情報に更新               |
|                          | 4.      | 75    | 図 4-1 出口に向けた産業界との連携を最新情報に更新                 |
|                          | 4.      | 78    | 図 4-2 成果利活用の道筋を最新情報に更新                      |
|                          | 4.      | 83    | 表 4-2「京」を中核とする HPCI システム：利用実績のあるアプリケーションを更新 |
|                          | 4.      | 84    | 図 4-3 大型国家プロジェクトとの連携を最新情報に更新                |
|                          | 別紙 1    | 85~86 | 平成 30 年度の体制に更新                              |
|                          | 別紙 2    | 87    | 平成 28 年度経費を確定値に更新                           |
| 第 6 版<br>平成 31 年 2 月 7 日 | —       | —     | 実施体制の変更、平成 31 年度予算および「京」計算資源配分決定を反映し更新      |
|                          | 1.(5)   | 11    | 図 1-2 インフォマティクス活用ワーキンググループ設置を最新情報に更新        |
|                          | 1.(7)   | 21~22 | 実施体制を最新情報に更新                                |
|                          | 1.(7)   | 21    | 図 1-3 推進体制を最新情報に更新                          |
|                          | 1.(7)   | 22    | 図 1-4 運営体制を最新情報に更新                          |
|                          | 1.(7)   | 23    | 図 1-5 研究開発における連携についてを最新情報に更新                |
|                          | 1.(7)   | 25~30 | 表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制を最新情報に更新               |
|                          | 1.(8)   | 34    | 平成 31 年度分を配分值に更新                            |
|                          | 2-1.(2) | 36~38 | 実施体制を最新情報に更新                                |
|                          | 2-1.(5) | 41    | 実施体制を最新情報に更新                                |
|                          | 2-1.(5) | 41    | 図 2-1-6 サブ課題 A 実施体制を最新情報に更新                 |
|                          | 2-4-5.  | 59    | 図 2-4-1 コデザインと重点課題間連携を最新情報に更新               |
|                          | 4.      | 63    | 図 4-1 出口に向けた産業界との連携を最新情報に更新                 |
|                          | 4.      | 64    | 図 4-2 成果利活用の道筋を最新情報に更新                      |

|  |        |       |  |
|--|--------|-------|--|
|  | 4. (6) | 66    | 参加者数を最新情報に更新                                     |
|  | 4.     | 67    | 表 4-2「京」を中核とする HPCI システム：利用実績のあるアプリケーションを最新情報に更新 |
|  | 4. (7) | 67    | 大型国家プロジェクトとの連携数を最新情報に更新                          |
|  | 4.     | 68    | 図 4-3 大型国家プロジェクトとの連携を最新情報に更新                     |
|  | 別紙 1   | 69～70 | 平成 31 年度の体制に更新                                   |
|  | 別紙 2   | 71    | 平成 29 年度を確定値に、平成 31 年度所要経費に更新                    |
|  | 別紙 3   | 72    | 平成 31 年度分を配分量に更新                                 |
|  | 別紙 4   | 73    | 平成 31 年度分を配分量に更新                                 |

# 内容

|   |    |
|---|----|
| 1. 実施概要                                   | 1  |
| (1) 目的・意義                                 | 1  |
| (2) 研究開発内容                                | 2  |
| (3) 目標・期待される成果                            | 4  |
| (4) 周辺領域への波及効果、課題全体における計算科学やシミュレーションの位置づけ | 8  |
| (5) 機械学習やデータサイエンスの技術活用の検討                 | 10 |
| (6) 年次計画                                  | 12 |
| (7) 実施体制                                  | 21 |
| (8) 必要計算資源                                | 34 |
| 2. 研究開発内容詳細                               | 35 |
| 2-1. サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保 – 太陽光エネルギー       | 35 |
| (1) 目的・意義                                 | 35 |
| (2) 実施内容                                  | 36 |
| (3) 目標・期待される成果                            | 39 |
| (4) 「京」でできていること、ポスト「京」でなければならないこと         | 40 |
| (5) 実施体制                                  | 41 |
| 2-2. サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 – 電気エネルギー          | 42 |
| (1) 目的・意義                                 | 42 |
| (2) 実施内容                                  | 42 |
| (3) 目標・期待される成果                            | 45 |
| (4) 「京」でできていること、ポスト「京」でなければならないこと         | 48 |
| (5) 実施体制                                  | 48 |
| 2-3. サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 – 化学エネルギー        | 50 |
| (1) 目的・意義                                 | 50 |
| (2) 実施内容                                  | 51 |
| (3) 目標・期待される成果                            | 53 |
| (4) 「京」でできていること、ポスト「京」でなければならないこと         | 55 |
| (5) 実施体制                                  | 55 |
| 2-4. 基盤アプリ設計・開発                           | 57 |
| 2-4-1. NTChem                             | 57 |
| 2-4-2. GELLAN                             | 57 |
| 2-4-3. MODYLAS                            | 57 |
| 2-4-4. stat-CPMD                          | 57 |
| 2-4-5. コデザイン                              | 58 |
| 3. 採択時の留意事項への対応状況                         | 61 |
| 4. 中間評価時の指摘事項への対応状況                       | 63 |

|      |                   |    |
|------|-------------------|----|
| 別紙 1 | 実施機関一覧 .....      | 69 |
| 別紙 2 | 所要経費 .....        | 71 |
| 別紙 3 | 「京」の計算資源量 .....   | 72 |
| 別紙 4 | 「京」以外の計算資源量 ..... | 73 |
| 別紙 5 | 用語の説明書 .....      | 74 |

## 1. 実施概要

### (1) 目的・意義

ポスト「京」を駆使することにより、太陽電池、人工光合成による新エネルギーの創出・確保、燃料電池、二次電池によるエネルギーの変換・貯蔵、また、メタンやCO<sub>2</sub>の分離・回収、貯蔵、触媒反応によるエネルギー・資源の有効利用など、太陽光エネルギー、電気エネルギーや化学エネルギーにおいて中心的な役割を担う複雑で複合的な分子・物質過程に対する電子・分子レベルでの全系シミュレーションを行い、実験研究者、産業界と連携して、高効率、低コスト、また環境に優しく持続可能なエネルギー新規基盤技術を確立する。

同時に、これまで計算機資源の不足により制限されていた孤立系や部分系における単一現象の科学から脱却し、現実系である界面、不均一性を有する電子、分子の複合現象を統合的に捉え得る新しい学術的視点を確立し、科学的なブレークスルーを達成する。

国内外における主な関連プロジェクトを表 1-1 にまとめる。実験主体のプロジェクトが多く、計算はマテリアルゲノム中心であり、基本原理に基づく計算は小規模である。米国 DOE 傘下の計算機センターにおいては、2016 年から導入の始まるプリ・エクサシステムへのアプリケーション移行のプロジェクトが行われている。当面、メニコアアーキテクチャ等への移行が主目的にみえる。但し、その発展・成果については、競合する可能性が高く注視していく必要がある。国内の実験プロジェクトには、本課題研究者が直接参加することも含め密接に連携していく。

表 1-1 国内外の主な関連プロジェクト

| プロジェクト名             | 目的、内容   | 備考                |
|---------------------|---|-------------------|
| JCESR               |  計算・データ科学からの蓄電池材料設計が目標             | インフォマティクス中心       |
| JCAP                |  自然光合成比10倍効率化                      | 実験主体              |
| FCH2                |  水素利用の燃料電池開発と実用化                   | 実験主体              |
| NETL                |  ハイドレートの発掘で日本とも共同開発                | 実験主体              |
| MIT CCSPD           |  CO2分離・回収                          | 実験主体              |
| NESAP               |  プリエクサシステムに向けたアプリ移植・チューニング         | 計算機移行が主目的         |
| CAAR                |  プリエクサシステムに向けたアプリ移植・チューニング         | 計算機移行が主目的         |
| ESP                 |  プリエクサシステムに向けたアプリ移植・チューニング         | 計算機移行が主目的         |
| 863計画               |  車載用リチウムイオン電池開発                    | 実験主体？             |
| 973計画               |  革新的電池開発(リチウム硫黄電池、リチウム空気電池など)      | 実験主体？             |
| Battery2020         |  中大型リチウムイオン電池開発                    | 実験主体？             |
| 揚水発電代替              |  革新的電池開発(マグネシウム電池、リチウム金属電池、全固体電池等) | 実験主体？             |
| ARPCHEM             |  人工光合成                             | 実験主体 <b>【連携】</b>  |
| NEDO                |  太陽光発電の発電コスト低減                     | 実験主体 <b>【連携】</b>  |
| JST CREST           |  エネルギー高効率利用のための相界面科学               | 実験主体 <b>【連携】</b>  |
| JST ALCA-SPRING     |  先端的低炭素化技術開発 特別重点領域次世代蓄電池          | 実験+計算 <b>【連携】</b> |
| 内閣府ImPACT           |  超薄膜化・強靱化「しなやかなタフポリマー」の実現          | 実験+計算 <b>【連携】</b> |
| 元素戦略プロジェクト<br>拠点形成型 |  京大ESICB 実験・理論融合による触媒・電池研究         | 実験+計算 <b>【連携】</b> |
| 経産省RISING II        |  RISINGで得られた成果の2030年の実用化に向けて更に発展   | 実験主体              |

資源小国である我が国にとって、エネルギー問題の解決は喫緊の重要課題である。本重点課題において確立する技術は、新エネルギー源としての太陽光利用、また自動車産業の根幹を変革する可能性を持つ低コスト電気自動車、燃料電池車の世界に先駆けた開発、さらには、ハイドレートからのメタン資源の確保、高性能触媒の開発によるエネルギー多消費型工業プロセスの革新、CO<sub>2</sub>問題の解決による化石燃料の安定的利用の実現を目的としており、いずれも国家的課題の解決に大きく貢献するものである。さらには、安価な太陽電池や二次電池は発展途上国のエネルギー問題を大幅に改善するものであり、地球規模での資源、環境問題の解決にもつながる国際貢献が可能となる。

## (2) 研究開発内容

本重点課題では上記の目的を達成するために、サブ課題A「新エネルギー源の創出・確保－太陽光エネルギー」、サブ課題B「エネルギーの変換・貯蔵－電気エネルギー」、サブ課題C「エネルギー・資源の有効利用－化学エネルギー」を設定し、ポスト「京」を最大限に活用するアプリケーション開発により各サブ課題での目標を実現する。開発内容の概要は以下の通りである。

### サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保－太陽光エネルギー

高効率太陽光エネルギー変換による新エネルギー源の創出を目指す。複雑なスピン状態を含む天然・人工光合成系の素反応から物質設計までを取り扱える統合的な計算手法を確立し、水分解反応の本質解明と新エネルギー創出に有望な物質探索を行う。また、太陽電池の物質設計とモルフォロジー・界面の制御に貢献できるシミュレータの開発を行い、高効率太陽電池の実現に向けた計算的アプローチを推進することにより次世代のエネルギー資源の創出に貢献する。

人工光合成の物質設計と実用化を目的とした光合成シミュレータの開発と、高効率な太陽電池の予測を可能にする太陽電池シミュレータの開発を行う。

光合成シミュレータでは、複雑なスピン状態を伴う多核金属錯体の電子状態の正確な取り扱いを可能にする強相関ソルバーの開発を行い、ESR や EDNMR をプローブとした応用に展開する。大規模な量子エンタングルメントを取り扱う新規な理論と数値解法を發展させ、光合成の機構解明をポスト「京」で始めて可能とする。基礎となる天然光合成系については Kok サイクルの各酸化状態での水分解サイトの構造決定を行い、反応機構を明らかにする。半導体光触媒については、大規模な時間依存密度汎関数計算によるバンドギャップと水の酸化還元準位とのバンドアライメント最適化を行う。

更に、上記研究で開発した光合成シミュレータを用い、新規光触媒設計と助触媒の最適化の応用研究を行う。

太陽電池シミュレータではメモリ分割を施した時間依存密度汎関数法を開発し、数千～1万原子規模のドナー・アクセプター界面での電荷分離状態のシミュレーションを行うと共に、領域分割によるアプローチも検討する。更に、有機電子供与体・有機電子受容体の相互作用と光誘起による電子物性に強く依存する  $I_{sc}$  を飛躍的に増加させる有機物材料の設計指針を明らかにする。

更に、上記研究で開発した太陽電池シミュレータを用い、ペロブスカイト太陽電池の光電荷移動機構や自由キャリア機構の解明に向けた研究を行う。

これらの目標を達成し、出口に向けた成果を創出するために、サブ課題 A では、岡山大学、大阪市立大学をはじめとする実験研究者と共同研究を行い、また、ARPCHEM、NEDO、CREST 及び元素戦略などの国家プロジェクトと連携し、更に三菱ケミカル等の民間企業との連携も行っていく。

### サブ課題 B エネルギーの変換・貯蔵－電気エネルギー

第一原理電子状態理論に基づく電極反応の計算と分子動力学法に基づく電解質の計算を統合させることにより、均一系の化学・表面物性・粗視化に基づく材料科学的なアプローチでは理解が困難であった二次電池や燃料電池の分子論を構築する。またこの方法を用いて、測定が困難な電極界面を解明しそれを二次電池や燃料電池の電流電圧曲線等の予測につなげ、信頼性の向上に貢献できる手法を確立する。これを用いて次世代・次々世代電池技術の重要問題に挑戦し、蓄電・水素エネルギー社会の実現に貢献する。

本サブ課題は、電極シミュレーション、イオン輸送・電解質膜シミュレーションから成るシミュレータを開発し、電極界面の微視的挙動の解析を実現する。これを用いて、サイクリック・ボルタンメトリー（電流電圧曲線）計算や界面酸化還元反応の計算を行いながら、電極界面が関わる問題の解決が可能なレベルにシミュレータを発展させる。電極シミュレーションでは、アプリケーションソフトウェア stat-CPMD、STATE を拡張し、電位差が印加された状況下等での反応自由エネルギーの計算を可能にし、その手法の有効性をリチウムイオン電池や燃料電池で確認した後に、全固体電池、ナトリウムイオン電池、リチウム空気電池などの次世代二次電池や白金代替燃料電池へと展開する。イオン輸送・電解質膜シミュレーションでは、主として MODYLAS による古典分子動力学シミュレーションに基づいて二次電池電極界面、燃料電池三相界面等の不均一系におけるイオン輸送の分子機構を解明する。更に、アプリケーションソフトウェア RedMoon により、電極-電解液界面の SEI 膜形成機構の解明を行う。リチウムイオン電池系の界面被膜形成に電解液組成などが与える効果を原子レベルから解析する。

これらの目標を達成し、出口に向けた成果を創出するために、サブ課題 B では、物材機構、東京理科大、SPRING-8 等をはじめとする実験研究者と共同研究を行い、また、ImPACT、JST-ALCA、NEDO、CREST 及び元素戦略などの国家プロジェクトと連携し、更にトヨタ自動車、富士フィルム、日産アーク、昭和電工等の民間企業との連携も行っていく。

### サブ課題 C エネルギー・資源の有効利用－化学エネルギー

化学エネルギー創成から消費に至る過程において、メタンや CO<sub>2</sub> の分離・回収、貯蔵、触媒反応によるエネルギー・資源の有効利用に関わる基盤技術を開発し、高効率な分離・回収、貯蔵、相互変換法の実用への橋渡しとするための指針を提供する。そのために、電子状態理論と分子動力学法を基盤とした統合シミュレーション技術を構築し、実用的な物質設計に向け分子レベルからの指針を提供する。ハイドレート分解によるメタン資源の採取方法の効率化、燃料電池非白金系触媒の開発、アミンをはじめ高効率材料を用いた CO<sub>2</sub> の分離・回収技術の発展に貢献することにより、エネルギー多消費型工業プロセスを革新する。

化学エネルギーを対象とする本サブ課題は、ハイドレート、触媒、CO<sub>2</sub>分離・回収から構成される。エネルギー資源として大量に存在するメタンハイドレートの効率的採取法の開発を目指して、大規模長時間MDシミュレーションを実施して、メソスケールでの解離の機構解明、解離の律速過程の探索を行ない、効率的な融解法への指針を得る。更に、ポスト「京」を駆使した大規模な構造探索から、蓄冷材としてのセミクラスレートの性能の向上のための包括的な評価を行う。触媒では、反応経路自動探索法をNTChemに連成し、CO<sub>2</sub>有効資源化と燃料電池非白金系触媒に焦点を当てた研究を行う。CO<sub>2</sub>分離・回収では、分割統治法を中心としたアプリの高度化を行い、消費エネルギーコストを削減する新規アミンの提案・最適なアミン混合比の予測を行う。更に、溶液系だけでなく金属有機構造体(MOF)やゼオライトのような多孔質材料を用いた手法に関する技術確立する。

これらの目標を達成し、出口に向けた成果を創出するために、サブ課題Cでは、北大等をはじめとする実験研究者と共同研究を行い、また、CREST及び元素戦略などの国家プロジェクトと連携し、更にパナソニック、三菱ケミカル、IHI等の民間企業との連携も行っていく。

### (3) 目標・期待される成果

#### サブ課題A 新エネルギー源の創出・確保—太陽光エネルギー

##### アウトプット成果:

##### ・平成29年度終了時

数千～1万原子から成る大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、基底状態に関する密度汎関数計算のためのメモリ分割版プログラムを完成させ、太陽電池シミュレータに実装する。有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するための手法とプログラムを開発し、太陽電池シミュレータに実装する。又、光合成シミュレータにおいては、ポスト「京」による光合成系の理論研究を可能にする計算手法と分光学的プローブの基本設計とプロトタイプ実装を終了する。

更に、上記研究で開発した光合成シミュレータを用いた新規光触媒への応用研究を実施すると共に、太陽電池シミュレータを用い、ペロブスカイト太陽電池の光電荷移動機構を解明する。

##### ・本格実施フェーズ終了時

10<sup>20</sup>以上の複雑な電子配置が重要な寄与をする電子系の高精度計算が可能な光合成シミュレータを完成させ、複雑な組成を持つ半導体光触媒や、電子相関が強くこれまで取り扱いが困難であった多核金属錯体による人工光合成系の定量的な取り扱いを可能にする。また、太陽電池シミュレータを完成させる。数千～1万原子から成る大規模な太陽電池材料の基底状態に加えて励起状態での挙動や物性のシミュレーションを可能とする。

光合成シミュレータを用いた新規光触媒設計と助触媒の最適化を行う。また、太陽電池シミュレータを用いペロブスカイト太陽電池の高効率性に関わる自由キャリア機構を解明する。更に、ドナー・アクセプター界面の電子的特性を明らかにすることにより有機系太陽電池などの実用化のめどとされる変換効率15%に向けた提案を行う。

#### ・ポスト「京」運用開始5年後

天然の光合成系を模倣した新規触媒の開発を行う。(1)可視光領域で水から水素を効率良く作ることのできる光触媒の理論設計、(2)水を分解して酸素を取り出す高効率な金属錯体触媒のシミュレーション設計を実現する。太陽電池シミュレータの幅広い分野での活用・普及を行うと共に、太陽電池のさらなる高効率化を目指して、新規変換機構に基づく太陽電池に関する知見を得る。

#### アウトカム成果：

##### ・ポスト「京」運用開始5年後

企業との連携によるプロトタイプ実証が開始される。

##### ・ポスト「京」運用開始10年後

企業との連携による製品化が目指される。分子・物質レベルのミクロな情報から材料の物性や挙動を予測できるマテリアルデザインのための総合的なモデリング/シミュレーション環境を提供し、触媒、医薬品、ポリマー、燃料電池、太陽電池、強相関物質などをターゲットとして多くの分野のニーズに資する統合シミュレータとして普及する。

#### サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵—電気エネルギー

#### アウトプット成果：

##### ・平成29年度終了時

二次電池に関しては、固体電子論に基づく計算プログラムを発展させ、数千原子規模の電極界面に対して電極反応等の自由エネルギー計算が可能なシミュレータを、stat-CPMD、STATEをベースに開発する。また、混合MC/MD反応法プログラムを発展させ、数十万原子規模の電極・電極被膜界面での反応シミュレーションを行えるシミュレータを開発する。燃料電池に関しては、燃料電池電極界面の構造や反応自由エネルギーを計算することが可能な電極シミュレータを、第一原理分子動力学法(STATE, stat-CPMD)をベースに開発する。また、高分子電解質膜など100万～1,000万原子の高分子系に対して分子動力学計算による相分離構造の解析や破壊シミュレーションが可能なシミュレータを、MODYLASをベースに開発する。

これらのシミュレータを用い、リチウムイオン電池やナトリウムイオン電池の電解液探索、被膜形成過程に電解液組成などが与える効果の原子レベルの解析や二次電池電極界面近傍、燃料電池三相界面でのイオン輸送など、電池材料としての機能発現の分子過程の解明を行う。また、燃料電池の反応・輸送抵抗を予測するのに必要な物性値の導出、遷移金属酸化物などの白金代替物質の構造や反応に関する電極シミュレーションを行い、電極開発に資する。

##### ・本格実施フェーズ終了時

二次電池に関しては、固体電子論に基づく計算プログラムを用いた5000原子規模の反応自由エネルギー計算が可能になるシミュレータを開発する。また、混合MC/MD反応法による数十nmオーダーの厚みを有する現実のSEI膜との直接比較が可能な100万原子規模のシミュレータを開発する。燃料電池に関しては、電極界面の構造や反応自由エネルギーの計算効率や精度を向上させ、界面構造等と反応機構や反応抵抗との関連を解明することが可能な電極シミュレータを開発する。高分子電解質膜

に特徴的な大域的構造とそれに由来する膜強度やイオン伝導度、また電極・電解質膜界面等の解析が可能な1億～10億原子系に対する分子動力学計算を実現するシミュレータを開発する。上記、微視的シミュレーションから得られる反応抵抗や輸送抵抗に基づいて、電流電圧曲線の予測計算を可能なレベルのシミュレータとして発展する。開発シミュレータの産業界等への技術移転を開始する。

これらのシミュレータを用い、二次電池に関しては、リチウムイオン電池等の電極界面被膜や電解液の反応性・イオン伝導性を解析し、また力場計算連携解析・材料関連の機械学習解析も実行し、より高効率かつ高安全性をもつ電解液・電解質材料の設計指針を提案する。加えて、ポストリチウムイオン電池の有力候補である全固体電池の電解質-電極界面におけるイオン輸送や、リチウム空気電池や多価イオン電池における電解液-電極反応に関してもポスト京利用に向けた予備的な成果を得る。燃料電池に関しては、遷移金属酸化物などの白金代替物質の活性向上のための組成や構造に関する設計指針を獲得する。標準的な電解質膜に対して乾湿サイクルによるモルフォロジー変化を明らかにするとともに、破壊の分子機構を解明する。加えて、プロトンの輸送、酸素や水素の遮断など電池材料としての機能発現の分子過程を解明する。更に、電解質膜開発に関しては内閣府 ImPACT プロジェクト「しなやかタフポリマー」と連携し、開発企業と共同で、社会的に緊急度の高い強靱で高耐久性、高信頼性を持つ実用的な自動車用燃料電池の電解質膜の設計指針を提供し、「京」を用いた先行的成果としてコンセプトカーの試作につなげる。

#### ・ポスト「京」運用開始5年後

開発シミュレータを用いた二次電池や燃料電池の電流電圧曲線の計算技術を確立させるとともに、大域的モルフォロジーと微視的な電極反応の関連を明確にするなど電池の微視的理論を充実させる。次世代二次電池や燃料電池の反応機構に関する微視的理論を発展させ、材料開発に貢献する。また、シミュレーション技術の産業界への移転を始める。

#### アウトカム成果：

#### ・ポスト「京」運用開始5年後

「京」およびポスト「京」によって提案あるいは確認された電池の部材の商品化がいくつか行われる。電気自動車、燃料電池車の開発やスマートグリッド社会の構築が加速する。開発シミュレータが企業等で用いられ始め、開発期間の短縮に貢献する。

#### ・ポスト「京」運用開始10年後

蓄電社会、水素社会の構築が進んだ結果、自然エネルギーの全エネルギーに対する割合が増加する。全電池シミュレータ技術が普及し、電池開発に不可欠な基盤となる。

### サブ課題C エネルギー・資源の有効利用—化学エネルギー

#### アウトプット成果：

#### ・平成29年度終了時

化学エネルギー創成から消費に至る過程の、高効率な分離・回収、貯蔵、相互変換法の計算科学における開発を目指す。ハイドレートを用いた物質貯蔵に関して、高効率、低エネルギーコスト低環境負荷で貯蔵・廃棄するため、自由エネルギー計算や数十万原子規模の分子系、ミリ秒のシミュレーションにより最適条件を提示する。更に、蓄冷材としてのセミクラスレートについて、未解明の構造や

熱力学的特性の解析方法を開発する。触媒設計では反応経路自動探索プログラムを NTChem に連結させ、京の上での反応経路探索計算を可能にする。更に、金属ナノクラスターによる触媒反応の全面経路探索を行い、サイズ効果やクラスター構造変化の効果について知見を得る。CO<sub>2</sub> について、100 万原子規模の化学反応ダイナミクスに必要な DFTB などのアプリケーションの大枠の開発、また拡散と反応性の関係を明らかにする。更に、力場 (DFTB パラメータ) の拡張を実施して、MOF などの多孔質材料の CO<sub>2</sub> 吸収量や吸収速度、回収に必要な熱量などの基礎的知見を獲得する。

#### ・本格実施フェーズ終了時

化学エネルギー創成から消費に至る過程について、計算科学により高効率な分離・回収、貯蔵、相互変換法の実用へ橋渡しとするための指針を提供する。ハイドレートについては、最大数千万原子規模の分子系、ミリ秒程度のシミュレーションを行い、生成解離機構を解明し、マクロなシミュレーションヘデータを提供することにより、メタンの効率的回収の指針を得ることに貢献する。更に、メタン資源化と CO<sub>2</sub> 投棄のために、メタンハイドレート中のメタンの CO<sub>2</sub> への置換機構を解明するとともに、蓄冷材としてのセミクラスレートの構造と潜熱の基礎原理を確立する。触媒設計では、反応経路自動探索プログラムを NTChem と連結し反応経路自動探索を実現し、1000 原子程度の複雑な触媒反応機構を調べる計算手法を開発する。CO<sub>2</sub> 有効資源化の触媒や燃料電池非白金系触媒へと適用し、高機能触媒設計に資する知見を得る。CO<sub>2</sub> 分離・回収では、アミンの pKa 依存性など 100 万原子程度の大規模系解析に基づいて、最適な反応条件の提案を行う。更に、CO<sub>2</sub> 分離・回収候補となる MOF などの多孔質材料の指針を吸収量や吸収速度、回収に必要な熱量の観点から示す。

#### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

メタン、水素を長時間貯蔵するために、ハイドレートの分解を緩和する“自己保存効果”を高める手法の開発、CO<sub>2</sub> 固定の高機能触媒、サブ課題 B と連携した燃料電池非白金系触媒、最適化されたアミン吸収液に対するより定量的な CO<sub>2</sub> 吸収特性の予測を実現する。

#### アウトカム成果：

##### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

ハイドレートに対する低環境負荷が一般に認められ、また反応経路自動探索計算や凝縮相内化学反応シミュレーションが化学プロセスや材料設計で普及する。

##### ・ポスト「京」運用開始 10 年後

メタンハイドレート由来のメタンが利用されるようになり、反応経路自動探索法が産業界に普及し、合理化されたプロセスに基づく CO<sub>2</sub> 分離・回収技術の実証試験が進み産業化がなされる。

上に述べたような分子過程が重要なエネルギー技術においては、複雑に絡みあった電子、分子の振る舞いが中心的な役割を担っている場合が多い。しかしながら一般的に、これまでの計算科学研究は、均一系に対するものでしかなかった。このため、理想的な要素に対するモデル研究にとどまっており、構成要素が複合して形成されている実在系の現象を直接取り扱うことができていない。ここにおいて、ポスト「京」を用いた超大規模並列シミュレーションにより、広域なヘテロ複合系の計算を実行し、そこで初めて生起する重要な現象を世界に先駆けて解明する。これにより、エネルギー問題の解決の鍵となっている分子過程を計算科学的に明らかにし、実験研究者と協力しながら問題解決に向けて一

歩を踏み出すことが可能となる。このような研究は学術的にも意義が高く、ポスト「京」なくしては不可能であり、ポスト「京」の利用による明確な投資効果を有している。その例を図 1-1 に示す。

例えば、「京」においては 1000 原子までの分子の励起状態の量子化学計算が実現されているが、有機太陽電池の開発に必要なヘテロジャンクションを含めた現実系界面のシミュレーションには 10000 原子規模の取扱いが不可欠である。この計算を終えるには「京」では 1 年を必要とし成果は見込まれない。

また例えば、「京」においては燃料電池高分子電解質膜だけからなる系に対する分子動力学計算は可能である。しかしながら、実際の開発研究においては高分子電解質膜と電解液からなる系が触媒層に圧着されている数億原子からなる現実系に対する計算が必要となる。この計算は「京」では数年かかり実質的に研究不可能である。ポスト「京」においては、新規アルゴリズム開発も含めて 2 から 20ms/MDstep の実現を目標としており、その場合 1 週間以下で計算を終了できる。

|                          | 京   | ポスト「京」   |
|--------------------------|---|--|
| サブ課題A<br>新規エネルギー資源の創出・確保 | 小規模系励起状態計算<br>・光合成系 厳密計算<br><b>20原子、<math>\approx 10^9</math>の電子配置</b><br>・有機太陽電池<br><b>単一相、1,000原子</b>                                 | 高精度大規模系励起状態計算<br>・光合成系 厳密計算 (完全CI解) 実用化<br><b>1,000原子、<math>10^{20}</math>以上の電子配置の組合せ</b><br>・有機太陽電池 現実系界面 (ドナーア<br><b>クセプター界面)、10,000原子</b>                       |
| サブ課題B<br>エネルギーの変換・貯蔵     | 個別部材のシミュレーション<br>・電極反応<br><b>数千原子規模の第一原理計算</b><br>・電解質膜<br><b>数百万原子系のMD計算</b>   | 全電池シミュレータ<br>・二次電池<br>・燃料電池<br>・反応自由エネルギーと物質移動に基づいた電流電圧曲線、電極界面のマイクロ機構解明<br><b>5,000原子の第一原理計算と数億原子のMD計算の統合</b>  |
| サブ課題C<br>エネルギー・資源の有効利用   | ・メタンハイドレートの融解<br><b>数十万原子規模分子シミュレーション</b><br>・均一触媒反応<br><b>数十原子の反応経路探索</b><br>・CO <sub>2</sub> の分離・回収、アミン水溶液<br><b>5,000原子系のQM-MD計算</b> | ・ハイドレートの分離・貯蔵、蓄冷機能<br><b>数千万原子規模分子シミュレーション</b><br>・不均一触媒表面反応<br><b>1,000原子系の反応経路探索</b><br>・CO <sub>2</sub> の化学吸収法の最適化<br>・MOFなどの固体吸収材の設計<br><b>100万原子系のQM-MD計算</b> |

図 1-1 ポスト「京」でなければできない研究

#### (4) 周辺領域への波及効果、課題全体における計算科学やシミュレーションの位置づけ

本重点課題で取り扱うエネルギー技術においては、いずれも電子や分子のマイクロな振る舞いが中心的な役割を果たしている。このような分子レベルの情報実験のみからでは得ることは難しく、開発指針も経験のみから定めることは困難である。このため、エネルギーシステムにおける分子のマイクロな理解は、新規材料の合理的な理論設計と機能制御の開発において最も重要なファクターとなっている。

本課題は実験研究者、企業研究者との連携に基づいて課題解決を目指すものであり、以下のように実験と

計算の相互的な関係、課題全体における計算科学の位置づけ、役割は明確である。

まず「新エネルギー源の創出・確保」における太陽光エネルギー技術全体の課題は、低コスト、汎用元素、高変換効率、長寿命の高性能太陽電池の開発と、高効率水素発生光触媒の開発である。これらを実現するにあたって特に計算科学に求められていることは、前者に対しては短絡電流密度、開放電圧、曲線因子の計算、界面・モルフォロジー制御や電荷再結合等の太陽電池のエネルギー変換効率要因の特定であり、また、アップコンバージョン、ホットキャリア、熱電変換利用等の理論限界を超える太陽電池の新機構提案である。また、後者に対しては、金属錯体や半導体光触媒での水素発生機構解明と設計、CO<sub>2</sub>固定法の指針開発である。このため、上述したように太陽電池シミュレータならびに人工光合成シミュレータの開発を行うことが強く求められており、これらに基づいて実験研究者、企業研究者と連携して新しい原理に基づく太陽電池、光触媒の開発につなげる。

「エネルギーの変換・貯蔵」における電気化学エネルギー技術全体の課題は、二次電池、燃料電池共に、ひとえに低コスト化、高信頼性、高耐久性、汎用元素利用の電池開発である。そこにおいては特に高エネルギー密度、高出力密度、高速充放電を実現することが求められているが、さらには次世代、次々世代電池の構築もすでに要求されている。これらの課題解決のために計算科学に求められていることは、一つは各種電池共通課題として、電極反応、電極被膜生成、イオン輸送に関わる電極/電極被膜・電解質膜/電解液界面挙動の解明である。もう一つは、高電圧・高エネルギー密度に繋がる正極・負極、高イオン伝導度、高耐久性を持つ電解液・電解質・電解質膜、さらには燃料電池における白金代替触媒など種々の電池に個別な電池部材の最適材料設計、材料探索である。このため、電極反応、電極被膜、電極界面の研究を進めることができ、また電解質膜、電極被膜と電解液との界面を研究するシミュレータの開発が不可欠となっており、これらは information transfer により電極界面の反応抵抗、輸送抵抗、電気二重層などを統合して、CV 曲線のシミュレーションを可能とすることが期待されている。これら計算科学の課題を解決し、その上で ImPACT、元素戦略、JST-ALCA など大規模国家プロジェクト等において実験研究者、企業研究者と連携し、自動車産業で日本が優位に立ち得る高性能燃料電池、二次電池の開発へと繋げるとともに、次世代、次々世代電池開発を加速化する。

「エネルギー・資源の有効利用」における化学エネルギー技術全体の課題は、ハイドレートからのメタンの効率的採集技術の確立、元素戦略に立脚した高性能触媒の開発、CO<sub>2</sub>の低コスト分離・回収、廃棄、資源化である。これらの中で計算科学に具体的に求められていることは、ハイドレート分解の律速過程の解明とその消去法の提案、メタン/CO<sub>2</sub>の高効率変換の可能性の検証であり、CO<sub>2</sub>還元を実現する高機能触媒の提案、低コストで CO<sub>2</sub>回収を実現するアミン系吸収剤の設計、また MOF など新規吸収媒体の提案である。これには、多相共存シミュレータ、触媒反応経路探索シミュレータ、凝縮相内化学反応シミュレータの開発を要し、これらを用いた大規模計算に基づいて上述の課題解決に向けた提案、設計・開発指針の提示を行い、メタンハイドレートの資源化、CO<sub>2</sub>の低コスト分離・回収、廃棄、資源化を分子技術、元素戦略の実験研究者とともに実現する。

このような技術は単にエネルギー問題に限られることなく広く応用され、我が国の産業の革新的発展に大きく貢献することが期待されるが、同時に基礎科学分野においても大きなブレークスルーをもたらすものである。

本課題の成功は、自動車産業、化学産業、電機産業等に極めて大きな波及効果をもたらすことが期待される。たとえば低コスト高性能電気自動車や燃料電池車は、自動車メーカーが激しい国際競争の

下に開発を進めており、この分野で市場を制することは我が国に計り知れない利益をもたらす。中核技術となる電池本体の中でも特に新規材料の開発がその鍵を握っており、産業界や実験研究者と手を携えた計算科学研究が大きな変革をもたらす。また、たとえば人工光合成系の研究においては、酸素発生を促す物質の電子状態に加えて、それを制御する周辺環境との相関が最も重要となる。この複合現象の解明は、新エネルギー創成の出発点となるものであり、今後 20 年の研究の方向性を決定するなど、我が国の産業・経済への大きな波及効果が期待される。

また、本課題では孤立系や部分系における単一現象の科学から脱却し、現実系である界面、不均一性を有する電子、分子の複合現象を統合的に捉え得る新しい学術的視点を確立することができ、科学的にも大きな革新をもたらすことが期待される。

本課題において開発した高精度量子化学計算、大規模第一原理計算、超大規模分子動力学計算などの方法論、アプリケーションは化学、物理、材料、生物分野等に適用できるものであり、エネルギー問題に限ることなく、広く他分野での展開も予想され、研究ツールとして重点課題 1、6、7等へ提供する。

開発アプリケーションは、ポスト「京」に限ることなく情報基盤センターや共同利用研等のインフラにおいても効率的に稼働するよう設計、開発し、またスーパーコンピューティング技術産業応用協議会等と連携して、産業利用を念頭に置いて使い勝手のよいアプリケーションとなるよう開発する。これにより、既存のスーパーコンピュータはもちろんのこと、企業内のシステムにおいても広く展開、利用されることが期待できる。また、開発したシミュレータは、スーパーコンピューティング技術産業応用協議会ならびに重点課題6、7等と連携し、産業界での利用促進、普及を図る。

#### (5) 機械学習やデータサイエンスの技術活用の検討

本重点課題では、「複雑で複合的な分子・物質過程に対する電子・分子レベルでの全系シミュレーション」に基づきエネルギーの基盤技術を研究開発している。即ち、研究対象となる物質は無限に存在する。限られた時間・計算機資源の中で、研究成果を最大化するためには、機械学習やデータサイエンスの活用はきわめて重要である。本重点課題ではポスト「京」に向けたシミュレータ開発に注力しているところではあるが、課題参加者においては、他プロジェクト等も含め機械学習やデータサイエンスの技術活用に関し、既に以下のような研究を推進している。

- ・スーパーコンピュータを利用したハイスループット・コンピューティングに基づいたマテリアルズ・インフォマティクスによる太陽電池と半導体光触媒の新材料設計(理研 R-CCS 中嶋)
- ・機械学習による最適な太陽電池材料と半導体光触媒材料のシミュレーション設計に向けたデータベース作成(理研 R-CCS 中嶋)
- ・ハイスループット第一原理 MD 計算による構造-物性相関のデータベース化(物材機構 館山)
- ・電解液・界面被膜トラジェクトリのパーシステントダイアグラム解析(物材機構 館山)
- ・高分子破壊標準データベースプロトタイプ構築(名大 岡崎)
- ・粒子間相互作用パラメータの最適化による、より正確な物性予測の可能性追求(岡山大 田中)
- ・機械学習と反応経路地図を活用した吸着・触媒活性の評価・解析(北大 武次)
- ・機械学習と反応経路地図を活用した化学反応 MD トラジェクトリの自動分類(北大 武次)
- ・DFTB 計算パラメータ開発で群知能の一つである粒子群最適化法を用いた最適解の探索(早大 中井)

これらの研究を活かし、機械学習やデータサイエンスの技術活用を検討する。物質予測に向けた研究にはスーパーコンピュータと人工知能を合わせた活動が重要であり、エネルギー変換・エネルギー貯蔵・物

質変換に向けた材料探索のためのインフォマティクス活用ワーキンググループ（責任者：館山佳尚・物材機構）を設置し、エネルギー問題への積極的活用の可能性を組織的に検討する。本ワーキンググループにて、特に先行的に実施しているスーパーコンピューターと人工知能を組み合わせた研究から、本重点課題内で横断的に活用可能な事例を選定し、注力して研究を推進する。

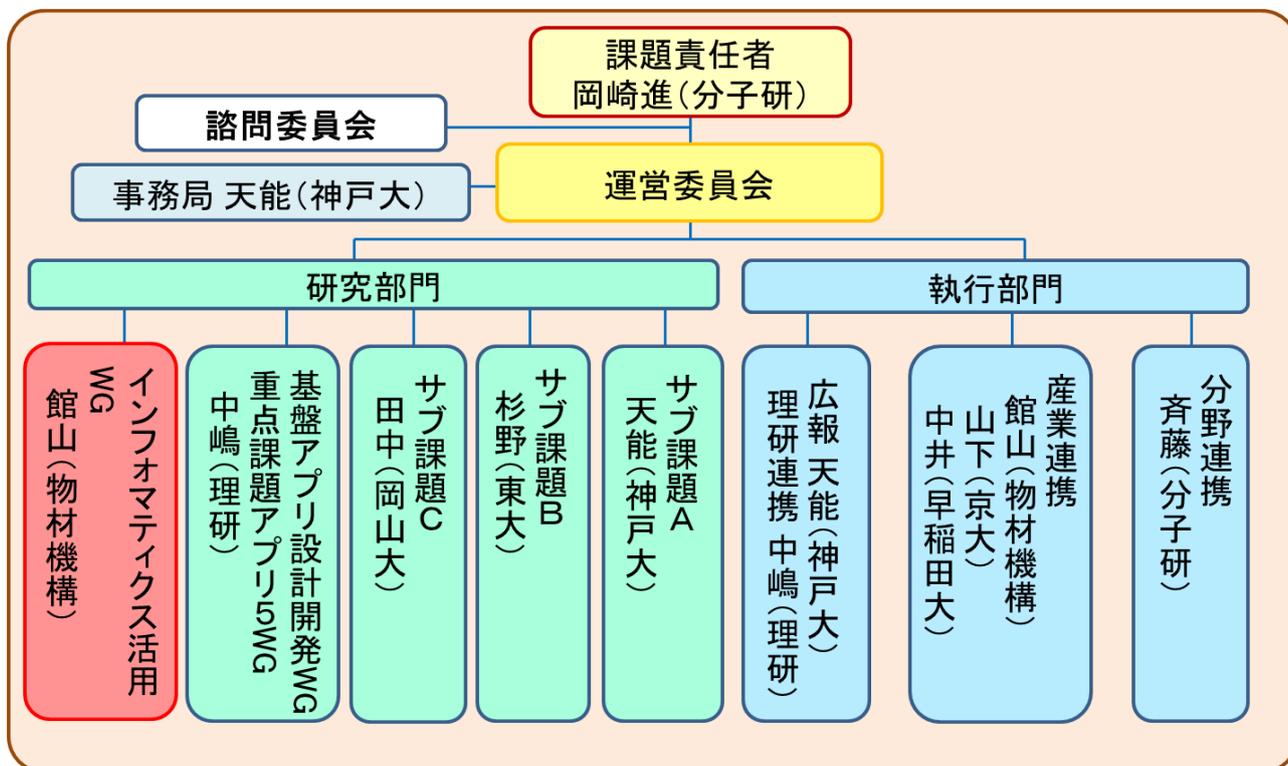


図 1-2 インフォマティクス活用ワーキンググループ設置

(6) 年次計画

|      |               |                           |
|------|---------------|---------------------------|
| 課題全体 | 中間目標 (平成29年度) | シミュレータの基幹機能の整備            |
|      | 最終目標 (平成31年度) | シミュレーション技術の確立と実証と先行的成果の創出 |

| サブ課題名<br>(分担機関・責任者)   | 調査研究・準備研究フェーズ  |  | 本格実施フェーズ   |   |   |  |
|---|--|--|--|---|---|--|
|   | 平成26年度   | 平成27年度   | 平成28年度   | 平成29年度  | 平成30年度  | 平成31年度   |
| サブ課題A<br>新エネルギー源の<br>創出・確保 - 太陽<br>光エネルギー<br>(神戸大学・天能精<br>一郎) | <p>(目標)<br/>シミュレータと<br/>研究体制の明確<br/>化</p> <p>(実施内容)<br/>・ 光合成用の強<br/>相関電子状態ソ<br/>ルバ (3種類) の<br/>仕様と大規模<br/>DFT・TDDFT法の並<br/>列化規格決定</p> <p>・ 実験や企業と<br/>の連携の組織化</p> | <p>(目標)<br/>シミュレータ開<br/>発</p> <p>(実施内容)<br/>【人工光合成】<br/>・ GELLAN<br/>強相関ソルバPHF<br/>法の開発(二次収<br/>束SUHF法、エネル<br/>ギー勾配法)</p> <p>・ マンガンクラ<br/>スタのスピン状<br/>態の検証</p> | <p>(目標)<br/>シミュレータ開<br/>発継続と予備検<br/>証</p> <p>(実施内容)<br/>【人工光合成】<br/>・ GELLAN<br/>強相関ソルバPHF<br/>法の開発継続(二<br/>次収束SUHF法、エ<br/>ネルギー勾配法)</p> <p>・ 強相関ソルバ<br/>ポストPHF法<br/>(スピン拡張理<br/>論)の開発</p> <p>・ モデル空間量<br/>子モンテカルロ<br/>(MSQMC)法の開発</p> <p>・ マンガンクラ<br/>スタのスピン状<br/>態の検証</p> | <p>(目標)<br/>シミュレータ開<br/>発継続と早期成<br/>果創出</p> <p>(実施内容)<br/>【人工光合成】<br/>・ GELLAN<br/>強相関ソルバPHF<br/>法(二次収束SUHF<br/>法、エネルギー勾<br/>配法)構造最適化<br/>法の開発</p> <p>・ 強相関ソルバ<br/>ポストPHF法<br/>(スピン拡張理<br/>論)の高度化</p> <p>・ モデル空間量<br/>子モンテカルロ<br/>(MSQMC)法の開発</p> <p>・ 多核遷移金属<br/>錯体触媒への応<br/>用</p> | <p>(目標)<br/>シミュレータ開<br/>発継続と早期成<br/>果創出</p> <p>(実施内容)<br/>【人工光合成】<br/>・ GELLAN<br/>エンベッディン<br/>グ法への拡張、<br/>PHF法(二次収束<br/>SUHF法、エネル<br/>ギー勾配法)の高度<br/>化</p> <p>・ 強相関ソルバ<br/>ポストPHF法<br/>(スピン拡張理<br/>論)の高度化</p> <p>・ モデル空間量<br/>子モンテカルロ<br/>(MSQMC)法の高度<br/>化</p> <p>・ 多核遷移金属<br/>錯体触媒の計算<br/>実証、応用</p> | <p>(目標)<br/>シミュレータの<br/>検証</p> <p>(実施内容)<br/>【共通】<br/>各種手法の最終<br/>調整。光合成と太<br/>陽電池系に関する<br/>大規模実証計<br/>算。高性能アプリ<br/>を用いた、ポスト<br/>「京」供用開始前<br/>の試用</p> <p>【人工光合成】<br/>・ GELLAN<br/>・ PHF法(二次収<br/>束SUHF法、エネル<br/>ギー勾配法)の高<br/>度化、強相関ソル<br/>バ ポストPHF法<br/>(スピン拡張理<br/>論)の高度化</p> <p>・ 多核遷移金属<br/>錯体触媒の計算<br/>実証、応用</p> |

|  |  |   |   |  |  |  |
|--|--|---|---|--|--|--|
|  |  | <p>【太陽電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ NTChem</li> </ul> <p>大規模DFTの開発</p> <p>・ 励起状態ダイナミックス法の理論構築とプログラムの開発</p> <p>・ 小規模ヘテロジャンクションの検証</p> | <p>・ 光合成シミュレータを用いた新規光触媒設計に向けたクラスターモデルの構築</p> <p>【太陽電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ NTChem</li> </ul> <p>大規模DFTの開発継続、TDDFTを検討</p> <p>・ 励起状態ダイナミックス法の理論構築とプログラムの開発</p> <p>・ 太陽電池の励起状態計算検証</p> <p>・ 有機無機ハイブリッド系のペロブスカイト太陽電池材料の発電機構の解明と非鉛化に向けた理論材料設計</p> | <p>・ 水分解光触媒材料のクラスターモデルの構築</p> <p>【太陽電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ NTChem</li> </ul> <p>メモリ分割版DFTプログラムの開発、大規模TDDFTの開発</p> <p>・ 非断熱過程＋項間交差を含む励起状態ダイナミックス法の開発</p> <p>・ ノンフラーレンアクセプター有機材料の探索</p> <p>・ ペロブスカイト材料のクラスターモデルの構築</p> | <p>・ 水分解光触媒材料の大規模励起状態計算</p> <p>【太陽電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ NTChem</li> </ul> <p>メモリ分割版TDDFTプログラムの開発</p> <p>・ 非断熱過程＋項間交差を含む励起状態ダイナミックス法プログラムの開発</p> <p>・ ドナー・ノンフラーレンアクセプター界面の大規模励起状態計算</p> <p>・ ペロブスカイト太陽電池材料の大規模な計算実証、励起状態計算</p> | <p>・ 水分解光触媒材料の光励起キャリアの緩和過程の解明</p> <p>【太陽電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ NTChem</li> </ul> <p>メモリ分割版TDDFTプログラムの完成・整備・高度化</p> <p>・ 非断熱過程＋項間交差を含む励起状態ダイナミックス法プログラムの開発及び高度化</p> <p>・ ドナー・ノンフラーレンアクセプター界面の電荷分離過程の解明</p> <p>・ ペロブスカイト太陽電池材料の発電機構の解明</p> |
|--|--|---|---|--|--|--|

|  |  |   |  |  |  |  |
|--|--|---|--|--|--|--|
|  |  | <b>【共通】</b><br>・モルフォロジ<br>シミュレーシ<br>ョンのため<br>MODYLAS等との連<br>携 |  |  | <b>【共通】</b><br>・各種アプリケ<br>ションのアル<br>ゴリズムの最適<br>化 |  |
|--|--|---|--|--|--|--|

| サブ課題名<br>(分担機関・責任者)                                  | 調査研究・準備研究フェーズ   |   | 本格実施フェーズ   |   |   |   |
|--|---|---|--|---|---|---|
|  | 平成26年度  | 平成27年度  | 平成28年度   | 平成29年度  | 平成30年度  | 平成31年度  |
| サブ課題B<br>エネルギーの変換・<br>貯蔵 - 電気エネルギー<br>(東京大学・杉野<br>修) | (目標)<br>体制の構築<br><br>(実施内容)<br>・ stat-CPMD、<br>MODYLASの調査的<br>利用とその高度<br>化に向けた調査<br><br>・ 実験家や産業<br>界をまじえた研<br>究体制の構築 | (目標)<br>シミュレータ基<br>本設計<br><br>(実施内容)<br>・ stat-CPMD、<br>MODYLASの高度化<br>の調査・検討<br><br>・ 全系シミュ<br>レーションの調査・検<br>討 | (目標)<br>シミュレータ詳<br>細設計・開発と早<br>期成果創出へ向<br>けた詳細計画<br><br>(実施内容)<br>【二次電池】<br>・ stat-CPMDの電<br>子状態計算カー<br>ネルの高度化<br><br>・ リチウムイ<br>オン電池界面被膜・<br>新規電解液の特<br>性計算<br><br>・ RedMoon（混合<br>MC/MD反応法）の<br>京上での動作、10<br>万原子規模実現<br>と多様な酸化還<br>元反応や重合反<br>応の機能実装<br><br>・ 負極-電解液界<br>面でのSEI膜形<br>成シミュレーシ<br>ョン（10万原子 | (目標)<br>シミュレータ骨<br>格部分の開発と<br>早期成果創出へ<br>向けた課題の解<br>決<br><br>(実施内容)<br>【二次電池】<br>・ stat-CPMDの大<br>規模計算・酸化還<br>元反応計算に向<br>けた高度化<br><br>・ リチウムイ<br>オン電池界面被膜<br>解析・次世代電池<br>の電極材料探索<br><br>・ RedMoon高並列<br>MDソルバー連携、<br>高速化、高並列<br>化、電位制御など<br>機能高度化着手、<br>数十万原子規模<br>拡大へ着手<br><br>・ 複雑な電極モ<br>デルを用いた数<br>十万原子規模のS<br>EI膜形成シミュ | (目標)<br>シミュレータ高<br>度化と早期成果<br>創出<br><br>(実施内容)<br>【二次電池】<br>・ stat-CPMDのポ<br>スト「京」アーキ<br>テクチャに向け<br>た拡張<br><br>・ 次世代電池界<br>面被膜・新規電解<br>液の特性計算<br><br>・ 力場計算連携<br>解析・材料関連の<br>機械学習解析<br><br>・ RedMoon電位制<br>御など機能高度<br>化継続、100万原<br>子規模に向けて<br>拡大へ着手<br><br>・ 電極-電解液界<br>面における被覆<br>膜形成等の生成<br>機構の解明 | (目標)<br>シミュレータ検<br>証と早期成果創<br>出<br><br>(実施内容)<br>【二次電池】<br>・ stat-CPMDのポ<br>スト「京」アーキ<br>テクチャでの化<br>学反応計算検証<br><br>・ 次々世代電池<br>まで含めた新規<br>電池材料設計<br><br>・ RedMoon電位制<br>御や物性推算機<br>能などの高度化<br>実装、100万原子<br>規模実現<br><br>・ SEI膜形成シミ<br>ュレーションに<br>よるSEI膜の輸送<br>特性の理論予測 |

|  |  |  |  |   |  |  |
|--|--|--|--|---|--|--|
|  |  |  | <p>規模)により滑らかなSEI膜形成に添加物が有効であることが判明</p> <p>【燃料電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・STATE：固体電子論と溶液理論に基づく電極計算の試作</li> <li>・白金電極の電流電圧曲線の予備計算に着手</li> <li>・白金代替電極物質の活性化機構の予測に着手</li> </ul> <p>・電解質膜のモルフォロジーの機構解明</p> <p>・MODYLAS：リファクタリング、FMM新規アルゴリズム定式化、メニコ</p> | <p>レーションに着手</p> <p>【燃料電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・STATE：電極計算の高度化</li> <li>・電流電圧曲線の計算の精度向上に着手</li> <li>・活性の不純物依存性の予測</li> </ul> <p>・MODYLAS：FMM新規アルゴリズム実装、粒子対計算新規通信方式の</p> | <p>【燃料電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・STATE：個体電子論と溶液理論を組み合わせたアプリ(高度化されたアプリ)の開発</li> <li>・高度化されたアプリを用いたシミュレーションによるCV実験の再現</li> <li>・様々な酸化物電極を用いた高活性化の指針の獲得</li> <li>・高度化されたアプリの白金代替電極への適用</li> </ul> <p>・MODYLAS：短精度・SIMD化、FMM計算新規通信方式の実装、新規数</p> | <p>【燃料電池】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・STATE：高度化されたアプリの確立</li> <li>・電流電圧曲線の計算予測手法の確立</li> <li>・酸化物電極の高活性化のための理論の構築</li> <li>・高度化されたアプリの白金代替電極への適用と高活性化指針獲得</li> </ul> <p>・MODYLAS：短精度・SIMD化、ロードインバランスの解消、通信チュ</p> |
|--|--|--|--|---|--|--|

|  |  |  |   |  |  |   |
|--|--|--|---|--|--|---|
|  |  |  | <p>ア (FX100, Phi) 対応</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ MODYLAS : 力学的特性評価諸機能、テーブルポテンシャルの整備</li> <li>・ 電解質膜の乾湿サイクルに伴う膜構造変化の解明</li> </ul> | <p>開発、粒子対演算量削減</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ MODYLAS : プロトン移動シミュレーション</li> <li>・ 電解質膜のプロトン移動、ガス移動機構の解明</li> </ul> | <p>学アルゴリズムの開発</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ MODYLAS : 不均一環境下の物質輸送評価手法</li> <li>・ 燃料電池三相界面物質輸送機構の解明</li> </ul> | <p>ーニング、演算チューニング</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ MODYLAS : 不均一環境下の物質輸送評価手法</li> <li>・ 燃料電池三相界面物質輸送機構の解明</li> </ul> |
|--|--|--|---|--|--|---|

| サブ課題名<br>(分担機関・責任者)                             | 調査研究・準備研究フェーズ   |  | 本格実施フェーズ   |   |   |  |
|---|---|--|--|---|---|--|
|   | 平成26年度  | 平成27年度   | 平成28年度   | 平成29年度  | 平成30年度  | 平成31年度   |
| サブ課題C<br>エネルギー・資源の有効利用 - 化学エネルギー<br>(岡山大学・田中秀樹) | <p>(目標)<br/>化学エネルギー等に対するアプリ仕様の検討と体制の構築</p> <p>(実施内容)<br/>・ポスト「京」に向けて開発すべきアプリケーションの仕様と具体的な研究開発課題の検討、平成27年度以降の実施計画を策定</p> | <p>(目標)<br/>基盤アプリの開発への協力とそれに関連するソフトウェアの開発</p> <p>(実施内容)<br/>【ハイドレート】<br/>・メタンハイドレート生成融解ダイナミクスのMODYLASとの連携(水モデルTIP4Pの組み込み)</p> <p>・超音波融解シミュレーションの手法開発</p> | <p>(目標)<br/>基盤アプリの開発への協力と各課題に特化したソフトウェアの開発と一部実行</p> <p>(実施内容)<br/>【ハイドレート】<br/>・メタン、CO<sub>2</sub>、水素貯蔵のためのハイドレートの利用効率化のプログラム開発(安定性基礎理論の展開)</p> <p>・蓄冷材としてのセミクラスレートについて、未解明の構造や熱力学的特性の解析方法を開発</p> <p>・超音波融解シミュレーションの並列計算手法開発</p> | <p>(目標)<br/>基盤アプリの開発への協力と各課題に特化したソフトウェアの開発と実行</p> <p>(実施内容)<br/>【ハイドレート】<br/>・大規模系におけるメタンハイドレート解離機構の解明、多成分ハイドレートへの安定性理論の応用</p> <p>・蓄冷材としてのセミクラスレートについて、未解明の構造や熱力学的特性の解析方法を開発</p> <p>・超音波融解シミュレーションの省メモリ手法開発</p> | <p>(目標)<br/>基盤アプリと各課題に特化したソフトウェアの開発・実行による化学エネルギー有効利用に関する知見の集積</p> <p>(実施内容)<br/>【ハイドレート】<br/>・メタン、水素などの物質貯蔵のためのハイドレート生成のシミュレーション法の確立</p> <p>・セミクラスレートの安定性の基礎理論の構築</p> <p>・超音波融解シミュレーションの高並列時の通信時間削減</p> | <p>(目標)<br/>基盤アプリと各課題に特化したソフトウェアの実行による化学エネルギー有効利用の検証</p> <p>(実施内容)<br/>【ハイドレート】<br/>・ポスト「京」でのハイドレートを利用したエネルギー資源開拓、分離・回収、貯蔵法への展開</p> <p>・セミクラスレートの安定性の展開</p> <p>・超音波融解シミュレーションの超高並列に向けた計算負荷分散向上、高度化</p> |

|  |  |   |   |   |  |   |
|--|--|---|---|---|--|---|
|  |  | <p>・ハイドレート融解機構の解明</p> <p><b>【触媒】</b></p> <p>・担持金属ナノクラスター触媒の反応機構検討</p> <p>・非白金燃料電池触媒BN/Auの高機能化を実験グループと連携して実現</p> <p><b>【CO<sub>2</sub>の分離・回収】</b></p> <p>・DC-DFTB-Kの高度化準備とCO<sub>2</sub>吸収反応に対する温度依存性の検証</p> | <p>・ハイドレート成長機構の解明</p> <p><b>【触媒】</b></p> <p>・反応経路自動探索法と超並列電子状態プログラムの連結(GRRMとSMASHの連結)</p> <p>・金属ナノクラスターによる触媒反応の自動経路探索を行い、クラスター構造変化の効果について知見を獲得</p> <p><b>【CO<sub>2</sub>の分離・回収】</b></p> <p>・DC-DFTB-Kの高度化とCO<sub>2</sub>吸収反応に対するアミン種、濃度依存性の検証</p> | <p>・CO<sub>2</sub>置換機構の解明</p> <p><b>【触媒】</b></p> <p>・反応経路自動探索法による重要触媒反応の機構解明法の検討</p> <p>・GRRMとSMASH・NTChemを連携し、「京」での反応経路探索計算を実現</p> <p>・非白金燃料電池触媒BN/Auの更なる高機能化</p> <p><b>【CO<sub>2</sub>の分離・回収】</b></p> <p>・NTChemへの線形スケーリング理論、凝縮相内高精度熱力学量計算の導入と混合アミン溶液の配</p> | <p>・セミクラスレートの安定性の予測と蓄冷材の効率予測</p> <p><b>【触媒】</b></p> <p>・反応経路自動探索法の燃料電池非白金系触媒への適用</p> <p>・GRRMとSMASH・NTChemを連携した反応経路探索計算の効率化、高度化</p> <p>・非白金燃料電池触媒BN/Auの更なる高機能化</p> <p>・CO<sub>2</sub>有効資源化触媒の機構解明</p> <p><b>【CO<sub>2</sub>の分離・回収】</b></p> <p>・NTChemの高速化、DC-DFTB-Kとの連結とCO<sub>2</sub>吸収反応に対する反応自由エネルギー一図の作成</p> | <p>・セミクラスレートの生成融解機構速度と機構の解明</p> <p><b>【触媒】</b></p> <p>・反応経路自動探索法のCO<sub>2</sub>固定触媒についての検証</p> <p>・GRRMとSMASH・NTChemを連携した反応経路探索計算の効率化、高度化</p> <p>・非白金燃料電池触媒BN/Auの更なる高機能化</p> <p>・CO<sub>2</sub>有効資源化触媒の機構解明と探索</p> <p><b>【CO<sub>2</sub>の分離・回収】</b></p> <p>・ポスト「京」に向けた凝縮相内化学反応シミュレータの最終調整と新規アミンの提案、その効率</p> |
|--|--|---|---|---|--|---|

|  |  |  |   |  |   |   |
|--|--|--|---|--|---|---|
|  |  | <ul style="list-style-type: none"> <li>・電荷間相互作用計算の効率化</li> <li>・塩基性水溶液の基礎的性質の評価</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>・電荷間相互作用計算の効率化</li> <li>・金属元素に対するDFTB計算パラメータの開発</li> <li>・力場 (DFTBパラメータ) の拡張を実施して、幅広いアミン溶液やMOFなどの多孔質材料の吸収性能に対する基礎的知見を獲得</li> </ul> | <p>合比に対する反応性の解析</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・自由エネルギー計算手法の導入、領域分割法による高速化</li> <li>・金属元素に対するDFTB計算パラメータの開発</li> <li>・力場 (DFTBパラメータ) の拡張を実施して、幅広いアミン溶液やMOFなどの多孔質材料の吸収性能に対する基礎的知見を獲得</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>・自由エネルギー計算のサンプリングの並列化</li> <li>・動的フラグメント分割計算の効率化、高度化</li> <li>・金属元素に対するDFTB計算パラメータの開発</li> <li>・CO<sub>2</sub>吸収反応のアミン種配合比依存性の検討</li> <li>・多孔質材料によるCO<sub>2</sub>分離・回収過程の検討</li> </ul> | <p>の検討</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・動的フラグメント分割計算の効率化、高度化</li> <li>・CO<sub>2</sub>吸収反応の自由エネルギー地形解析、金属種依存性の検討</li> </ul> |
|--|--|--|---|--|---|---|

## (7) 実施体制

重点課題の全体推進体制を図 1-3 に示す。分子科学研究所を代表機関（重点課題責任者：岡崎進・分子研）とし、サブ課題 A「新エネルギー源の創出・確保 — 太陽光エネルギー」（責任者：天能精一郎・神戸大）、サブ課題 B「エネルギーの変換・貯蔵 — 電気エネルギー」（責任者：杉野修・東大物性研）、サブ課題 C「エネルギー・資源の有効利用 — 化学エネルギー」（責任者：田中秀樹・岡山大）の小委員会と基盤アプリ設計開発委員会（責任者：中嶋隆人・理研 R-CCS）から成る。代表機関は「HPCI 戦略プログラム分野 2（新物質・エネルギー創成）」における分子科学分野の戦略機関であり、各責任者は「京」を用いた重点課題で高い実績を有している分子科学と物性科学の研究者から選定した。

サブ課題 A は天能（神戸大）が光合成シミュレータ、中嶋（理研）が太陽電池シミュレータの開発を行い、山下（京大）が光触媒や有機薄膜太陽電池における実証研究を主として行う。サブ課題 B では、館山（物材機構）と岡崎（名大）、長岡（名大）が二次電池シミュレーションを、杉野（東大）と岡崎（名大）が燃料電池シミュレーションを主として担当する。サブ課題 C では、田中（岡山大）と奥村（分子研）がハイドレートによるメタン生成やメタンや水素貯蔵の効率化を、触媒を武次（北大）、CO<sub>2</sub> 分離・回収を中井（早大）が担当する。アプリケーション開発については、サブ課題とは独立の基盤アプリ設計開発委員会が推進を行う。既に「京」で実績を有する NTChem（理研）、GELLAN（神戸大）、MODYLAS（名大）、stat-CPMD（物材機構）をポスト「京」における基盤アプリに設定し、ポスト「京」の開発主体である理研 R-CCS とのコデザインによる連携のもとで開発を進める。サブ課題間で情報共有、連携して開発・利用するとともに、神戸大や理研、情報基盤センターに所属する計算機科学者と連携して効果的な開発を進める。

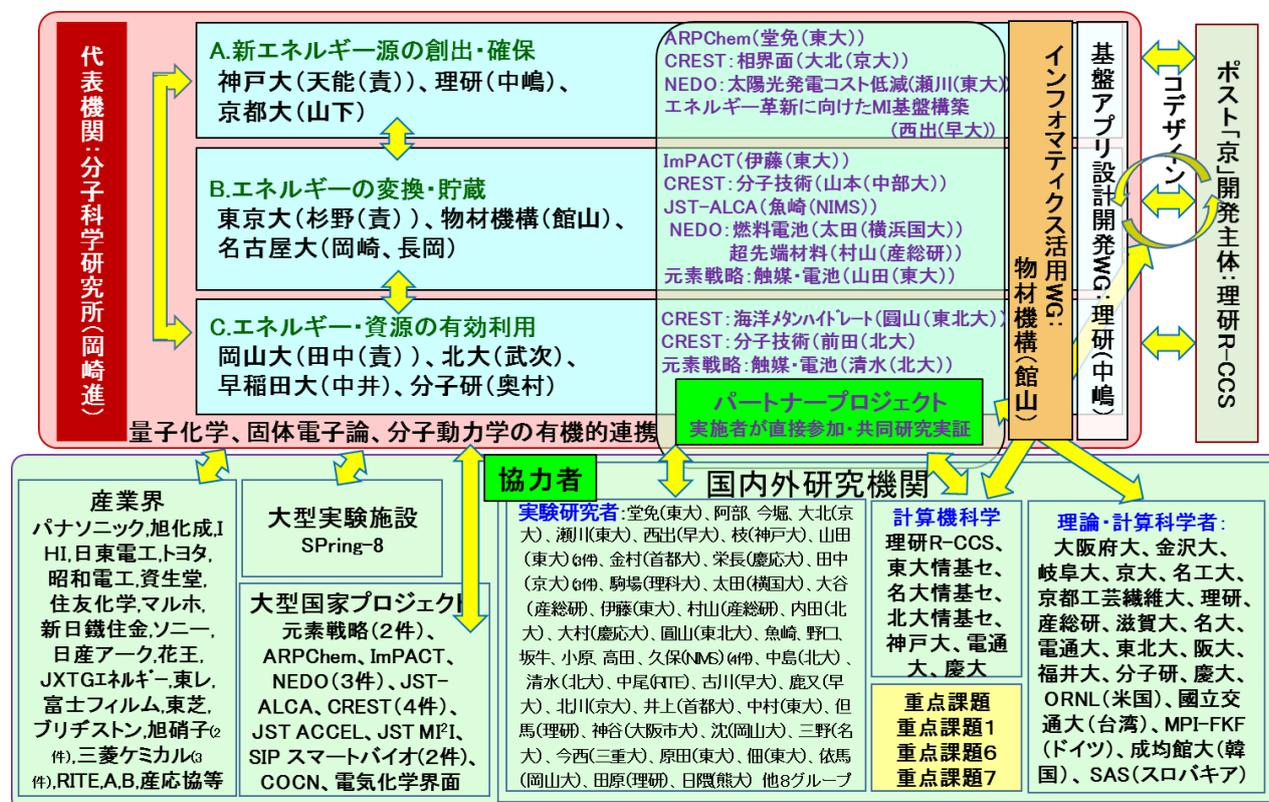


図 1-3 推進体制 実験、産業と連携したオールジャパンで研究を推進

運営体制は図 1-4 及び表 1-2 の通りである。前述の研究部門に加え、広報、産業連携、分野間連携を担う執行部門を運営委員会の下に置く。運営委員会は必要に応じて当該分野の有識者から成る諮問委員会に諮問し重点課題の運営を推進する。

本重点課題は、他のポスト「京」重点課題、大型プロジェクト、実験・大型施設、産業との連携体制を構築している（図 1-5）。ポスト「京」のコデザインでは、重点課題 1、6、7 の SubWG への参画を行う事により、アプリケーション高度化の情報を共有すると共に、類似計算手法を含む推進体制で相乗効果を図っている。重点課題の多くの分担者は、ImPACT（タフポリマー：東大）、CREST（相界面、分子技術、元素戦略）、元素戦略（触媒・電池：京大 ESICB）などの大型プロジェクトを推進しており、エネルギー関連の情報共有による緊密な連携の下で推進を行う。又、企業との連携によるプロトタイプングや NEDO, ARPChem, JST-ALCA との連携体制の構築が進んでいる。協力する実験研究者は SPring-8、検討中の SACLA、J-PARC 等の大型実験施設を利用しており、成果創出に向けて協調した開発体制となっている。更に、スーパーコンピューティング技術産業応用協議会に協力し、開発されるアプリケーションの産業利用の観点から産業連携を進めて行く。

重点課題内での連携を図 1-6 に示す。アプリケーションソフトウェア、触媒、CO<sub>2</sub> 固定を中心に各サブ課題と基盤アプリ設計開発が有機的な協力を可能にする。

重点課題推進においては、計算技術と応用分野における高い専門性から、業務委託に依らない博士人材の登用が不可欠である（表 1-3）。必要な人員の根拠については、2 章で各サブ課題の詳細を記載している。本重点課題では、①アプリケーションの産業利用と、計算により方向付けられる製品化に伴う産学連携と委託、②外国人博士研究員の登用と国際連携によって、現代のアカデミアの情勢に則したキャリア支援を可能にする人材登用に配慮する。

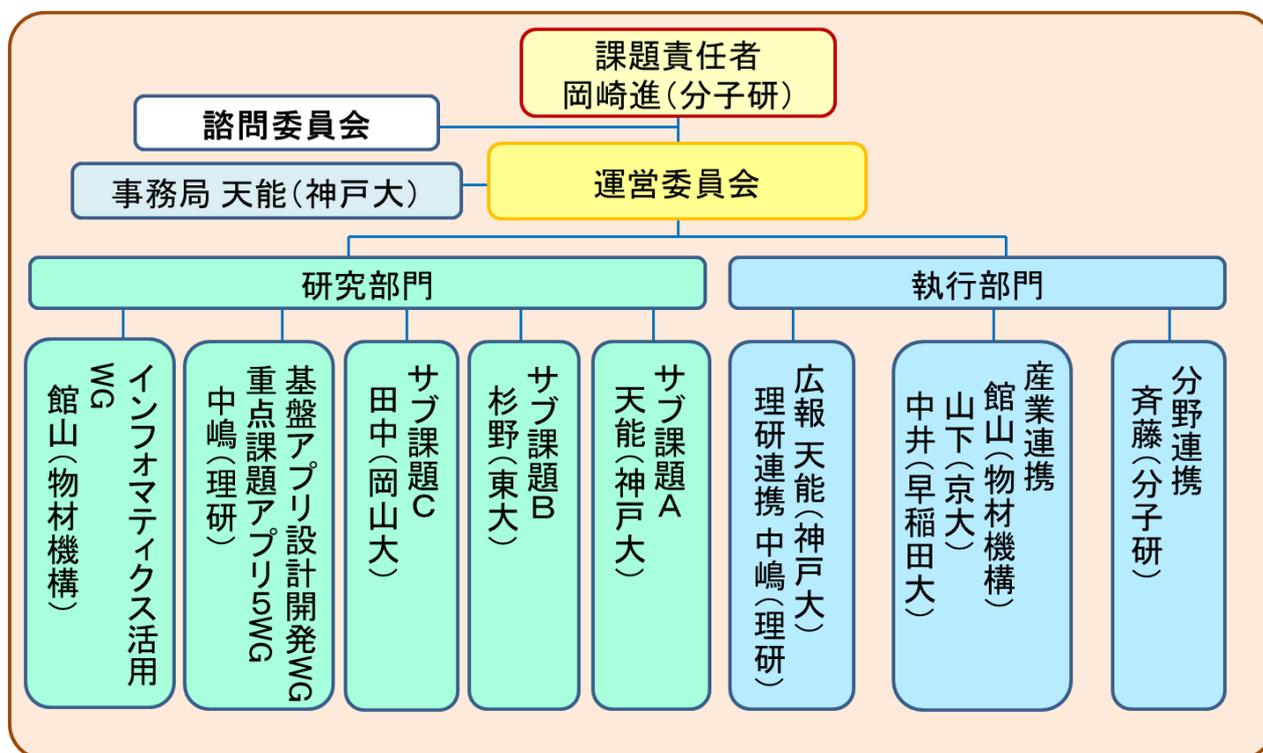


図 1-4 運営体制

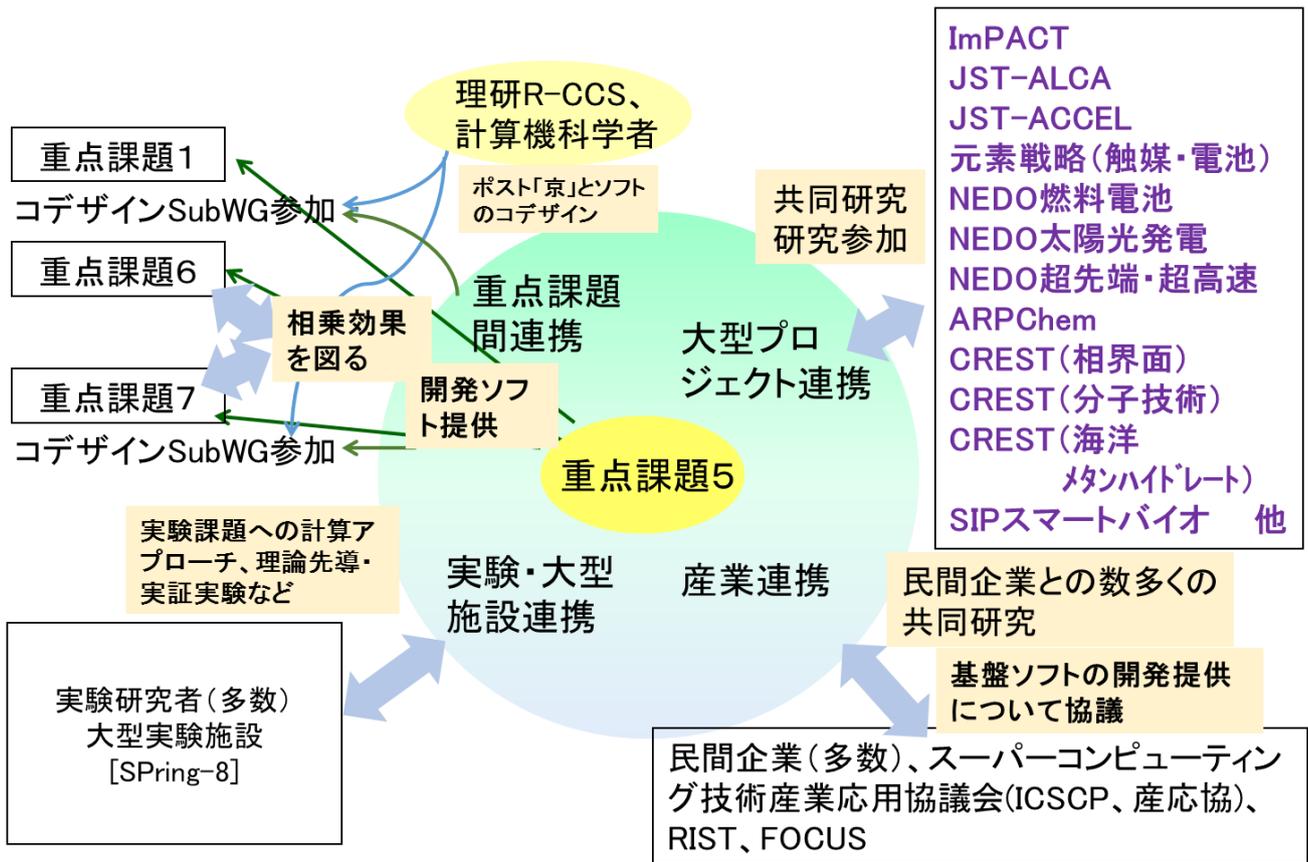


図 1-5 研究開発における連携について

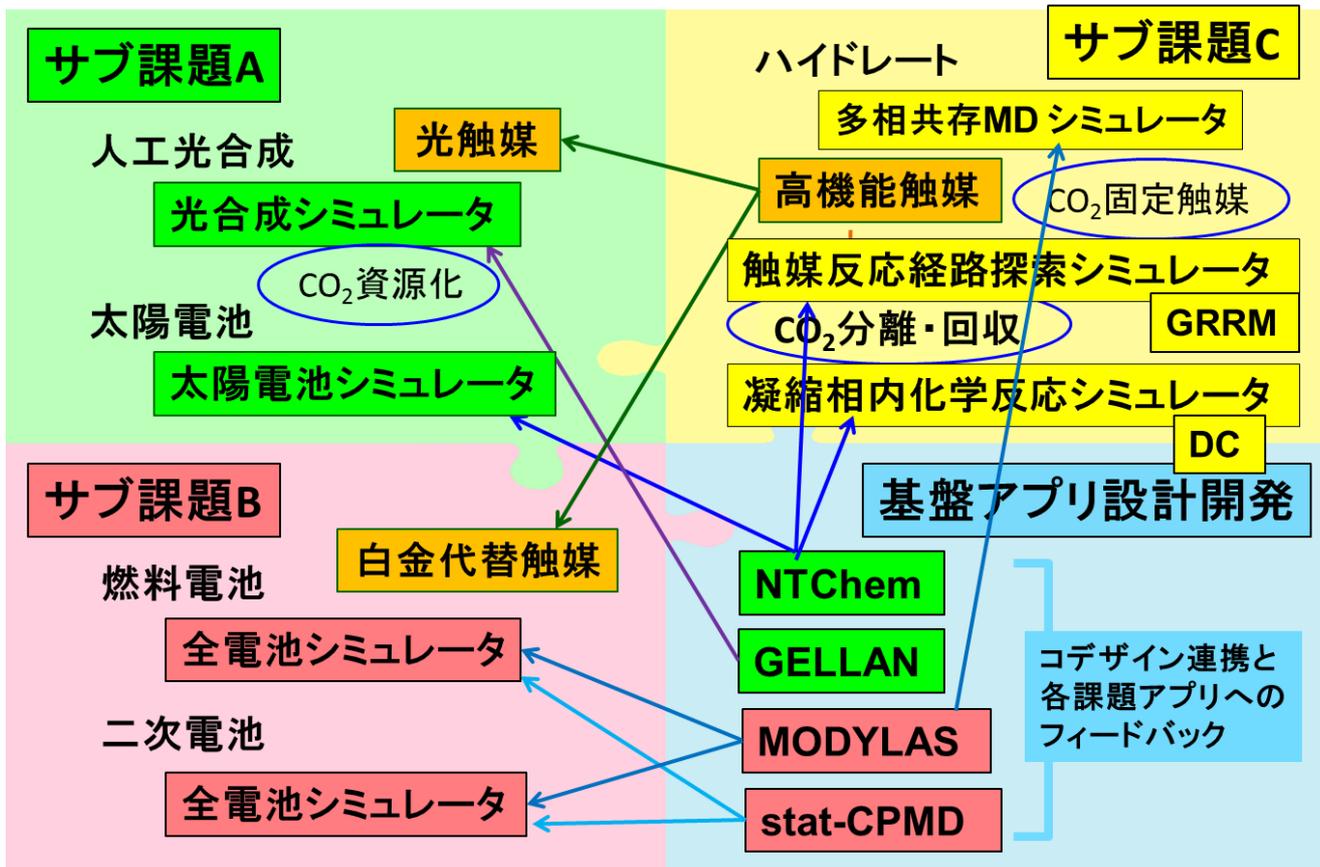


図 1-6 重点課題 5 内連携

## 【開発アプリ普及、人材育成】

主として HPCI 戦略分野 2 における計算分子科学研究拠点(戦略機関 分子科学研究所、現 TCCI)活動の中でポスト「京」において重要な事業を引き継ぐ。本重点課題では、開発する基盤アプリをベースに種々のシミュレータへと展開するが、これらを普及させるため、ポスト「京」上等で利活用するアカデミアや産業界の人材の育成、アプリケーションの普及活動を行う。

上記の目的のため、関係機関、他重点課題、他プロジェクト等と連携し、以下の取り組みを行う。但し、実際に本重点課題に割り当てられた予算に応じて取捨選択を行う。

### ①基盤開発アプリ利用人材育成

#### ②基盤開発アプリのアカデミア・産業界への普及

本重点課題で開発する量子化学、分子動力学法等のアプリケーションは、特に重点課題 1、5、6、7 に共通の基盤として重要なため、上記事業はこれら重点課題間で連携をとって取り組む。さらに、人材育成に関しては、東北大が代表機関となって進めている「計算物質科学人材育成コンソーシアム」事業（責任者：毛利哲夫教授、分子研責任者：斉藤真司教授）と連携し、実施する。

### ①基盤開発アプリ利用人材育成

基盤アプリの普及を目的とし、学生・実験研究者・企業研究者を対象として、HPCI 戦略分野 2 で従来実施してきたウィンターカレッジにおける分子シミュレーション、量子化学の 2 コースを継続的に開講することを検討する。

### ②基盤開発アプリのアカデミア・産業界への普及

重点課題 5 で開発する基盤アプリ等については、京コンピュータ、分子研計算科学研究センター、計算科学振興財団 (FOCUS) に整備し、アカデミア (京、分子研)、産業界 (京、FOCUS) の利用を推進する。このため、基盤アプリ等の情報を計算科学研究センターのホームページに掲載する。特に産業利用の促進にあたっては、産応協で検討している「産業基盤ソフト」構想と連携し、産業への一層の普及を図る。このとき、FOCUS、RIST 等とも一層の連携を推進する。これに加えて、必要に応じて基盤開発アプリを各情報基盤センターや物性研、金材研などの共同利用研計算機センター等にも提供する。

表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制-1

( ) : 年齢、H31 年 4 月 1 日現在

| 実 施 項 目                                      | 代表機関・分担機関  | 課題責任者、サブ課題責任者、サブ課題実施者  |
|--|--|--|
| <b>【運営委員会】</b><br>本格実施項目の検討および承認             | 名大院・工／分子研<br>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>理研・R-CCS<br>京都大学 学際融合教育研究センター<br>東大・物性研<br>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>名大院・情報<br>岡山大・異分野基礎科学研究所<br>北大院・理<br>早大・理工<br>自然科学研究機構・分子研<br>自然科学研究機構・分子研 | ◎岡崎 進 (64)<br>天能 精一郎 (54)<br>中嶋 隆人 (51)<br>山下 晃一 (66)<br>杉野 修 (57)<br>館山 佳尚 (48)<br>長岡 正隆 (60)<br>田中 秀樹 (63)<br>武次 徹也 (54)<br>中井 浩巳 (54)<br>奥村 久士 (43)<br>斉藤 真司 (53) |
| <b>【諮問委員会】</b><br>プロジェクトの進捗状況の把握・評価・改善提言・指導等 | 製品評価技術基盤機構<br>慶大院・理工<br>首都大東京院・都市環境<br>東理大・理<br>東レ<br>慶大・理工<br>神戸大・先端融合研究環   | ◎辰巳 敬 (71)<br>○三上 益弘 (67)<br>金村 聖志 (61)<br>工藤 昭彦 (58)<br>茂本 勇 (46)<br>藪下 聡 (64)<br>横川 三津夫 (59)   |
| <b>【事務局】</b><br>本格実施項目全体の原案作成                | 名大院・工／分子研<br>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>京都大学 学際融合教育研究センター  | ◎岡崎 進 (64)<br>天能 精一郎 (54)<br>山下 晃一 (66)  |
| <b>【課題小委員会】</b><br>(1) サブ課題 A                | 神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>理研・R-CCS<br>京都大学 学際融合教育研究センター   | ◎天能 精一郎 (54)<br>中嶋 隆人 (51)<br>山下 晃一 (66)   |

注 1. ◎ : 委員長、小委員会代表者、○ : 副委員長

表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制-2

( ) : 年齢、H31 年 4 月 1 日現在

| 実施項目             | 代表機関・分担機関  | 課題責任者、サブ課題責任者、サブ課題実施者  |
|------------------|--|--|
| (2) サブ課題 B       | 東大・物性研<br>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>名大院・情報<br>名大院・工／分子研                                     | ◎杉野 修 (57)<br>館山 佳尚 (48)<br>長岡 正隆 (60)<br>岡崎 進 (64)  |
| (3) サブ課題 C       | 岡山大・異分野基礎科学研究所<br>北大院・理<br>早大・理工<br>自然科学研究機構・分子研   | ◎田中 秀樹 (63)<br>武次 徹也 (54)<br>中井 浩巳 (54)<br>奥村 久士 (43)  |
| (4) 基盤アプリ設計開発    | 理研・R-CCS<br>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>名大院・工／分子研<br>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点                      | ◎中嶋 隆人 (51)<br>天能 精一郎 (54)<br>岡崎 進 (64)<br>館山 佳尚 (48)  |
| 【分野間連携 WG】       | 分子研<br>名大院・情報<br>北大院・理<br>京都大学 学際融合教育研究センター<br>名大院・工／分子研<br>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>早大・理工 | ◎斉藤 真司 (53)<br>長岡 正隆 (60)<br>武次 徹也 (54)<br>山下 晃一 (66)<br>岡崎 進 (64)<br>館山 佳尚 (48)<br>中井 浩巳 (54) |
| 【産業連携 WG】        | 物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>京都大学 学際融合教育研究センター<br>早大・理工  | ◎館山 佳尚 (48)<br>山下 晃一 (66)<br>中井 浩巳 (54)  |
| 【広報 WG】          | 神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>理研・R-CCS<br>自然科学研究機構・分子研  | ◎天能 精一郎 (54)<br>中嶋 隆人 (51)<br>奥村 久士 (43)   |
| 【インフォマティクス活用 WG】 | 物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>理研・R-CCS  | ◎館山 佳尚 (48)<br>中嶋 隆人 (51)  |

注 1. ◎ : 小委員会代表者または WG 責任者

表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制-3

( ) : 年齢、H31 年 4 月 1 日現在

| 実 施 項 目   | 代表機関・分担機関   | 課題責任者、サブ課題責任者、サブ課題実施者、協力者等  |
|---|---|---|
| <p>【プロジェクトの総合的推進】</p> <p>【研究部門】</p> <p>(1) サブ課題 A</p> <p>(2) サブ課題 B</p> | <p>北大院・理<br/>早大・理工</p> <p>名大院・工／分子研</p> <p>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br/>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br/>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br/>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br/>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br/>理研・R-CCS<br/>理研・R-CCS<br/>理研・R-CCS<br/>理研・R-CCS<br/>理研・R-CCS<br/>岐阜大／理研・R-CCS<br/>岐阜大／理研・R-CCS<br/>京都大学 学際融合教育研究センター<br/>京都大学 学際融合教育研究センター<br/>日本女子大</p> <p>東大・物性研<br/>東大・物性研<br/>東大・物性研<br/>東大・物性研<br/>東大・物性研<br/>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br/>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br/>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br/>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br/>物材機構・統合型材料開発・情報基盤部門</p> | <p>武次 徹也 (54)<br/>中井 浩巳 (54)</p> <p>◎岡崎 進 (64)</p> <p>◎天能 精一郎 (54)<br/>土持 崇嗣 (36)<br/>Xu Enhua (36)<br/>西口 和孝 (34)<br/>常田 貴夫 (50)<br/>○中嶋 隆人 (51)<br/>嶺澤 範行 (43)<br/>米原 丈博 (44)<br/>植村 涉 (33)<br/>川嶋 英佑 (28)<br/>神谷 宗明 (42)<br/>中塚 温 (36)<br/>○山下 晃一 (66)<br/>金子 正徳 (27)<br/>村岡 梓 (42)</p> <p>◎杉野 修 (57)<br/>春山 潤 (34)<br/>笠松 秀輔 (32)<br/>YAN, Lei (30)<br/>Azhikodan Dilna (31)<br/>○館山 佳尚 (48)<br/>CHOUDHARY Ashu (34)<br/>JALEM Randy (36)<br/>GAO Xichan (31)<br/>袖山 慶太郎 (43)</p> |

注 1. ◎ : サブ課題責任者、○ : サブ課題実施者

表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制-4

( ) : 年齢、H31 年 4 月 1 日現在

| 実施項目            | 代表機関・分担機関   | 課題責任者、サブ課題責任者、サブ課題実施者、協力者等  |
|-----------------|---|---|
| (2) サブ課題 B (続き) | 名大院・情報<br>名大院・情報<br>名大院・情報<br>名大院・工／分子研<br>名大院・工<br>名大院・工<br>名大院・工<br>名大院・工<br>名大院・工<br>名大院・工<br>名大院・工<br>玉川大・工<br>阪大院・工<br>阪大院・工<br>阪大院・工<br>阪大院・工<br>産総研・機能材料コンピュータショナルデザイン研究センター<br>東北大・AIMR<br>名工大院・物質工<br>富士フィルム<br>日産アーク<br>株式会社東芝<br>大阪府大院・理<br>名大・未来材料・システム研究所<br>滋賀大・データサイエンス教育研究センター<br>京大・ESICB<br>福井大院・工<br>京都工芸繊維大院・工芸科学<br>九州工大・情報工学院 | ○長岡 正隆 (60)<br>北村 勇吉 (31)<br>田中 佑一 (29)<br>○岡崎 進 (64)<br>篠田 渉 (48)<br>藤本 和士 (34)<br>吉井 範行 (47)<br>安藤 嘉倫 (41)<br>張 家超 (31)<br>永井 哲郎 (33)<br>坂下 達哉 (35)<br>森川 良忠 (52)<br>濱田 幾太郎 (45)<br>稲垣 耕司 (54)<br>木崎 栄年 (39)<br>大谷 実 (47)<br>赤木 和人 (48)<br>中山 将伸 (44)<br>奥野 幸洋 (48)<br>大脇 創 (46)<br>塚越 隆行 (32)<br>麻田 俊雄 (52)<br>安田 耕二 (50)<br>高柳 昌芳 (38)<br>竹中 規雄 (37)<br>玉井 良則 (53)<br>藤原 進 (52)<br>入佐 正幸 (56) |

注 1. ◎ : サブ課題責任者、○ : サブ課題実施者



表 1-2 平成 31 年度以降の実施体制－6

( ) : 年齢、H31 年 4 月 1 日現在

| 研 究 項 目           | 代表機関、分担機関、協力機関  | 課題責任者、サブ課題責任者、サブ課題実施者、協力者等   |
|-------------------|---|--|
| (4) 基盤アプリ設計<br>開発 | 理研・R-CCS<br>岐阜大／理研・R-CCS<br>神戸大院・科学技術イノベーション研究科<br>名大院・工／分子研<br>物材機構・エネルギー・環境材料研究拠点<br>東大・物性研<br>産総研・機能材料コンピュータデザイン研究センター<br>東北大・AIMR<br>物材機構・情報統合型物質・材料研究拠点<br>名工大院・物質工<br>阪大院・工<br>阪大院・工<br>阪大院・工<br>富士フィルム<br>日産アーク<br>慶大・理工<br>電通大・情報理工<br>金沢大院・自然科学<br>金沢大院・自然科学<br>大阪府大院・理<br>名大・未来材料・システム研究所 | ◎中嶋 隆人 (51)<br>中塚 温 (36)<br>天能 精一郎 (54)<br>岡崎 進 (64)<br>館山 佳尚 (48)<br>杉野 修 (57)<br>大谷 実 (47)<br>赤木 和人 (48)<br>袖山 慶太郎 (43)<br>中山 将伸 (44)<br>森川 良忠 (52)<br>濱田 幾太郎 (45)<br>稲垣 耕司 (54)<br>奥野 幸洋 (48)<br>大脇 創 (46)<br>泰岡 顕治 (52)<br>成見 哲 (48)<br>長尾 秀実 (56)<br>川口 一朋 (38)<br>麻田 俊雄 (52)<br>安田 耕二 (50) |

注 1. ◎ : サブ課題責任者、○ : サブ課題実施者

表 1-3 人員計画-1

| サブ課題 A |     |     |       |   |
|--------|-----|-----|-------|---|
| No.    | H30 | H31 | 主な役割  | 分担内容  |
| 1      | 1   | 1   | ソフト開発 | 光合成シミュレータの開発と高度化 (PHF 法とそのエネルギー勾配法)                         |
| 2      | 1   | 1   | ソフト開発 | 光合成シミュレータの開発と高度化 (量子モンテカルロ法とそのエネルギー勾配法)                     |
| 3      | 1   | 1   | 応用計算  | 光合成シミュレータによる新規光触媒の物質設計                                      |
| 4      | 1   | 1   | ソフト開発 | 太陽電池シミュレータの開発と高度化 (特に高精度な励起状態の計算手法)                         |
| 5      | 1   | 1   | ソフト開発 | 太陽電池シミュレータの開発と高度化 (特に大規模な分子系に対し励起状態を取り扱う計算法)                |
| 6      | 1   | 1   | ソフト開発 | 太陽電池シミュレータの開発と高度化 (特に非断熱過程を含む励起状態ダイナミクスの手法とそのプログラム)         |
| 7      | 1   | 1   | ソフト開発 | 太陽電池シミュレータの開発と高度化 (特に非断熱過程を含む励起状態ダイナミクスとそのため密度汎関数法の改良)      |
| 計      | 7   | 7   |       |   |
| サブ課題 B |     |     |       |   |
| No.    | H30 | H31 | 主な役割  | 分担内容  |
| 1      | 1   | 1   | ソフト開発 | 全電池シミュレータ (stat-CPMD) の二次電池系への応用の推進 (次世代電池界面被膜・新規電解液の特性計算)  |
| 2      | 1   | 1   | 応用計算  | 全電池シミュレータ (stat-CPMD) の二次電池系への応用の推進 (力場計算連携解析・材料関連の機械学習解析)  |
| 3      | 1   | 1   | 応用計算  | 高度化されたアプリを用いたシミュレーションによる CV 実験の再現                           |
| 4      | 1   | 1   | 応用計算  | 様々な酸化物電極を用いた高活性化の指針獲得                                       |
| 5      | 1   | 1   | 応用計算  | 高度化されたアプリの白金代替電極への適用  |
| 6      | 1   | 1   | ソフト開発 | 全電池シミュレータの開発と高度化 (Red Moon 法プログラムの電位制御等の高度化)                |
| 7      | 1   | 1   | 応用計算  | 全電池シミュレータ (RedMoon) の二次電池系への応用推進 (電極-電解液界面における被覆膜等の生成機構の解明) |

|       |     |     |           |   |
|-------|-----|-----|-----------|---|
| 8     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | MODYLAS : FMM 新規並列アルゴリズムの実装                         |
| 9     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | MODYLAS : FMM 新規数学アルゴリズムの開発                         |
| 10    | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | MODYLAS : 演算の単精度化、SIMD 最適化                          |
| 11    | 1   | 1   | 応用<br>計算  | 全電池シミュレータ (MODYLAS) の三相界面における実証                     |
| 計     | 11  | 11  |           |   |
| サブ課題C |     |     |           |   |
| No.   | H30 | H31 | 主な<br>役割  | 分担内容  |
| 1     | 1   | 1   | 応用計<br>算  | MODYLAS を用いてセミクラスレートを含む多成分ハイドレートの MD シミュレーションにおける実証 |
| 2     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | 量子・古典混合 (QM/MM) 分子動力学シミュレーションを行うための高速量子化学計算のソフト開発   |
| 3     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | 反応経路自動探索法+NTChem をベースにした触媒反応経路探索プログラムの開発            |
| 4     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | 凝縮相内化学反応シミュレータの開発と CO <sub>2</sub> 化学吸収液の最適化        |
| 5     | 1   | 1   | ソフト<br>開発 | DFTB パラメータの開発と MOF-CO <sub>2</sub> 系への応用            |
| 計     | 5   | 5   |           |   |

表 1-3 人員計画-2

| まとめ    |                   |     |     |    |
|--------|-------------------|-----|-----|----|
| グループ   | 職種                | H30 | H31 | 累計 |
| サブ課題 A | 事業担当職員<br>(PD など) | 7   | 7   | 14 |
| サブ課題 B | 事業担当職員<br>(PD など) | 11  | 11  | 22 |
| サブ課題 C | 事業担当職員<br>(PD など) | 5   | 5   | 10 |
| 事務局    | 事業担当職員            | 1   | 1   | 2  |
|        | 補助者               | 3   | 3   | 6  |
| 合計     | 事業担当職員            | 24  | 24  | 48 |
|        | 補助者               | 3   | 3   | 6  |

## (8) 必要計算資源

「京」の計算資源量

(単位：ノード時間/年、H31年度のみノード時間/4ヶ月)

|         | H27年度     | H28年度      | H29年度      | H30年度      | H31年度     |
|---------|-----------|------------|------------|------------|-----------|
| 必要計算資源量 | 1,806,531 | 19,345,320 | 19,345,320 | 19,345,320 | 6,335,883 |

※配分値

「京」以外の計算資源量

(単位：「京」換算ノード時間/年)

|         | H27年度   | H28年度     | H29年度     | H30年度     | H31年度     |
|---------|---------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 必要計算資源量 | 684,000 | 7,800,000 | 8,025,000 | 7,660,635 | 7,886,535 |

※H31年度は配分値

「京」について、H27年度は下期(6ヶ月)だけであり、基盤アプリの開発・実証トライアルに250,000ノード時間 x 4本、その他のアプリ開発・準備研究に200,000ノード時間 x 6件と見積もった(配分値:1,806,531ノード時間)。H28年度は、当初、申請時の計算資源量と同等と見込んだが、予算値の確定により実施内容の見直しを行った結果、「京」で必要な計算資源量は27,000,000ノード時間となった(配分値:19,345,320ノード時間)。H29年度以降については、この見積値を採用した。

「京」以外については、シミュレータ等開発のための利用、あるいは「京」の実行準備として利用すること、「京」のような大規模実行は可能性が低いことから、「京」よりも低めに計画している。前述の見直しに併せて「京」以外の計算資源量も計画の見直しを行い、H29年度、H30年度と先行的成果のための計算が増えることを考慮した。利用する計算センターは、名古屋大学情報基盤センターと、H28年度からは分子研計算科学研究センターを予定している。但し、H30年度以降は、「京」の運用状況により、大幅な増加が必要となる可能性がある。

## 2. 研究開発内容詳細

### 2-1. サブ課題 A 新エネルギー源の創出・確保 - 太陽光エネルギー

#### (1) 目的・意義

太陽光を利用して高効率エネルギー変換を行うための理論的研究を行う。対象を光合成系と有機系太陽電池とし、前者では、植物の光合成における明反応の仕組みを電子状態計算により明らかにし、人工光合成系の設計指針への可能性を探ると共に、金属錯体や半導体光触媒での水分解反応機構に関する基礎研究を行う。また、有機薄膜太陽電池の高効率化に向けて、分子設計とモルフォロジーや界面の制御に関する理論研究を行う。得られた知見をもとに、エネルギー変換効率の高い有機系太陽電池や人工光合成を実現するための新規エネルギー材料をシミュレーションと実験の共同研究により見出し、資源問題の解決に貢献する。

石油を輸入に頼る我が国では、それに代替する化学原料の確保が重要な課題である。太陽光によって水分解を行う人工光合成では、水素燃料の利用やCO<sub>2</sub>との合成触媒反応による化学品の製造が期待され、実用化に向けた研究開発が国プロとして進められている。その一方で、高効率の水分解を実現する光触媒の開発には未解決な要因が多く、計算科学的なアプローチを援用した集約的な開発が必要である。本研究項目では、主に階層的量子化学プログラム GELLAN をベースとした光合成シミュレータを開発し、ポスト「京」の十分な活用を可能にする基盤技術の整備を行う。更に、開発されたアプリケーションを用いて、半導体光触媒や植物を模した多核金属錯体の反応メカニズムの解明を行い、高効率の光触媒設計の明確な指針を示す。

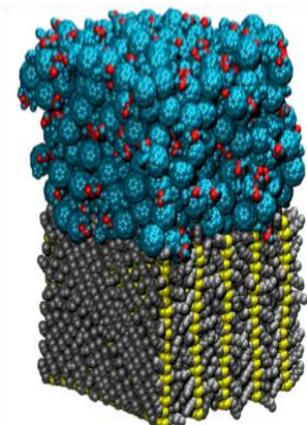


図 2-1-1 有機太陽電池のドナー・アクセプター界面

一方、太陽光発電は太陽電池を用いて光起電力効果を利用し、太陽光エネルギーを電気エネルギーへ直接変換できる発電方式であり、無尽蔵にある太陽エネルギーの有効利用として、再生可能エネルギー創生の要である。太陽電池は光吸収材料あるいはデバイス形態などにより、多くの種類に分類されるが、光吸収層に有機化合物を用いた有機太陽電池は、軽量、フレキシブルで意匠性が高く、塗布プロセスにより安価に製造することができることから、次世代太陽電池の主流になると期待され、現在世界中で活発な研究開発競争が行われている。本課題では、有機太陽電池における光エネルギー変換の高効率化を目指し、NTChem を中心とした太陽電池シミュレータを開発することにより、太陽光により生成したエキシトン（クーロン相互作用した電子-正孔対）の有機電子供与体（ドナー材料）・有機電子受容体（アクセ

プター材料) 界面 (図 2-1-1) での電荷分離過程を高効率に起こす有機物材料を探索する。またドナー・アクセプター活性層界面のモルフォロジーについて、高効率化に有効なバルク構造の実現プロセスを分子論的に明らかにする。

## (2) 実施内容

### 研究項目 1 人工光合成

沈・神谷らにより光化学系 II (PSII) の酸素発生中心であるマンガクラストの高分解能 X 線構造が明らかにされ (図 2-1-2)、植物を模した人工光合成系の開発や類似の錯体構造を持つ活性中心のデザインが期待されている。鉄やマンガクから成る多核金属錯体の複雑なスピン状態や水分解反応を詳細に研究するためには、強い電子相関を定量的に取り扱う必要がある。これを実現するために、モデル空間量子モンテカルロ法とスピンプロジェクションの手法の主に二つの強相関ソルバからなる光合成シミュレータの開発を行う。励起状態に対するエネルギー勾配法を整備し、電荷分離や反応中間体の構造を特定する。ESR や EDNMR スペクトルをプローブとすることによりモデルの検証を行うとともに、ルテニウム錯体や半導体光触媒表面での反応についても理論的な知見を集め、有効な人工光合成系の設計に必要な条件を集約的に研究する。

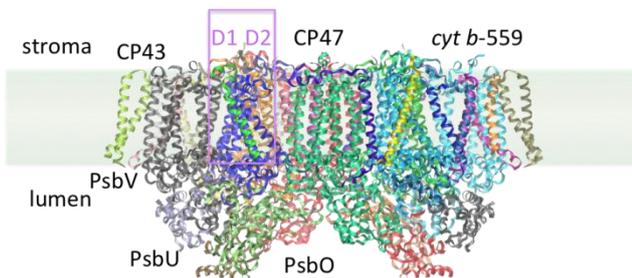


図 2-1-2 高分解 X 線スペクトルで得られた PSII の構造

天然光合成系については、実験研究と連携してシミュレーション研究を実行し、太陽光を用いた水分解反応のメカニズムと研究成果の人工光合成への展開を目的とした実験-理論の相互協力研究を先行成果として実施する。シミュレーションの有用性は XRD や XFEL の分解能では不可能な水素原子の位置を含む構造最適化が可能であるのみならず、水分解反応の遷移状態の構造解明、さらには反応で生成するプロトン-電子結合輸送反応のダイナミクスの解明など実験的研究が困難な問題を解明しうるところにある。本研究では特に、大規模分子計算を可能にする NTChem と十分な計算資源を使うことで、未だ議論の余地が残されている光合成水分解サイトの構造決定を行う。水分解反応は Kok サイクルと呼ばれる 5 段階の触媒サイクルで進行する (図 2-1-3)。沈・神谷らの XRD 構造は S1 状態と称される最も安定状態で観測されたものであるが、現在 X 線損傷の程度が問題になっており、その心配のない XFEL 実験による精密化が進行中である。一方、S0、S1、S2、S3 状態における水分解触媒サイト CaMn405 クラスターの Mn-Mn 距離、Ca-Mn 距離は EXAFS による実測値が報告されているが、S1 以外の状態の XRD、XFEL の実験値は未

だ報告されていない。そこで、本研究ではこれらの状態に対し可能な構造を大規模 QM/MM 法を使い、構造計算、電子状態解析計算、スピン状態解析計算により解明する。

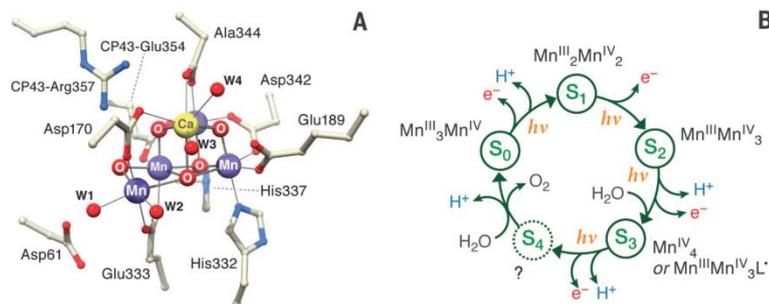


図 2-1-3 酸素発生中心(OEC)の構造と Kok サイクル

更に、太陽光エネルギーを化学エネルギーに変換する光触媒に関しても材料設計を行う。特に水直接分解により水素と酸素の発生を担う光触媒材料について、従来よりも長波長の光を吸収する光触媒材料を探索する。無機化合物あるいはそれらを種々に組み合わせた固溶体を大規模クラスターでモデル化し、時間依存密度汎関数法計算によりバンドギャップの理論的予測を行う。さらに異種元素ドーピングなどにより、バンドギャップ、水の酸化還元準位とのバンドアライメントの最適化を行う。光合成シミュレータを用いた新規光触媒設計と助触媒の最適化の応用研究を行う。

強相関ソルバを含む人工光合成シミュレータの開発、新規光触媒設計等は神戸大（天能）、PSII の研究は理研（中嶋）、半導体光触媒の材料設計は京大（山下）が主に行う。

## 研究項目 2 太陽電池

有機太陽電池では、まず①太陽光によって、②有機電子供与体でエキシトンが生成し、③有限の寿命で相界面を拡散し、④ドナー・アクセプター異種界面で電荷分離し、⑤電荷移動（キャリア輸送）される。光照射時に両端子を解放した場合の出力電圧を開放電圧  $V_{oc}$ 、短絡した場合の電流を短絡電流  $I_{sc}$ 、最大出力と  $V_{oc} \cdot I_{sc}$  の比を FF とすると、変換効率は  $V_{oc} \cdot I_{sc} \cdot FF$  を入射光エネルギーで割ることにより与えられる。単結晶シリコンでは 30% に迫るデータもあるが、現在、最も効率の高い有機太陽電池でも 12% であり、実用化に向けて、変換効率の向上が急務である。

高効率の太陽電池を実現するには、開放電圧や短絡電流の向上のために電荷再結合等の損失要因を取り除く必要があり、分子設計と界面・モルフォロジー制御による統合的な物質デザインが要求される。有機系を中心にスピン制御や熱電変換機構に基づく高効率太陽電池を実現するための大規模電子状態シミュレータの開発をおこない、1 万原子規模からなるヘテロ接合界面の励起状態・電荷分離状態の研究を行う。さらに、10 万原子規模の動力学シミュレーションに基づくバルク接合とメソスコピックな構造形成・冷却過程の研究を行い、太陽電池に関わる重要な問題の解決を図る。

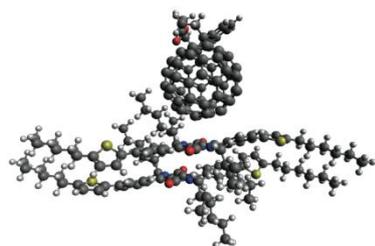


図 2-1-4 有機太陽電池のドナー・アクセプター界面のモデル

高い変換効率を有する太陽電池材料のシミュレーション設計を実現するために、NTChem を中心に備えることで太陽電池シミュレータを開発する。具体的には、数千~1 万原子規模の大規模分子系であるドナー・アクセプター界面 (図 2-1-4) での電荷分離状態をシミュレーションするため、励起状態における電子状態計算を可能にする時間依存密度汎関数法に対してメモリ分割を施した効率の良い並列アルゴリズムを開発し、そのプログラムを実装する。加えて、より大規模なドナー・アクセプター界面での電荷移動・電荷分離過程をシミュレーションするため、大規模な分子系を領域分割して選択的に励起状態を取り扱う計算法を新たに開発し、シミュレータに実装する。現状の時間依存密度汎関数法計算で用いられている交換相関汎関数では有機系太陽電池のエネルギー変換機構においてもっとも重要な過程だと考えられる電荷移動状態を正確に記述することが難しいため、電荷移動状態を正確に表現することができる新たな交換相関汎関数の開発も同時に行う。有機系太陽電池のエネルギー変換機構を確立するため、開発した励起電子状態計算法に基づいて電子移動カップリングを見積もる手法および、非断熱過程を含む励起状態ダイナミクスの手法とそのプログラムを開発し、太陽電池シミュレータに実装する。

有機太陽電池の変換効率が低い原因として、まず有機物材料の誘電率が小さく、光吸収により生成した電子-正孔対がドナー・アクセプター材料界面へ拡散する過程で容易に再結合することが上げられる。さらに界面での電荷移動状態の再結合 (Geminate Recombination) や電荷分離後の自由な電子と正孔の再結合 (Bimolecular Recombination) が変換効率を下げる主要な素過程として考えられる。これらの要素を種々のドナー・アクセプター界面について解析し、変換効率との相関を明らかにする。 $V_{oc}$  がドナー材料の HOMO とアクセプター材料の LUMO の軌道エネルギー差に相関することから、これまで計算化学に基づいた有機分子材料設計が行われてきたが、変換効率の理論的限界は 10 数%と予測され、実用化のめどとされる変換効率 15%に向けては、 $I_{sc}$  を飛躍的に増加させる有機物材料設計指針が不可欠である。 $I_{sc}$  は有機電子供与体・有機電子受容体の相互作用と光誘起による電子物性に強く依存しており、高精度な電子状態計算により予測可能である。これらの電子物性は物質の誘電率に依存するので、無機物に匹敵する高い誘電率をもつ有機物材料の設計による高効率化を目指す。

更に、太陽電池シミュレータを用い、ペロブスカイト太陽電池の光電荷移動機構や自由キャリア機構の解明に向けた研究を行う (図 2-1-5)。

太陽電池シミュレータは理研 (中嶋) が主体となって開発を行い、新規手法を用いた有機系太陽電池の高効率化と次世代太陽電池設計の実証は京大 (山下) が主導的に行う。

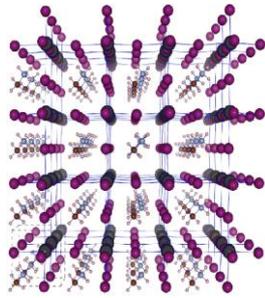


図 2-1-5 鉛ペロブスカイト材料の構造

### (3) 目標・期待される成果

#### アウトプット成果：

##### ・平成29年度終了時

電子相関理論と密度汎関数の両面からポスト「京」による光合成系の理論研究を可能にする計算手法及び、構造や反応機構に関して実験研究と関連づける分光学的プローブの基本設計とプロトタイプ実装を行う。太陽電池シミュレータにおいては、大規模な分子系の励起状態計算の実現に向けて、数千から1万原子系の基底状態に関する密度汎関数計算のためのメモリ分割版プログラムを完成させ実装する。有機系太陽電池のエネルギー変換機構を解明するため、電子移動カップリングを見積もる手法および、非断熱過程を含む励起状態ダイナミクスの手法とそのプログラムを開発し、太陽電池シミュレータに実装する。

上記研究で開発した光合成シミュレータを用いた新規光触媒への応用研究を実施すると共に、太陽電池シミュレータを用い、ペロブスカイト太陽電池の光電荷移動機構を解明する。

##### ・本格フェーズ終了時

10<sup>20</sup>以上の複雑な電子配置が重要な寄与をする電子系の高精度計算を可能とする光合成シミュレータが完成し、複雑な組成を持つ半導体光触媒の吸収特性・反応制御や、電子相関が強くこれまで取り扱いが困難であった多核金属錯体による人工光合成系の定量的な取り扱いを可能とする。天然光合成系において、未だXRD・XFEL構造の得られていないS2状態の最も確からしい構造をシミュレーションにより確定し、今後のXFELの実験に有用な知見を与えると同時に、人工光合成系で水分解反応を実現するために重要となる金属錯体の構造因子に関し有用な情報を提案する。

数千から1万原子系の大規模な分子系の励起状態に関する時間依存密度汎関数計算のためのメモリ分割版プログラムを完成させ、太陽電池シミュレータに実装する。太陽電池シミュレータを使うことで、大規模な太陽電池材料の基底状態と励起状態での挙動や物性をシミュレーションし、短絡電流  $I_{sc}$  を飛躍的に増加させる有機物の材料設計に必要な励起状態ダイナミクス計算が可能になる。

光合成シミュレータを用いた新規光触媒設計と助触媒の最適化を行う。また、太陽電池シミュレータを用いペロブスカイト太陽電池の高効率性に関わる自由キャリア機構を解明する。更に、ドナー・アクセプター界面の電子的特性と変換効率との相関に基づいて、 $I_{sc}$  を飛躍的に増加させる有機物材料設計を行い、実験研究者との連携で高効率な太陽電池を実現すると共に、実用化のめどとされる変換効率15%に向けた提案を行う。

#### ・ポスト「京」運用開始5年後

天然と既存の人工光合成系の機構解明を行うとともに、新規の半導体および多核金属錯体による人工光合成系の設計を行いプロトタイプ実証への指針を明確化する。

天然光合成系で得られた知見をもとに、天然の光合成系に学び模倣した人工光合成のための新規触媒開発を行う。可視光領域で水から水素を効率良く作ることでできる光触媒の理論設計を実現する。

人工光合成化学プロセス技術研究組合（ARPCHEM）はNEDOプロジェクトで太陽エネルギーを利用した光触媒による水からの水素製造で2015年3月世界最高レベルでの太陽光エネルギー変換効率2%を達成し、2021年度末10%達成を目指しているが、大規模理論計算による光触媒材料探索により同プロジェクトと連携することにより、目標達成に寄与できる。

太陽電池のさらなる高効率化を目指して、企業と連携して分子レベルからメソスコピックな物質デザインを進め、太陽光を無駄なく使うためのアップコンバージョン、ダウンコンバージョン等による新規変換機構に基づく太陽電池、新規有機物を用いたタンデム型太陽電池、また熱電変換とのハイブリッド型太陽電池の知見を得る。

ソフトウェアの普及とユーザーの利便性の向上を考え、シミュレータの入力支援プログラムや可視化などの入出力の機能を充実させることでシミュレータの幅広い分野での活用・普及に努める。また、サブ課題Cと連携してGRRM法を用いた網羅的な化学反応経路探索などの機能を拡張することで、太陽電池シミュレータの適用範囲を太陽電池材料に限らず、不均一系の触媒設計にも利用できるようにする。

#### アウトカム成果：

##### ・ポスト「京」運用開始5年後

開発されたシミュレータが普及する。新規変換機構に基づく太陽電池について企業との連携によるプロトタイプ実証を開始する。

##### ・ポスト「京」運用開始10年後

シミュレータによる高効率な光エネルギー変換物質の研究が産学で一般化する。新規変換機構に基づく太陽電池について企業との連携により世界に先駆けて実証する。

分子・物質レベルのミクロな情報から材料の物性や挙動を予測できるマテリアルデザインのための総合的なモデリング/シミュレーション環境を提供し、触媒、医薬品、ポリマー、燃料電池、太陽電池、強相関物質などの製品化をターゲットとして多くの分野のニーズに資する統合シミュレータとして普及する。

#### (4)「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと

「京」ではナノスケールのデバイス材料のポストハートリーフォック計算が行われ、高精度なエナジエティックスや開放電圧に関連するイオン化エネルギーの計算が行われている。モデル空間量子モンテカルロ法においても、マンガクラストのスピン状態の計算が行われ、著しい成果をあげている。人工光合成系の統合シミュレーションには $10^{20}$ 以上の電子配置を用いた高精度計算による実証が不可欠であるが、「京」では数年から数10年の計算リソースが要求され、実現が不可能である。ポスト「京」で開

発する人工光合成シミュレータでは、このような計算が1週間から1ヶ月程度で可能となり、計算機による光合成物質の設計の実現性が見えて来る。

太陽電池関連の計算については、「京」において数百原子までの分子の励起状態の量子化学計算が実現されているが、有機系太陽電池におけるヘテロジャンクションを含めた現実系界面のシミュレーションには10,000原子規模の取扱いが不可欠である。メモリ分割を施した効率の良い並列アルゴリズムを開発・実装することで、「京」では1年（計算資源の問題で実際には京では不可能）を必要として成果を見込むことができない計算をポスト「京」により1週間で終了することが可能となる。

### (5) 実施体制

サブ課題Aの実施体制を図2-1-6に示す。光合成シミュレータの開発は天能（神戸大）が、太陽電池シミュレータは中嶋（理研）が主体となって開発を行う。シミュレータの開発には、計算科学者（岐阜大、電通大、分子研）と計算機科学者（神戸大、理研）との協力の下でポスト「京」の仕様と言語を十分に考慮した上で進める。又、山下（京大）を中心に、太陽電池と光触媒の先行的な応用研究を行い、ポスト「京」運用に向けた知見の蓄積を行う。太陽電池に加え天然光合成やARPCHEMで研究を進める実験研究者を中心とした連携体制を整備するとともに、プロトタイピングに向けた企業との協力を図る。

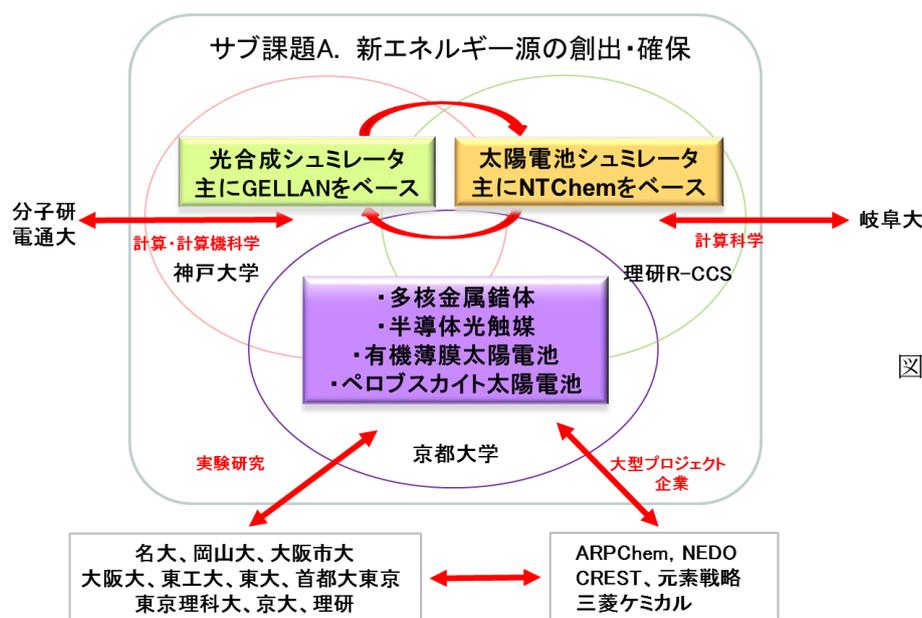


図 2-1-6 サブ課題 A 実施体制

## 2-2. サブ課題B エネルギーの変換・貯蔵 — 電気エネルギー

### (1) 目的・意義

太陽光発電などを用いて創生された一次エネルギーを化学エネルギーとして安定に貯蔵し、消費時に電気エネルギーに変換して利用するためのインフラの構築が始まっている。蓄電社会や水素社会の実現にとって最も重要な基盤技術は、二次電池技術と燃料電池技術である。これらの電池は電気自動車や燃料電池自動車（図 2-2-1）、家庭用電源装置として既に商用化され、今後急速な普及が見込まれている。それだけでなく、今後はスマートグリッドや産業用電源等の大型用途への利用が始まる。これらの推進のためには、電池の低コスト化、高信頼性、高耐久性、汎用元素の利用等が求められる。より優れた二次電池の開発に加え、燃料電池に関しても、白金触媒と高分子膜を用いた固体高分子形燃料電池が燃料電池車やエネファームとして商用化されているが、今後の普及には、より低価格な触媒と高分子膜等による耐久性や信頼性・エネルギー効率の向上が不可欠となる。



図 2-2-1 燃料電池車

近年、「京」コンピュータを用いた高度計算機利用において各部材のバルク特性にとどまらず材料界面で起こっている現象に対しても原子・分子スケールでの計算がおよびつつあり、最新の実験結果と組み合わせた微視的な構造の決定や機構の解明につなげることが可能になってきた。この最新の科学的手法を電池開発に向けて更に発展させ、諸外国に先駆けて現実の電池開発で利用可能な基盤技術として開発・提供することは、わが国の競争力を高める重要な要素となる。

そこで本サブ課題では、実験では決してみることのできない電極界面近傍での反応と物質移動のミクロ機構を、ポスト「京」を用いて明らかにすることに注力し、実験研究者と協力して、電池全体過程を明らかにしていく。このため、これまで開発してきたシミュレーション手法を多様かつ複雑な電池過程に適用できるように全電池シミュレータを微視的理論に基づいて発展させる。これを用いて、電極・電極被膜・電解質膜・電解液界面挙動に関する学理を構築し、各電池部材の最適材料設計・探索を目指した総合的な研究活動を行う。

### (2) 実施内容

実験科学者・企業研究者と連携を取りながら、様々な計算手法（第一原理 MD、古典 MD、QM/MM 法、Red Moon 法（混合 MC/MD 反応法）など）を駆使して全電池シミュレータを発展させ電極・電解質界面を含むナノスケールの構造や電池過程の解明が可能であり、しかもそれに基づいた材料設計や電池特性の予測についても実行可能にする。

## 研究項目 1 二次電池

リチウムイオン電池の電解液および電極-電解液界面における電子状態と原子配置に関する第一原理分子動力学計算 (図 2-2-2) および、化学反応の効果を取り入れた Red Moon 計算 (混合 MC/MD 反応計算) を発展させ、電極-電解液界面の構造および特性を予測可能とする。電池機能を左右する界面保護膜 (SEI 膜: Solid-Electrolyte Interphase 膜) の形成機構に注目し SEI 膜を通したイオンの電極内部への移動のシミュレーションを行うことにより電極や電解液などの材料設計につなげるための手法を構築する。この目的のために stat-CPMD の反応自由エネルギー計算機能の強化や RedMoon の計算規模の拡大等を行い、より現実的な状況下での計算の高精度化を果たす。構築されたシミュレータをリチウムイオン電池に適用して早期成果創出を行うとともに、次世代二次電池の問題に取り組む。

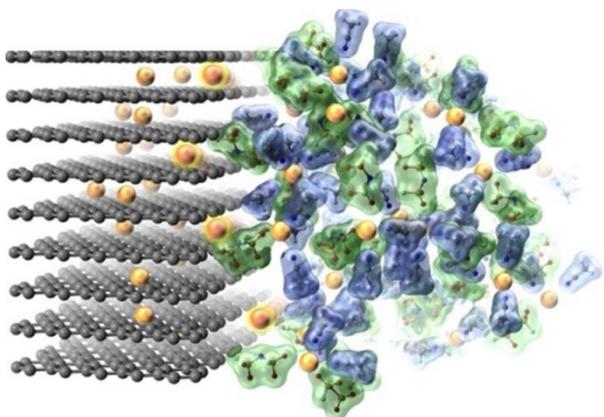


図 2-2-2 電極被膜・電解液界面

次世代二次電池においては、全固体電池やナトリウムイオン電池等が重要となる。これらにも対応できるように電極-固体電解質界面への計算の拡張を行うとともに、イオン半径やルイス酸性の異なるイオンに関するイオン輸送の向上等を目指した物質探索が可能なシミュレータを構築する。さらに次々世代電池においては、リチウム空気電池や多価イオン電池における界面酸化還元反応の制御等が問題になる。これらの問題への対応も視野に入れたシミュレータ開発を行う。また、材料探索に資するシミュレーションも行い早期成果を創出する。

また、二次電池における不均一環境下でのイオン輸送など電池材料としての機能発現の分子過程を解明する。このため、古典分子動力学シミュレーションに基づいて、イオン輸送の最適化のために必要な電極界面近傍のイオン伝導度の解析手法を確立する。特に、位置に依存するイオン移動の評価方法を確立し、全原子シミュレーションに基づいて、樹脂表面の化学的状態や表面からの距離の関数として伝導度を評価する。

stat-CPMD を用いた第一原理シミュレーションは物材機構 (館山)、MODYLAS を用いた分子動力学シミュレーションは名大院工 (岡崎)、RedMoon を用いた混合 MC/MD 反応シミュレーションは名大院情報 (長岡) がそれぞれ担当する。また、この三者および東大物性研 (杉野) が連携して各シミュレーション結果に基づき電池としての機能を予測するための手法を構築する (図 2-2-3)。

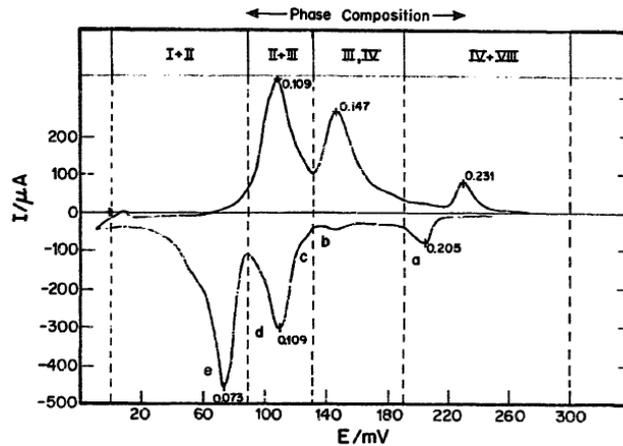


図 2-2-3 CV 曲線

出典：J. Electroanal. Chem. 421, 79 (1997)

## 研究項目 2 燃料電池

高効率で高耐久性な燃料電池の電極触媒 (図 2-2-4) の実現に向けて、固体電子論と溶液理論を組み合わせることにより電位差印可に起因して形成される電気二重層を的確に取り扱い、電極界面の構造や反応自由エネルギーを計算することが可能な電極シミュレータを、第一原理分子動力学法 (STATE) をベースに開発する。燃料電池反応機構を解明したり反応抵抗を予測したりするのに必要な物性値を電極シミュレーションに基づき導出する。また、遷移金属酸化物電極などの構造や反応に関する電極シミュレーションを行い、次世代の白金代替燃料電池材料の開発指針の獲得を実験グループと共同で目指す。

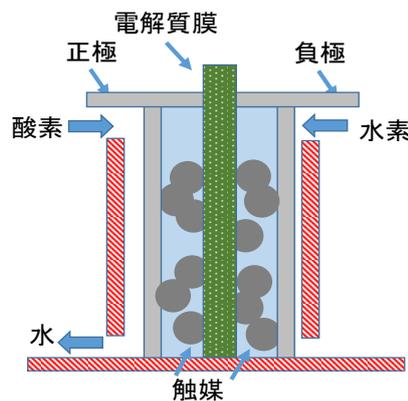


図 2-2-4 燃料電池の模式図

強靱で高性能な高分子電解質膜 (図 2-2-5) の実現に向けて、電解質膜に特徴的な大域的構造とそれ由来する膜強度やイオン伝導度等を記述するために必要な 1000 万～1 億原子で構成される高分子大規模系に対する分子動力学計算を可能にするシミュレータを、MODYLAS をベースに開発する。これに基づいて、標準的な電解質膜に対して乾湿サイクルによるモルフォロジー変化を明らかにするとともに、破壊の分子機構を解明する。またプロトンの輸送、酸素や水素の遮断など電池材料としての機能発現の

分子過程を解明する。さらには、電極-アイオノマー-カーボン集電体三相共存界面における構造モデルを提供し界面構造と輸送抵抗の関連を明確にし、上記反応抵抗とあわせることにより燃料電池としての機能予測の確立に貢献する。

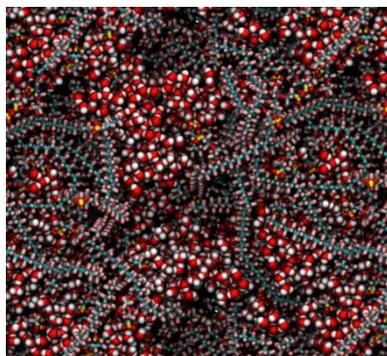


図 2-2-5 燃料電池高分子  
電解質膜

電極シミュレーションは、東大物性研（杉野）が担当し、電解質膜シミュレーションは名大院工（岡崎）が担当する。反応抵抗や輸送抵抗等に関する物性値を獲得し、燃料電池の CV 曲線の予測が可能な全電池シミュレータの構築を目指す。

### （3）目標・期待される成果

#### 研究項目 1 二次電池

##### アウトプット成果：

##### ・平成 29 年度終了時

次のようなりチウムイオン電池の電極-電解液界面およびその近傍での構造や反応輸送特性をシミュレーションするための手法が構築され、材料開発に資する知見も早期創出される。stat-CPMD を用いて数千原子規模での第一原理反応自由エネルギー計算を実行可能にする。これをリチウムイオン電池の電解液-電極界面に適用して SEI 膜の形成機構と特性、ならびに、その電極構造や電解液依存性を原子レベルから解析可能にする。また、既存の電解液を高耐久化するための知見を得て開発に貢献する。

また、RedMoon を用いた混合 MC/MD 反応法プログラムを発展させ、多様な酸化還元反応や重合反応を汎用的に取扱うための典型的な MC プロトコルを実装し、原子間結合の生成および切断、分子の並進移動などを汎用的にシミュレート可能にする。さらに、数十万原子規模の系に対して混合 MC/MD 反応シミュレーションを可能とする。

さらに、100 万～1000 万原子系の古典分子動力学計算に基づいて、二次電池セパレータ界面等の不均一環境下でのイオン輸送の最適化が可能となるイオン伝導度の解析手法を確立する。

### ・本格実施フェーズ終了時

stat-CPMD を用いた反応自由エネルギー計算を発展させ、計算規模の拡大および計算対象の次世代・次々世代二次電池への拡張を行う。実験的知見の少ないナトリウムイオン電池等に対しても界面の構造や界面保護膜の形成機構、界面でのイオン輸送、電極反応等が予測可能なシミュレータを開発する。また、これを用いた各種電池過程のシミュレーションを行い早期成果を創出する。特に電解液開発への貢献が期待できる。5000 原子規模 stat-CPMD あるいは STATE に電位差を印加する機能を導入する。これを用いて、リチウムイオン電池や次世代・次々世代電池の電解液を探索して候補物質を提案する。また、リチウムイオン電池の SEI 膜の形成機構、膜中のリチウムイオン輸送機構を提案する。次世代・次々世代電池に関しても電解液-電極界面反応の微視的機構を提案する。

RedMoon を用いた界面での酸化・還元および重合反応シミュレーションを 100 万原子規模に拡大する。また、RedMoon に電極電位を制御する機能を導入する。これを、リチウムイオン電池や次世代・次々世代電池の負極での SEI 膜形成に適用し、実問題解決に向けた応用計算を実施する。この膜モデルを用いて、stat-CPMD 等によるシミュレーションから得られた情報も活用し、膜の形成機構やイオン輸送特性の予測を行う。

古典分子動力学シミュレーションに基づいて、電極界面近傍等位置に依存するイオン移動度の評価方法を確立し、また高分子の破壊を可能とする 1 億~10 億原子系を取り扱うことのできるシミュレータを MODYLAS をベースに開発する。上記の成果を基に、固体電子論第一原理計算と古典分子動力学計算を組み合わせて全電池シミュレータを発展させ、イオンの輸送特性に関する知見を実験とも連携して、電極や電解液の材料設計指針の獲得を行う。

### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

リチウムイオン電池に対して開発シミュレータを適用し、第一原理計算をベースにした二次電池の電流電圧曲線解析を行う。これを用いて、企業研究者や実験研究者と共同で材料設計を行う。また、開発シミュレータの産業界等への技術移転を始める。さらに、リチウム空気電池や多価イオン電池など、次々世代二次電池における電解液および電解液-電極界面の反応機構を解明し、材料開発に貢献する。

## アウトカム成果：

### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

「京」およびポスト「京」によって提案あるいは確認された電解液または電極材料の幾つかの商品化が行われる。電気自動車開発やスマートグリッド社会構築が加速する。開発シミュレータが企業等で用いられ始め、開発期間の短縮に貢献する。

次世代、次々世代二次電池の電解液-電極界面での反応輸送シミュレーションが本格稼動して、実験データを補う形で計算結果が得られるようになる。電池過程の理解が飛躍的に進む。また、材料開発への理論の貢献が増すと同時に、実験・開発・理論がチームを構成して研究を行なう体制が普通にとられるようになる。

### ・ポスト「京」運用開始 10 年後

蓄電社会、水素社会の構築が進んだ結果、自然エネルギーの全エネルギーに対する割合が増加する。開発シミュレータ技術が普及し、電池開発に不可欠な基盤となる。

## 研究項目 2 燃料電池

### アウトプット成果：

#### ・平成 29 年度終了時

次の様な燃料電池の電極電解質界面に関するシミュレータが開発され、反応過程やイオン輸送過程の理解を進める。また、次世代の燃料電池等の開発に資する早期成果を創出する。

第一原理分子動力学法 (STATE) をベースに固体電子論と溶液理論を組み合わせるにより、燃料電池電極界面の構造や反応自由エネルギーを計算することが可能な電極シミュレータを開発する。これと並行して 100 万～1,000 万原子の高分子電解質膜に対して分子動力学計算による相分離構造の解析やイオン輸送および破壊のシミュレーションが可能なシミュレータを、MODYLAS をベースに開発する。

これらのシミュレータを用い、燃料電池の反応機構の解明や反応抵抗、輸送抵抗等の電池機能を予測するのに必要な物性値を導出する。また、遷移金属酸化物などの白金代替物質の構造や反応に関する電極シミュレーションを行い、高効率高耐久な電極開発に資する。さらに、高分子電解質膜の性能向上に向けた材料設計指針を得る。

#### ・本格実施フェーズ終了時

燃料電池電極界面の構造や反応自由エネルギーの計算効率や精度を向上させ、界面構造等と反応機構や反応抵抗との関連を解明することが可能な電極シミュレータを開発する。また高分子電解質膜に特徴的な大域的構造とそれに由来する膜強度やイオン伝導度、また電極・電解質膜界面等の解析が可能な 1 億～10 億原子系に対する分子動力学計算を実現するシミュレータを開発する。これらのシミュレーションを組み合わせて、電流電圧曲線を求めることを可能にし、微視的情報から電池機能を予測する手法を構築し、全電池シミュレータを発展させる。

これらのシミュレータを用い、遷移金属酸化物などの白金代替物質を用いた次世代型燃料電池の活性向上のための組成や構造に関する設計指針を獲得する。標準的な電解質膜に対して乾湿サイクルによるモルフォロジー変化を明らかにするとともに、破壊の分子機構を解明する。またプロトンの輸送、酸素や水素の遮断など電池材料としての機能発現の分子過程を解明する。

更に、電解質膜開発に関しては総理府 ImPACT プロジェクト「しなやかタフポリマー」(代表：伊藤耕三) と連携し、開発企業と共同で、社会的に緊急度の高い強靱で高耐久性、高信頼性を持ちながら高プロトン伝導性を備えた実用的な自動車用燃料電池電解質膜の設計指針を実験結果のフィードバックを得ながら提供し、開発に貢献する。これにより、「京」を用いた先行的成果として実際に路上で運転されるコンセプトカーの試作につなげる。

#### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

シミュレーション研究の蓄積に基づき、電極付近での酸化還元反応と電解質膜の大域的構造の関連を解明する。開発シミュレータを産業界等へ技術移転し、産学連携による高出力、高耐久性のための燃料電池材料の設計指針を提案する。

## アウトカム成果：

### ・ポスト「京」運用開始5年後

ポスト「京」によるシミュレーションにより、燃料電池の高性能化、高耐久化のための研究が促進される。開発シミュレータが企業等で用いられ始め、開発期間の短縮に貢献する。

### ・ポスト「京」運用開始10年後

水素社会の構築に必要な家庭用、自動車用燃料電池の低価格化、耐久年数の伸長が進み、自然エネルギーの全エネルギーに対する割合が増加する。開発シミュレータ技術が普及し、電池開発に不可欠な基盤となる。

## (4) 「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと

「京」では、古典 MD 計算で数百万—一千万原子規模（サイズとしては  $50\text{nm}^3$  スケール）のサンプリングが可能となっている。これは多孔質膜の不均一性を記述するための最低限必要なサイズでしかない。第一原理 MD 自由エネルギー計算では千原子規模（サイズとしては  $2\text{nm}^3$  スケール）のサンプリングが可能となっており、電解液や界面系のシンプルな酸化還元反応を取り扱える程度となっている。

ナノ細孔により構成される多孔質膜を取り扱った電解質膜設計を行う場合 1-10 億原子系の古典 MD 計算を要する。また全電池シミュレータに向けた電解質膜と電極、電解液の三相界面の研究にもポスト「京」を用いた大規模な計算が不可欠である。第一原理 MD については電解液-電極界面の化学反応・イオン輸送が複合した過程の取り扱いが要求され、原子数で五千規模の系の大規模サンプリングが必要となる。新規開発の手法をポスト「京」に適用することにより、既存のアルゴリズムでは「京」を用いて2年かかる計算が10日で行えるようになるものと考えている。

## (5) 実施体制

サブ課題 B の実施体制を図 2-2-6 に示す。二次電池シミュレーションは、館山（物材機構）、岡崎（名大院工）、長岡（名大院情報）が主に担当し、燃料電池シミュレーションは杉野（東大物性研）、岡崎（名大院工）が主に担当する。シミュレーションソフトを互いに参照、ないし、連携させて動作させるための開発を行い、全電池シミュレータとして統合する。

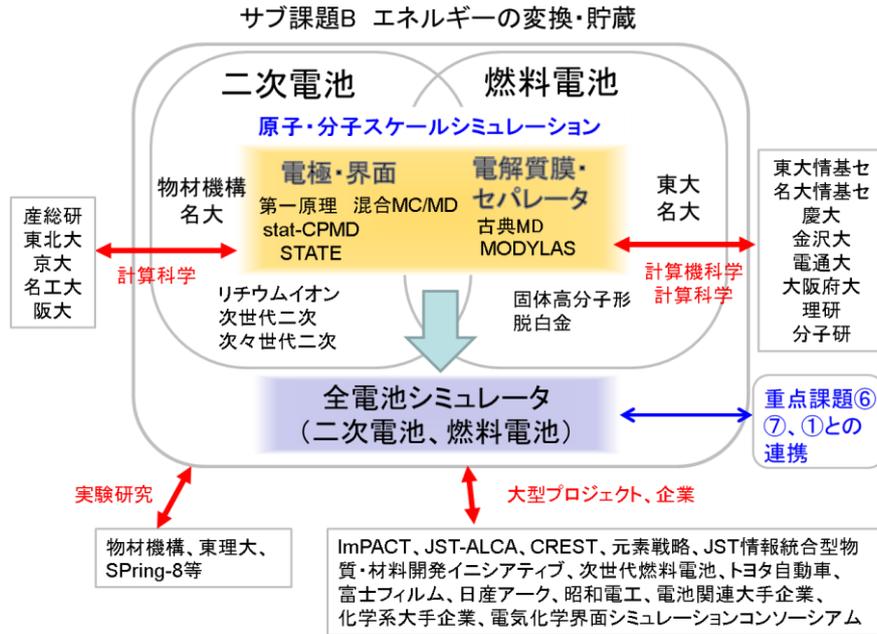


図 2-2-6 サブ課題 B 実施体制

計算科学・理論科学・計算機科学の連携体制については、大谷（産総研）、赤木（東北大）、袖山（物材機構）、濱田（阪大）、中山（名工大）、森川（阪大）、奥野（富士フィルム）、大脇（日産アーク）、泰岡（慶応大）、長尾（金沢大）、成見（電通大）、麻田（大阪府大）らが研究協力者として参画し、二次電池に関連する計算研究を遂行するとともに、全電池シミュレータ作成に協力する。また南（理研）ら計算機科学者とも連携し、さらなる分子動力学プログラムの高効率化を進める。

また、燃料電池研究については、重点課題6「革新的クリーンエネルギーシステムの実用化」と連携し、本重点課題において量子力学、古典力学などの基礎方程式から出発したシミュレーションに基づいて得られる燃料電池の原子、分子レベルの情報、微視的な情報（最大空間スケール 100nm）を、重点課題6において流体力学（例えば格子ボルツマン法）などに基づいて実施する巨視的なシステムシミュレーション（格子ひとつの大きさは 20nm、扱う空間は 20 $\mu$ m）に提供し、そこで検討される水循環や燃料ガスの供給（気液2相流）など電池運転条件の最適化の研究に貢献する。同時に、課題⑥で得られる電池材料の置かれた巨視的環境を本課題で実施する微視的シミュレーションに反映させ、より現実的な実験条件下での材料研究を進める。

MODYLAS 開発については、東大情報基盤センター、名古屋大情報基盤センターとのメニコアに対応したアルゴリズムを用いた高速化・最適化の共同研究、グランドデザインに関わる理研、慶大、電通大、金沢大、分子研からの知識・情報の提供、そして、コデザインについて重点課題1、7と協力・連携する。一方、stat-CPMD、STATEについては同じ平面波基底プログラムが関連する重点課題7サブ課題G、東大物性研と連携をしながら開発を進める。

## 2-3 サブ課題C エネルギー・資源の有効利用 — 化学エネルギー

### (1) 目的・意義

エネルギー資源を輸入に頼る我が国では、エネルギーの有効な循環が国家的重要課題である。本サブ課題では、化学エネルギーの新規な資源開発と貯蔵の効率化を目指す。エネルギー・環境問題解決に必須であるメタンと CO<sub>2</sub> の分離・回収、貯蔵、変換にわたる化学エネルギーの高度利用を目指して、ポスト「京」を活用できるアプリケーションを開発し、企業や実験研究者との緊密な連携をとりつつエネルギー多消費型工業プロセスを革新する。そのために、化学エネルギー創成・消費の根幹となるメタンハイドレートの資源化および CO<sub>2</sub> の分離・回収、貯蔵による化石燃料の安定的利用、さらに高機能触媒の開発を実施する。

水は地球上に普遍的に存在する無害で環境負荷の少ない物質であり、資源および貯蔵媒体、また蓄冷物質として水の利用を図ることは、化学エネルギーの創生とエネルギーサイクル構築の観点から、極めて重要である。日本近海に埋蔵されているメタンハイドレートからのメタンの生産と貯蔵、また環境負荷の少ないハイドレートの別の有効な利用法として、水素やオゾンの安全な貯蔵法の実用化に対する指針の提供を目的とする。ハイドレートは CO<sub>2</sub> の廃棄手段の候補でもあり、メタンハイドレートに CO<sub>2</sub> を注入し、メタンハイドレート中のメタンを CO<sub>2</sub> に置換しつつ、有用なメタンを得る可能性を、理論的基盤に基づきダイナミクスを含めて検証する。一方、水の相転移時の大きな潜熱を利用して、新規な蓄熱材料を開発することが強く期待されている。このうち、セミクラスレートを主とする蓄冷材は、構造や熱力学等の基礎的な情報が未解明であり、これらを微視的観点から基礎原理を解明して、実用化につなげる。

一方、物質科学分野において、触媒はエネルギー問題を解決する鍵を握る。本課題では、産業界に需要のある「触媒反応機構解明のための反応経路探索技術」を確立し、理論が先導する高収率高選択性の新規触媒設計というアプローチの実現を目指す。国内ではここ十年ほど貴金属を豊富元素に置き換える元素戦略プロジェクトが進められており、実験と理論計算の協働が重要視されている。白金などの貴金属を使用しない高機能触媒の開発が実現すれば、エネルギー多消費型物質生産の革新を達成することができる。

更に、地球温暖化防止をはじめとする環境諸問題の対策と、化石燃料の有効利用によるエネルギーの安定供給が可能な社会を築いていくため、CO<sub>2</sub> 排出量の大幅な削減が求められている。この目標達成に向けて、工場や発電所などの大規模排出源から CO<sub>2</sub> を分離・回収する技術が近年注目を集めている。我が国でも回収した CO<sub>2</sub> を地中深くに輸送し貯留する手段 (CCS) の実証試験が開始しているが、実用化促進には CO<sub>2</sub> 分離・回収のコスト削減が求められている。そのためには、反応条件の制御および材料の高性能化が必要である。ここにおいて計算科学を用いた微視的視点からの反応原理の究明、および体系的な物質の特性評価が課題解決を加速するアプローチとして期待されている。本研究では、超並列電子状態計算に基づく大規模 CO<sub>2</sub> 分離・回収シミュレーションとその解析を実現するアプリケーションの構築を行う。これを用いて CO<sub>2</sub> の効率的な分離・回収に資する革新的材料を理論先導で設計し、CO<sub>2</sub> 問題の解決に貢献する。

## (2) 実施内容

### 研究項目1 ハイドレート

エネルギー資源として大量に存在するメタンハイドレート（図 2-3-1）の効率的採取法の開発を目指した、大規模長時間 MD シミュレーションを実施して、メソスケールでの解離の機構解明、解離の律速過程とその解消法の探索を行なう。特に、実用化に最も有望であると考えられている減圧法では、ハイドレートの低い熱伝導や不純物中でのガスの移動も考慮する必要がある、これらを境界条件に取り入れた大規模なシミュレーションから、効率的な融解法への指針を得る。また、メカニカルな融解法の開拓を目指した、シミュレーションについても開発を行う。

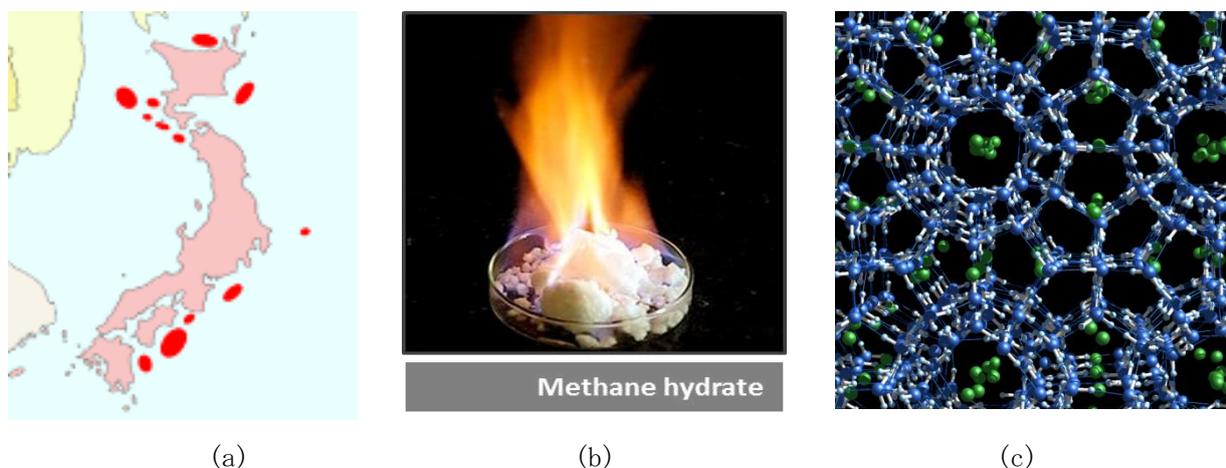


図 2-3-1 メタンハイドレートの資源分布 (a)、燃える氷としてのメタンハイドレート (b) とその分子配置 (c)

メタン・水素・CO<sub>2</sub>の貯蔵媒体としてのハイドレートの活用と高性能化を図るために、理論計算に基づき、結晶の安定性を補助する適切な添加分子種を提案する。自己保存効果とは、特定の条件において、ハイドレートの分解が著しく抑制される現象であり、ハイドレートを貯蔵媒体として利用する場合には有用だが、そのメカニズムは未解明である。このために、自己保存効果のシミュレーション、ハイドレートを安定化する分子の探索、結晶化過程のシミュレーションと自由エネルギー計算を行なう。一方、パイプラインによるガス輸送や深海底の石油採掘では、ハイドレートの形成は時としてパイプを塞栓させ、大きな事故につながる。これまでに多くの物質が速度論的なハイドレート生成阻害剤として開発されているが、その分子論的機構は未だ示されていない。自由エネルギー計算、阻害剤存在下の結晶成長シミュレーションなどによりこれを明らかにする。

これまで、我が国の近海に豊富に存在するメタンハイドレートからメタンを回収するための「メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム」が組織され、試掘は行われているが、コストの問題は未解決である。このような国家的課題に対して、ポスト「京」を駆使した大規模な構造探索から、蓄冷材としてのセミクラスレートの性能の向上のための包括的な評価を行い、東北大学や企業との連携・共同研究により、実用化に対する問題解決の一端を担う。

以上は、岡山大（田中）が、分子研（奥村）、産総研（石田）と協力して推進する。

## 研究項目 2 触媒

武次、前田（北大）が中嶋（理研）と協力し、反応経路自動探索法（図 2-3-2）を NTChem に連結して一般的に未知の触媒反応機構を解明する反応経路探索計算技術を確認する。これを産業界で重要な革新的触媒の理論設計へと適用し、具体的指針を実験家に提供する。大規模計算によって初めて可能となる触媒反応の实在環境モデル（例えば担持金属微粒子触媒であれば基板の欠陥、溶媒を露わに考慮し、単位セルを現況の十倍以上に広げるなど、図 2-3-3 参照）を構築し、経験的描像を排した反応経路探索計算によって理論先導型の触媒設計の実現につながる研究を展開する。

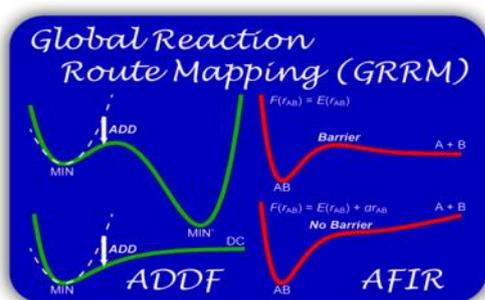


図 2-3-2 反応経路自動探索法

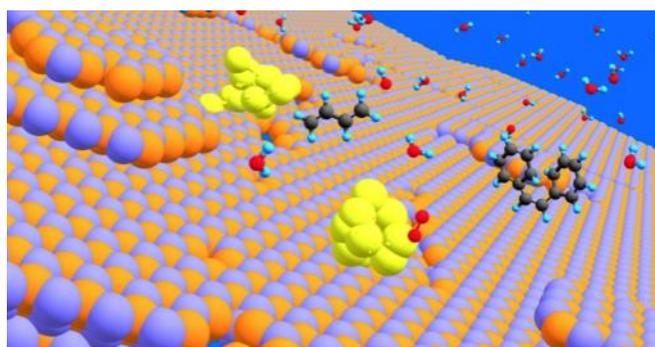


図 2-3-3 担持金属微粒子触媒の描像

具体的触媒反応として  $\text{CO}_2$  固定化と酸素還元反応(ORR)を取り上げる。 $\text{CO}_2$ は研究項目 1、3 で貯蔵、分離・回収の対象となっているが、本項目では  $\text{CO}_2$  変換による有効資源化を目指す（サブ課題内連携）。有機合成化学実験の立場から  $\text{CO}_2$  固定の触媒開発を先導する依馬（岡山大）及びQM/MM 計算技術を有する長谷川（北大）と連携し、大規模な反応経路探索計算を実施して  $\text{CO}_2$  固定高機能触媒の実現を目指す。ORR 触媒についてはサブ課題 B の高効率燃料電池開発の目標に挙がっており、サブ課題間連携として取り組む。燃料電池では酸素極での ORR 触媒として白金が使用されており、非白金触媒の探索が世界的に行われている。武次は魚崎（物材機構）との共同研究で、本来絶縁体である窒化ホウ素（BN）を金表面に担持すると電子状態が変化し、ORR 触媒として機能することを実験的に示した。しかしその微視的機構は未解明である。本項目では反応経路自動探索法と連結した NTChem を適用して BN/Au を触媒とする ORR の反応経路探索を行い、反応機構を明らかにして酸素還元能発現の起源を特定し、より高機能な非白金系酸素還元触媒の開発を試みる。

## 研究項目 3 $\text{CO}_2$ の分離・回収

$\text{CO}_2$  分離・回収は、溶液中または固体表面で起こる物理的あるいは化学的な変化を伴う複雑な現象であることから、特に凝縮相中の熱力学的安定性の評価と反応ダイナミクスの実行に適した凝縮相内化学反応シミュレータを開発する。前者では、基盤アプリ NTChem と線形スケールリング法の 1 つである分割統治法 (DC) 法を組み合わせることにより、高精度大規模電子状態計算に基づく定量的な熱力学量計算を可能とする。後者では、密度汎関数理論に基づく強束縛近似 (DFTB) 法に対する線形スケールリングを達成した補助アプリ DC-DFTB-K の超並列化およびパラメータの拡充を図ることにより、100 万原子規模、サブ

ナノ秒の化学反応シミュレーションに到達する。

CO<sub>2</sub>分離・回収プロセスの合理化における急務な課題の1つは、実用に最も近い化学吸収法で用いられるアミン吸収液の性能向上である。高度化された NTChem および DC-DFTB-K プログラムを活用し、CO<sub>2</sub> 吸収過程・放散過程で生じる反応の詳細を熱力学的視点と動力学的視点の両面から明らかにする。アミンの種類とその混合比による吸収量・吸収速度の違いや、反応温度や吸収液の濃度など反応制御可能性に関する検討から得られる知見を用いて、消費エネルギーコストを削減する新規アミンの提案・最適なアミン混合比の予測を行う。更に、溶液系だけでなく金属有機構造体 (MOF) やゼオライトのような多孔質材料の高機能性発現を支配する基礎原理の究明に取り組む (図 2-3-4)。CO<sub>2</sub> 分離・回収については、中井 (早大) が担当する。

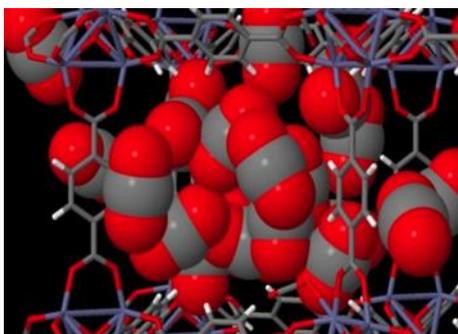


図 2-3-4 MOF による CO<sub>2</sub> の吸収過程

### (3) 目標・期待される成果

#### アウトプット成果：

##### ・平成29年度終了時

化学エネルギー創成から消費に至る過程の、高効率な分離・回収、貯蔵、相互変換法の計算科学における開発を目指す。

ハイドレートを用いたエネルギーと物質貯蔵に関しては、自由エネルギー計算や数十万原子規模の分子系、ミリ秒のシミュレーションからの生成解離ダイナミクスの解明により、高効率、低エネルギーコスト低環境負荷で貯蔵(メタン、水素、オゾンなど)・廃棄(CO<sub>2</sub>など)するための、温度、圧力、共存物質についての最適条件を提示する。更に、セミクラスレートの蓄冷材としての実用化には融解のエネルギー収支が極めて重要であるが、その構造や熱力学的特性が未解明である。このために、新たなアルゴリズムにより巨大な分子配置に関するデータから効率的に複雑な構造をエネルギーと関連付けて解析する方法を開発する。触媒設計では反応経路自動探索プログラムを NTChem に連結させ、京の上での反応経路探索計算を可能にする。更に、金属ナノクラスターによる触媒反応の全面経路探索を行い、サイズ効果やクラスター構造変化の効果について知見を得る。CO<sub>2</sub> について、100 万原子規模の化学反応ダイナミクスに必要な DFTB などのアプリケーションの大枠の開発作業を完了する。CO<sub>2</sub> 分離・回収エネルギーコストの大部分を占めるアミン吸収液の反応熱削減を目指し、反応系中にある化合物の拡散係数と放散時の反応性との関係を系統的なシミュレーションから明らかにする。更に、MOF などの材料を幅広く取り扱うため、金属を含む原子の組み合わせに対応する DFTB 力場の拡張を行い、CO<sub>2</sub> 吸収材料としての吸収

量や吸収速度、回収に必要な熱量などの基礎的知見を獲得する。

#### ・本格実施フェーズ終了時

化学エネルギー創成から消費に至る過程について、計算科学により高効率な分離・回収、貯蔵、相互変換法の実用へ橋渡しとするための指針を提供する。

基盤となる反応経路自動探索法と NTChem との連結、MD シミュレーション、DFTB 法の長距離相互作用計算の効率化や DC 法における部分系処理の並列性能の向上など、課題に必要な計算手法の高機能化を達成する。さらに、固体や溶液の自由エネルギー計算や凝縮相内化学反応シミュレータの開発を完了し、ポスト「京」運用開始早期よりアプリケーションの実行と速やかな成果創出が可能な体制を整える。

ハイドレートについては、最大数千万原子規模の分子系、ミリ秒程度の、大規模長時間のシミュレーションを行い、現実的な条件におけるハイドレートの生成解離機構を明らかにする。また、90 年分以上と言われる天然ガス資源の採掘の実用化へ、産総研などで行われているマクロなシミュレーションへのミクロな観点からの計算データの提供などを通じて、メタンの効率的回収の指針を得ることに貢献する。更に、メタンと CO<sub>2</sub> 置換によるメタン資源化と CO<sub>2</sub> 投棄の熱力学とダイナミクスを明らかにする。蓄冷材に対して、セミクラスレートハイドレートの安定性原理の確立を行う。触媒設計では、超並列計算に基づく反応経路自動探索を実現し、1000 原子程度の複雑な触媒反応機構を調べる手法を開発する。CO<sub>2</sub> 固定と燃料電池非白金系触媒へと適用し、高機能触媒設計への知見を得る。CO<sub>2</sub> 分離・回収では、アミンの p*K*<sub>a</sub> 依存性など 100 万原子程度の大規模系解析結果から、アミンの混合比、反応温度や吸収液の濃度など最適な反応条件の提案を行う。更に、多孔質材料を用いた CO<sub>2</sub> 分離・回収反応メカニズムを解明し、候補となる材料の指針を吸収量や吸収速度、回収に必要な熱量の観点から示す。

#### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

大規模実証計算を実行し、メタン、水素のハイドレート貯蔵のための自己保存効果をより高める手法の開発、CO<sub>2</sub> 固定の高機能触媒、サブ課題 B と連携した燃料電池非白金系触媒、最適化されたアミン吸収液に対するより定量的な CO<sub>2</sub> 吸収特性の予測を実現する。これらに対して、実験研究者および企業研究者と連携して実証開発を推進する。

### アウトカム成果：

#### ・ポスト「京」運用開始 5 年後

ハイドレートに対する低環境負荷が一般に認められ、また反応経路自動探索計算や凝縮相内化学反応シミュレーションが化学プロセスや材料設計といったナノスケールを対象とする計算科学分野で普及する。

#### ・ポスト「京」運用開始 10 年後

メタンハイドレートのより効率的な分解法に基づくメタン採取の産業化がなされ、メタンハイドレート由来のメタンが利用されるようになる。反応経路自動探索法が新規触媒開発の標準的アプローチとして産業界に普及し、合理化されたプロセスに基づく CO<sub>2</sub> 分離・回収技術の実証試験が進み産業化がなされる (図 2-3-5)。



図 2-3-5 排気ガスから CO<sub>2</sub> を効率的に分離回収する  
技術の実用化

#### (4) 「京」でできていること、ポスト「京」でなければできないこと

「京」を用いた数十万原子規模の分子系時間 100 ns のメタンハイドレートの融解シミュレーションを行い、過飽和限界付近や溶質の添加による融解ダイナミクスを解析して、ハイドレートの分解速度を、メタンの泡の発生を促進・抑制することにより制御する方法を提案した (図 2-3-6)。

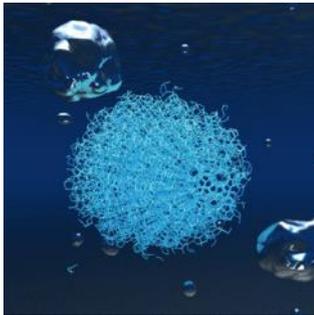


図 2-3-6 京を用いたメタンハイドレート融解の  
シミュレーション

ポスト「京」では、ハイドレートの分離・貯蔵機能や蓄冷材としての性能を探索する。ハイドレートの生成過程やセミクラスレートの平衡状態の計算には、従来の計算の 100 倍程度の計算資源を要するので、ポスト「京」が不可欠である。触媒については、数十原子が含まれる小規模分子系の均一触媒反応の経路探索は既存のスパコンで可能であるが、千原子程度が関わる不均一触媒表面反応経路の探索はポスト「京」がなければ不可能である。CO<sub>2</sub> の分離・回収では化学反応を伴うために、5 千原子系、100 ps 程度の電子状態計算に基づく分子動力学シミュレーションを実行している。化学吸収法の最適化や MOF などの固体吸収材の設計には、取り扱う系のサイズがさらに増加する必要がある。例えば、典型的な計算では、「京」では 5 年の時間を要するため、ポスト「京」でなければ本課題は実現できない。

#### (5) 実施体制

サブ課題 C の実施体制を図 2-3-7 に示す。理論と計算科学は、田中 (岡山大) と奥村 (分子研) がハイドレートの融解や生成のダイナミクスの解明によるメタン生成やメタンや水素貯蔵の効率化を担当し、また石田 (産総研) が田中と協力して蓄冷剤としてのセミクラスレート等の可能性を検討する。ここで主に使用する基盤アプリは MODYLAS であるが、この開発の一部を担当することにより、ソフト開発からシミュレーションの実施まで目標の達成が可能な体制となっている。

触媒については、武次 (北大) と長谷川 (北大触媒科研) が協力して研究を推進する。実験グループ

として、魚崎・野口（物材機構）[電極触媒]、清水（北大触媒科研）[担持金属微粒子触媒]、佃（東大）[金属微粒子触媒]、依馬（岡山大）[CO<sub>2</sub>固定触媒]と協力する。

中井（早大）が開発と実証を進める CO<sub>2</sub> 分離・回収において、アプリケーション開発では化学反応シミュレーションの遂行範囲を広げるため、DFTB 法を用いた応用計算を長年展開している IRLE (ORNL、米国)、WITEK (國立交通大、台湾) のグループと協調して、パラメータ開発を始めとした同技術のさらなる汎用化を展開する。シミュレーションでは、アミン吸収液、MOF など様々な材料について多様な条件の系統的評価を実施する。そこで得られた膨大なデータからより効率的に情報を抽出するため、情報化学分野のみならずデータマイニングを実施できる数学・数理科学分野との連携を検討する。最適な化学吸収液の設計においては、LEE (成均館大、韓国) との国際共同研究により理論研究から混合アミンによる反応機構解明を行い、古川（早大）や鹿又（早大）の実験研究者と実証を進める。産業界との連携では、本事業より提供する理論的知見を参考に、企業において低反応熱アミン吸収液を調整し性能評価を実施するとともに、プロセス全体の統合試験から最終的なエネルギーコスト低減の効果を見積り、産業化への足がかりとする。MOF の構造設計においては、北川（京大）からの協力を得て研究を推進する。

### サブ課題C エネルギー・資源の有効利用

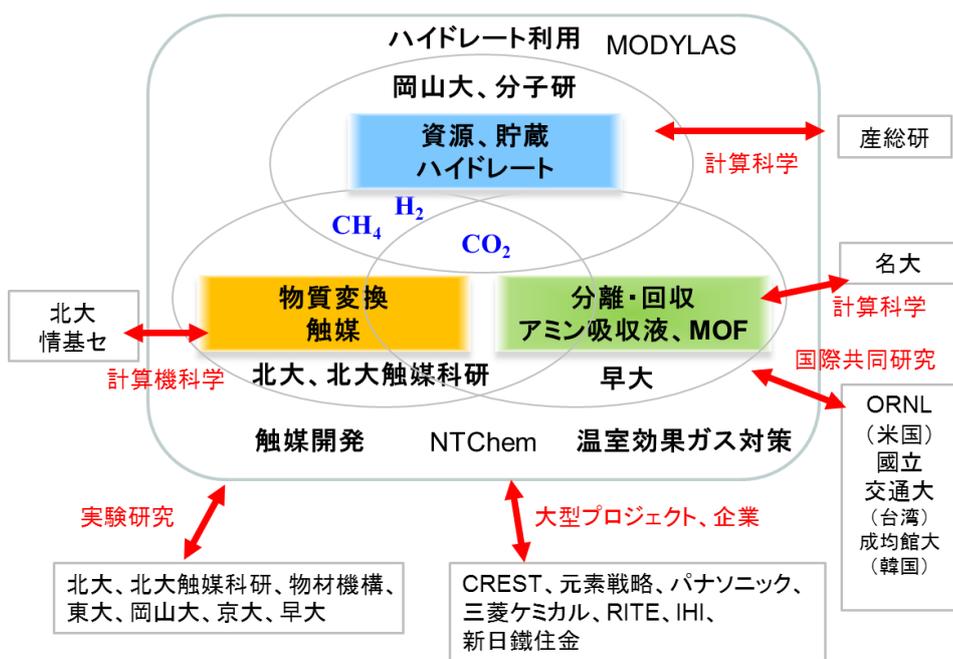


図 2-3-7 サブ課題C 実施体制

## 2-4. 基盤アプリ設計・開発

ポスト「京」を有効に活用し、国家的に取り組むべき社会的・科学的課題の解決に資するアプリケーションを開発するため、本重点課題では 4 つの基盤アプリケーションを設定する。京で実効的な超並列計算の実績があり、本重点課題で共通に利用できる観点から、量子化学計算プログラム (NTChem、GELLAN)、分子動力学計算プログラム (MODYLAS)、第一原理計算プログラム (stat-CPMD) の 4 つを基盤アプリケーションとし、ポスト京での超並列計算で実効性が上がるように設計開発を行う。

平成 27 年後半にポスト「京」の基本的な仕様が決まることを前提として、コデザイン・サブ WG での活動を通して得られる情報を参考にして基盤アプリのグランドデザインを進める。早期から理研あるいはハードウェア・ベンダーのコンサルティングを受け、更にベンダーによる最適化作業も活用しながら、平成 31 年度のポスト「京」の試用に向けて、ポスト「京」を有効に活用できる基盤アプリを開発していく。

### 2-4-1. NTChem

#### 開発目標

「京」においては 1,000 原子までの分子の励起状態の量子化学計算が実現されているが、有機系太陽電池におけるヘテロジャンクションを含めた現実系界面のシミュレーションには 10,000 原子規模の取扱いが不可欠である。メモリ分割を施した効率の良い並列アルゴリズムを開発・実装する。

計算規模：原子数 五千～1 万

### 2-4-2. GELLAN

#### 開発目標

「京」では高精度 F12 理論の超並列実装が行われており、ナノ分子のポストハートリーフォック計算が実現化されている。高効率光エネルギー変換の解明には、これに加えて  $10^{20}$  の完全 CI 次元を持つ擬縮重系や励起状態の分子構造と電子物性の計算手法を開発する。

### 2-4-3. MODYLAS

#### 開発目標

原子数：1 億～10 億

計算時間：2～20 ms/step

特に高分子系への展開のため、化学結合のすり抜け等による平衡化の加速、引っ張り、圧縮、せん断、ねじれ等の機械的摂動の印加、化学結合の切断過程の記述、粗視化モデルの導入、応力分布、ひずみ分布、弾性率分布等の解析、プロトン移動における量子性の考慮、界面を有するヘテロ系でのイオン伝導度の解析等を可能とする。

### 2-4-4. stat-CPMD

#### 開発目標

「京」においては 数千原子サイズの系の第一原理分子動力学サンプリングが 10 sec/step 前後で実現してきた。これは FFT などのカーネル部分のチューニングによるものである。さらに反応自由エネルギープロファイル計算のサンプリングの MPI 並列化が実装した。これらにより数千ノードの自由エネルギー

ー計算において実行効率 29%、SIMD 化率 73%が実現している。

今後、燃料電池・二次電池の電極-電解質界面の現実系第一原理シミュレーションを行うには5千原子規模でのサンプリングが必要となる。カーネル部分のさらなるチューニングによって、実行効率の低下を最小限にしながらこのサイズの第一原理分子動力学を可能とし、さらなるサンプリング並列化、マルチプル並列化を実装してフルノードの利用を可能とする。

計算規模：原子数 五千規模

機能：・サンプリング並列化、マルチプル並列化

- ・QM/MM などの連成シミュレーション向けのインターフェース開発
- ・反応自由エネルギー計算手法の高効率化
- ・電気化学反応・界面酸化還元反応の記述手法開発
- ・電子相関、自己相互作用補正、長距離力の導入など電子状態計算の改良

#### 2-4-5. コデザイン

ポスト「京」プロジェクトでは、アプリケーション開発者と計算機システム開発者の協調によりアプリケーションとシステムを協調設計していく。重点課題に関するアプリケーション開発およびポスト「京」開発において、ポスト「京」開発主体と重点課題の実施機関との間で、ポスト「京」のシステムアーキテクチャ等とアプリケーションの設計開発に関し、相互に要求性能・機能や評価結果等についてのフィードバックを行いながら設計開発を同時に進める。このために、各重点課題から1つないし2つのターゲットアプリケーションを選定し、ターゲットアプリケーションに対するコデザインの成果およびチューニングのノウハウをマニュアル化することで、他のアプリケーションの高度化へ繋げる。ターゲットアプリケーションの選定基準は下記のとおりである。

- 1) 各重点課題の要となる計算手法を有するアプリケーションであること。
- 2) アプリケーションの開発体制やライセンス形態が、コデザインできるものであること。
- 3) 全ターゲットアプリケーション群は、計算科学的手法の網羅性を有しており、コデザインおよびチューニングのノウハウのドキュメント化ができること。

これらの観点から、本重点課題からはNTChemをターゲットアプリケーションに選定し、密行列演算を共通基盤としてコデザインすることに設定した。コデザインサブワーキンググループ（以下、コデザインSubWG）を中心とするコデザイン推進体制を整え、2015年度4月から2週間に1回程度の頻度でコデザインSubWGを開催している。コデザインSubWG体制を図2-4-1に示す。コデザイン作業は2つのフェーズにわけられ、下記のような推進計画である。

##### 1. 第1フェーズ（基本設計期間、～2015年8月）

理研R-CCSは各実施機関と相談の上、基本設計時に使用するターゲットアプリおよび問題サイズを決める。各実施機関は実施機関側コデザイン責任者および実務担当者を決め、理研R-CCSとともにターゲットアプリケーションを用いて、アーキテクチャ、システムソフトウェアのコデザインを行う。

##### 2. 第2フェーズ（2015年秋～2018年3月）

各実施機関のコデザイン実務担当者は理研R-CCSとともにコンパイラやシステムソフトウェア、プログラミング環境、ライブラリの協調設計及び詳細設計を行う。コデザインの成果を基にアプリケ

ーションチューニング方法のドキュメント化を行う。

上記の知見を、各実施機関のコーデサイン責任者および実務担当者が中心となり展開し、実施機関内の新規アプリ開発・アプリチューニングを行う。理研 R-CCS は、R-CCS 側コーデサイン責任者を中心に適宜 WG を組織化し、これに対する支援を行う計画となっている。

- **重点課題5 コデサインSubWG (高精度分子軌道法)**
  - 対象アプリ: NTChem (RI-MP2電子相関計算) **NTChem**
  - コデサイン観点: 密行列演算性能、SIMD幅、集団通信レイテンシ
  - 理研側コーデサイン責任者: (理研) 中嶋
  - 実施機関側コーデサイン責任者: (分子研/名大) 岡崎
  - SubWG主催者: [正](理研) 三上、[副](神戸大) 上島
  - 実働メンバー: (理研) 三上、南、(岐阜大) 中塚、(富士通) 井上、佐治
  - オブザーバー: (名大) 安藤 (阪大) 稲垣
    - MODYLAS** ← **stat-CPMD**
- **重点課題1 コデサインSubWG (分子動力学法)** **GENESIS**
  - 正式メンバー: (名大) 安藤 ←
- **重点課題7 コデサインSubWG (密度汎関数法)** **RSDFT**
  - 正式メンバー: (阪大) 稲垣

図 2-4-1 コデサインと重点課題間連携

# 表2-4-1 基盤アプリ設計開発

責任者：(理研R-CCS) 中嶋隆人

| アプリケーション名                   | ポスト「京」  | 「京」での性能実績、他  | 活用シミュレータ    |
|-----------------------------|---|--|-------------|
| ターゲットアプリ<br><b>1 NTChem</b> | 汎用第一原理電子状態計算ソフト<br>化学反応計算<br>→1万原子系 励起状態計算                          | <b>360原子</b> 9,840原子軌道<br>71,288ノード、実効効率 32%<br>世界最高レベルの超並列                                | 太陽電池シミュレータ  |
| 基盤アプリ<br><b>2 GELLAN</b>    | 階層的量子化学計算ソフト<br>QM/MM分子動力学<br>→ $10^{20}$ 以上の電子配置からなる<br>超高精度励起状態計算 | <b><math>10^9</math>の電子配置</b><br>120原子 5,520原子軌道<br>21,672ノード、実効効率 32%<br>世界最高水準の<br>高精度計算 | 人工光合成シミュレータ |
| 基盤アプリ<br><b>3 MODYLAS</b>   | 汎用分子動力学計算ソフト<br>自由エネルギー計算、多相共存系<br>→10億原子系 超大規模分子動力学計算              | <b>8,000万原子系</b> 65,536ノード<br>実効効率 41%<br>世界最高クラスの高速度計算                                    | 全電池シミュレータ   |
| 基盤アプリ<br><b>4 stat-CPMD</b> | 第一原理分子動力学ソフト<br>反応自由エネルギー計算<br>→5千原子系 電極反応                          | <b>2,400原子系</b><br>3,840ノード<br>実効効率 29%  | 全電池シミュレータ   |

補助的アプリケーション： STATE、RedMoon、GRRM、DC-DFTB-K、SMASH

### 3. 採択時の留意事項への対応状況

指摘事項（罫線内）：

(1) 課題全体として達成すべき成果を明確にするとともに、その成果実現に向けた定量的・定性的な目標（年間目標及び最終目標）を明確にすること。その際、産業界側の実ニーズを十分に把握し、本事業の成果を社会において広く活用できる具体的な道筋を明確にすること。

1章および2章各サブ課題の(2)実施内容と(3)目標・期待される成果に反映済み。

(2) 相乗効果が期待される他プロジェクト等と密に連携して取り組むとともに、役割分担を明確にすること。

1章(6)実施体制と2章各サブ課題の(3)目標・期待される成果、(5)実施体制に反映済み。

(3) 実験研究の進展をタイムリーに取り込むことのできる実験研究者との連携体制を明確にすること。また、成果の受け渡しについて、産業界とのきめ細やかな連携体制を明確にすること。

1章(6)実施体制と2章各サブ課題の(3)目標・期待される成果、(5)実施体制に反映済み。

(4) 本提案のサブ課題Aについては、材料物性に関わる部分のみを議論とした場合であっても、励起状態の計算のみで太陽電池の変換効率を定量的に求めることは難しいと考えられる点を含め、(1)の指摘やポスト「京」の必要性を検討及び具体化すること。

2-1. サブ課題Aの(3)目標・期待される成果、(4)「京」でできていること、ポスト「京」でなければならないこと、(5)実施体制に反映済み。

(5) 本提案のサブ課題Bについては、重点課題6（革新的クリーンエネルギーシステムの実用化）において取り組まれる電池関連の研究開発ともコミュニケーションを図り、相乗効果を図ることができる体制を明確にすること。

2-2. サブ課題Bの(5)実施体制に反映済み。

(6) 人件費の占める割合が大きいですが、本プロジェクトで雇用する研究者（ポスドク等）の人員計画を明確にするとともに、将来のステップアップまで見据えた登用、人材育成の取組の計画を明確にすること。

人員計画については、1.(6)及び表1-3に記載済み。

(7) (追加指摘事項) 本提案と、重点課題6（革新的クリーンエネルギーシステムの実用化）、重点課題7（次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成）と方法論に共通性があることから、重点課題間の効果的な連携や産業界との協力体制の一本化を検討した上で、体制を具体化すること。

1.(4)に記述しているように、本課題において開発した高精度量子化学計算、大規模第一原理計算、超大規模分子動力学計算などの方法論、アプリケーションは化学、物理、材料、生物分野等に適用できるもので

あり、エネルギー問題に限ることなく、広く他分野での展開も予想され、研究ツールとして重点課題1、6、7等へ提供する。また、開発アプリケーションは、ポスト「京」に限ることなく情報基盤センターや共同利用研等のインフラにおいても効率的に稼働するよう設計、開発し、またスーパーコンピューティング技術産業応用協議会等と連携して、産業利用を念頭に置いて使い勝手のよいアプリケーションとなるよう開発する。これにより、既存のスーパーコンピュータはもちろんのこと、企業内のシステムにおいても広く展開、利用されることが期待できる。また、開発したシミュレータは、スーパーコンピューティング技術産業応用協議会ならびに重点課題6、7等と連携し、産業界での利用促進、普及を図る。

さらに、重点課題7との連携については、基盤アプリのコードザインの過程を共有するため重点課題5より重点課題7のコードザイン・サブWGに委員を派遣している。

#### 4. 中間評価時の指摘事項への対応状況

指摘事項（罫線内）：

(1) 課題全体として達成すべき成果を明確にするとともに、その成果実現に向けた定量的・定性的な目標（年間目標及び最終目標）を明確にすること。その際、産業界側の実ニーズを十分に把握し、本事業の成果を社会において広く活用できる具体的な道筋を明確にすること。

1章および2章各サブ課題の(2)実施内容と(3)目標・期待される成果に反映済み。特に本事業の成果を社会において広く活用できる具体的な道筋の一つとして、複数の企業(27社)と共同研究を進めている。現在の共同研究の状況を図4-1に示す。これは、分子科学研究所を中心として、スーパーコンピューティング技術産業応用協議会(産応協)、高度情報科学技術研究機構(RIST)、計算科学振興財団(FOCUS)の協力も得て、継続している研究会・シンポジウム(事例紹介)⇒スクール開催(人材育成・基礎知識提供)⇒アプリ講習会(開発アプリ普及)⇒共同研究・大型国家プロジェクトとの連携⇒研究会・シンポジウム(事例紹介)⇒・・・のスパイラルにより、得られた実績である(図4-2参照)。

今後は、産業界側の実ニーズの把握のため、産応協の「HPCアプリの将来像に関する意見交換」等の取組に協力・参画する。また、基盤アプリ等を整備しているRIST、FOCUSからも産業界側の実ニーズに関する情報を入手していく。さらに本事業の成果を社会において広く活用できる具体的な道筋を発展させるため、重点課題5産業連携ワーキンググループの活動を発展させ、広報と協力し、プレスリリース、ホームページやメーリングリスト等により、本重点課題の成果や企業での活用成果を広報・周知する。これらにより、企業側の関心を高めると共に、共同研究推進窓口を設置し対応していく。



図 4-1 出口に向けた産業界との連携

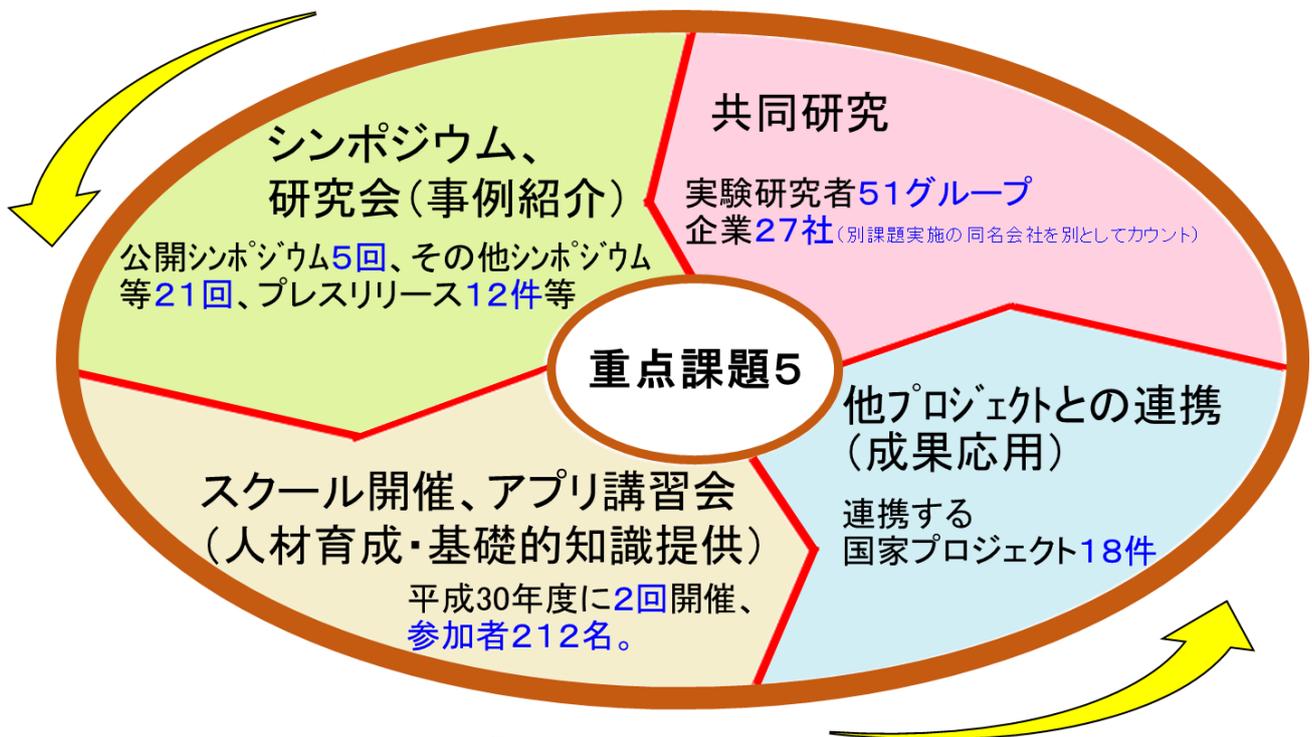


図 4-2 成果利活用の道筋

(2) 情報科学技術分野における研究開発の論文数、学会発表数は、事業の成果を議論する上で1つの指標となりうるため、分野の特性を考慮の上、論文数、学会発表数の達成目標値を設定すること。

重点課題5全体で、年度毎の論文数の目標を60本とし、年度毎の学会発表数の目標を270件とする。

(3) 予備計算などを通じて、サイエンス的な目標を明確にすること。その目標に対して、ポスト「京」でいつまでに何をどこまで明らかにすることを目指すのかを明確にすること。その時点でポスト「京」で初めてできる画期的な利活用について具体的に説明すること。

本格実施フェーズ終了時の目標（最終目標、～平成31年度）を、サイエンス的な目標、アプリケーション開発目標および産業界での活用目標に分類し、表4-1に記載する。

(4) 当初計画には人工知能との融合はないが、物質予測に向けた研究にはスーパーコンピュータと人工知能を合わせた活動も重要であり、それを考慮して計画の調整を行うこと。

「機械学習やデータサイエンスの技術活用の検討」を、1. 実施概要に(5)として追記する。

| 「京」  | 主な最終目標(～H31年度)   | ポスト「京」  |
|--|--|---|
| 小規模系励起状態計算<br>・光合成系<br>厳密計算<br>20原子、 $10^9$ の電子配置<br><br>・有機太陽電池<br>単一相、<br>1,000原子                        | <b>サブ課題A</b> <b>人工光合成シミュレータ</b><br><b>太陽電池シミュレータ</b><br>基盤アプリ NTCChem、GELLAN<br>・光合成： $10^{20}$ 以上の励起電子配置厳密計算<br>・太陽電池：数千～10,000原子励起状態計算<br>・半導体光触媒や多核金属錯体の人工光合成系での励起電子の精密な記述による<br><b>ニューパラダイムの確立</b><br>・太陽電池自由キャリア機構、ドナー・アクセプター界面特性解明<br>・有機太陽電池の変換効率15%に向けた提案<br>・材料インフォマティクス手法を駆使した太陽電池と半導体光触媒の新規材料設計<br>・新規光触媒設計、助触媒の最適化<br>先行的成果      高効率有機太陽電池 | 高精度大規模系励起状態計算<br>・光合成系<br>厳密計算(完全CI解)実用化<br>1,000原子、 $10^{20}$ 以上の電子配置の組合せ<br><br>・有機太陽電池<br>現実系界面(ドナー・アクセプター界面)、<br>10,000原子                 |
| 個別部材のシミュレーション<br><br>・電極反応<br>数千原子規模の第一原理計算<br><br>・電解質膜<br>数百万原子系のMD計算                                    | <b>サブ課題B</b> <b>全電池シミュレータ(二次電池、燃料電池)</b><br>基盤アプリ stat-CPMD、MODYLAS<br>・電極反応：5,000原子系反応計算<br>・高分子電解質膜など：1～10億原子系物質移動解析<br>・電極界面の精密な描像の確立<br>・新規材料・新型電池の機能性の予測理論の構築<br>・高効率かつ高安全性な電解液・電解質材料の設計指針<br>・燃料電池白金代替物質の設計指針<br>先行的成果      電気自動車用Liイオン電池<br>先行的成果      車載用高分子形燃料電池  | 全電池シミュレータ<br>・二次電池<br>・燃料電池<br><br>・反応自由エネルギーと物質移動に基づいた電流電圧曲線、電極界面のマイクロ機構解明<br>5,000原子第一原理計算と数億原子MD計算の統合                                      |
| ・メタンハイドレートの融解<br>数十万原子規模の分子系のMD計算<br>・均一触媒反応<br>数十原子の反応経路探索<br>・CO <sub>2</sub> の分離・回収<br>5,000原子系のQM-MD計算 | <b>サブ課題C</b><br>・数千万原子規模分子シミュレーション<br>・ハイドレート生成解離機構解明、蓄冷材セキラスレート構造・潜熱基礎原理確立<br>・メタン効率的回収貢献<br>・1,000原子触媒反応機構解析手法開発<br>・CO <sub>2</sub> 有効資源化触媒や燃料電池非白金系触媒の高機能触媒設計貢献<br>・100万原子系大規模解析にて、アミン最適反応条件やMOFなど多孔質材料の指針提案   | ・ハイドレート分離・貯蔵、蓄冷機能<br>数千万原子規模分子シミュレーション<br>・不均一触媒表面反応<br>1,000原子系反応経路探索<br><br>・CO <sub>2</sub> の化学吸収法最適化<br>・MOFなどの固体吸収材設計<br>100万原子系のQM-MD計算 |

表4-1 主な最終目標 (赤字：サイエンス的目標、青字：産業界での活用目標、黒字：手法等アプリケーション開発目標)  
別添 2-65

(5) 開発アプリの国際的優位性を客観的指標に基づいて明確にすること。

国際的によく利用されているアプリケーションと開発する基盤アプリとを比較し、優位点とそれにより可能となることを整理したが非公開資料のため掲載しない。

(6) 各コードの普及策を検討すること。

従来通り、重点課題5で開発する基盤アプリの普及を目的とし、学生・実験研究者だけでなく企業研究者をも対象として、HPCI 戦略分野2で実施してきた分子シミュレーション、量子化学の2コースを引き続き開講する（平成30年度参加人数：計212名、分子研において11年前から継続中）。また、基盤アプリを、「京」コンピュータ、岡崎共通研究施設計算科学研究センター（RCCS）、計算科学振興財団（FOCUS）等に整備し、講習会を高度情報科学技術研究機構（RIST）及びFOCUSと協力して実施していくことで、産業界（「京」、FOCUS）、アカデミア（「京」、RCCS）の利用を推進する。RIST調べによる利用実績を表4-2に示す。これらの取り組みの成果により、基盤アプリのNTChemとMODYLASは、利用アプリの上位にランクインしている。さらに、産業界側の実ニーズの把握のために産協協の「HPCアプリの将来像に関する意見交換」等の取組に協力・参画する。

今後、RISTに協力することにより、HPCIセンターへ開発アプリの整備を進める。特に産業への普及促進のため、GUIによる簡易な操作と計算結果の可視化機能を実現するためプリポストソフトとの結合を検討していく。尚、既に開発アプリのMODYLAS、DC-DFTBとSMASHは、クロスアビリティ社のWinmostar（分子モデリング・可視化ソフトウェア）との連携機能が実装されている。NTChemやGELLANについても現在検討中である。

| 順位 | アプリ名                | (利用・申請)課題数 |    |    | 分野(手法)        | 開発種別  |
|----|---------------------|------------|----|----|---------------|-------|
|    |                     | 合計         | 学術 | 産業 |               |       |
| 1  | GROMACS             | 27         | 24 | 3  | 古典MD          | 海外OSS |
| 2  | OpenFOAM            | 18         | 5  | 13 | CAE/気象・防災     | 海外OSS |
| 3  | MODYLAS             | 16         | 14 | 2  | 古典MD          | 国プロ   |
| 4  | FrontFlow/blue(FFB) | 14         | 5  | 9  | CAE/気象・防災     | 国プロ   |
| 5  | FrontFlow/red(FFR)  | 12         | 5  | 7  | CAE/気象・防災     | 国プロ   |
| 6  | GENESIS             | 11         | 11 | 0  | 古典MD          | 国プロ   |
| 7  | LAMMPS              | 10         | 4  | 6  | 古典MD          | 海外OSS |
| 7  | Quantum ESPRESSO    | 10         | 7  | 3  | 第一原理計算(平面波基底) | 海外OSS |
| 7  | VASP                | 10         | 9  | 1  | 第一原理計算(平面波基底) | 商用    |
| 10 | NTChem              | 9          | 9  | 0  | 量子化学計算        | 国プロ   |
| 10 | SCALE               | 9          | 9  | 0  | 気象・防災         | 国プロ   |
| 10 | LANS3D              | 9          | 8  | 1  | CAE           | 独自開発  |

※H27年度利用報告書及びH28年度の不採択課題を含む課題申請書(合計384課題)より集計  
出典: H30年10月12日 第6回材料系ワークショップ RIST講演資料

表 4-2 「京」を中核とする HPCI システム: 利用実績のあるアプリケーション

(7) 本計算科学から、他の関連(実験)プロジェクトへの大きな波及を目指して、個別課題への対応だけでなく、ポスト「京」の戦略的活用のための総合的な枠組みを検討すること。

大型国家プロジェクト(元素戦略、ARPCHEM、ImPACT等)との連携(18件)は現在も進めている(図4-3、図1-3:P.21、図1-5:P.23参照)が、今後、ポスト「京」の戦略的活用のための総合的な枠組みとして当該サブ課題責任者、サブ課題実施者を中心とした、プロジェクト連携推進会議設置を検討する。また、大型実験施設:Spring-8(登録機関JASRI)、J-PARC(登録機関CROSS)、「京」(登録機関RIST)とは、連携利用シンポジウムの開催などを通して、今後も関連(実験)プロジェクトのニーズを把握する。

更に、第5期科学技術基本計画の重要政策課題のひとつである「エネルギーの安定的確保とエネルギー利用の効率化」及びその次の科学技術基本計画への展開も見据えて、本重点課題の成果(エネルギーの新規基盤技術)とポスト「京」を戦略的に活用するため、前述の枠組みも活用し将来の計画を検討する。

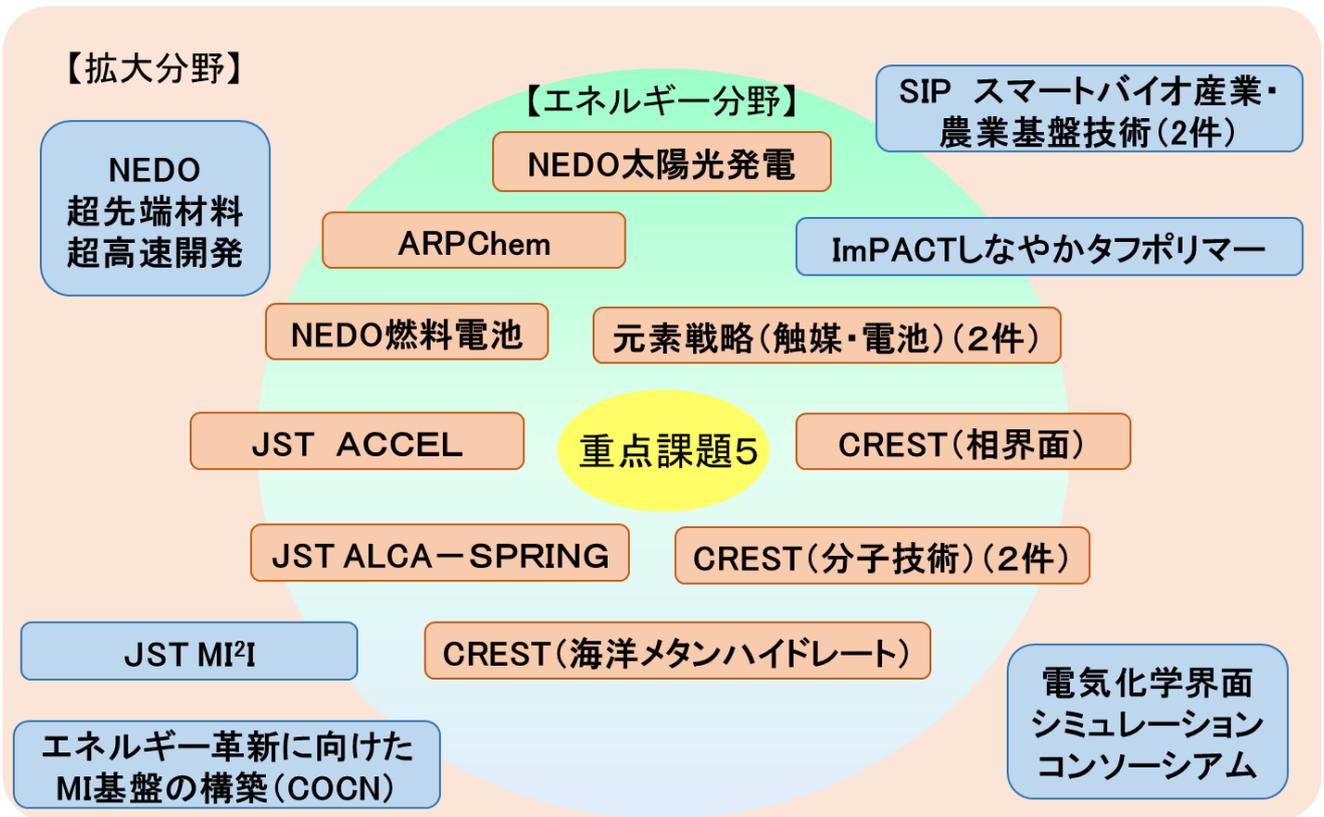


図4-3 大型国家プロジェクトとの連携

## (別紙1) 実施機関一覧

|       | 実施機関／協力機関                                     | 備考                       |
|-------|---|--------------------------|
|       | 自然科学研究機構 分子科学研究所                              | 代表機関<br>(課題責任者) 岡崎 進     |
| サブ課題A | 神戸大学  | 分担機関<br>(サブ課題責任者) 天能 精一郎 |
|       | 理化学研究所  | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 中嶋 隆人  |
|       | 京都大学 学際融合教育研究センター                             | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 山下 晃一  |
|       | 大阪市立大学 大学院理学研究科                               | 協力機関                     |
|       | 大阪大学 産業科学研究所                                  | 協力機関                     |
|       | 岡山大学 異分野基礎科学研究所                               | 協力機関                     |
|       | 岐阜大学 大学院地域科学研究科                               | 協力機関                     |
|       | 京都大学 大学院工学研究科                                 | 協力機関                     |
|       | 京都大学 大学院工学研究科/WPI-iCeMS                       | 協力機関                     |
|       | JXTGエネルギー                                     | 協力機関                     |
|       | 自然科学研究機構 分子科学研究所                              | 協力機関                     |
|       | 首都大学東京 大学院都市環境化学研究科                           | 協力機関                     |
|       | Slovak Academy of Sciences                    | 協力機関                     |
|       | 電気通信大学 大学院情報理工学研究科                            | 協力機関                     |
|       | 東京工業大学 大学院理工学研究科                              | 協力機関                     |
|       | 東京大学 大学院工学系研究科                                | 協力機関                     |
|       | 東京大学 大学院総合文化研究科                               | 協力機関                     |
|       | 東京大学 大学院理学系研究科                                | 協力機関                     |
|       | 名古屋大学 大学院理学研究科                                | 協力機関                     |
|       | 日本女子大学  | 協力機関                     |
|       | Max Planck Institute for Solid state research | 協力機関                     |
|       | 三菱ケミカル株式会社                                    | 協力機関                     |
|       | 理化学研究所 創発機能高分子研究チーム                           | 協力機関                     |
| サブ課題B | 東京大学(物性研究所)                                   | 分担機関<br>(サブ課題責任者) 杉野 修   |
|       | 物質・材料研究機構                                     | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 館山 佳尚  |
|       | 名古屋大学(大学院情報科学研究科)                             | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 長岡 正隆  |
|       | 名古屋大学(大学院工学研究科)                               | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 岡崎 進   |
|       | AGC株式会社                                       | 協力機関                     |
|       | 大阪大学 大学院工学研究科                                 | 協力機関                     |
|       | 大阪府立大学 大学院理学系研究科                              | 協力機関                     |
|       | 金沢大学 大学院自然科学研究科                               | 協力機関                     |
|       | 九州工業大学 情報工学研究院                                | 協力機関                     |
|       | 京都工芸繊維大学 大学院工芸科学研究科                           | 協力機関                     |
|       | 京都大学 触媒・電池元素戦略ユニット                            | 協力機関                     |
|       | 慶應義塾大学 理工学部                                   | 協力機関                     |
|       | 神戸大学 大学院工学研究科                                 | 協力機関                     |
|       | 産業技術総合研究所                                     | 協力機関                     |
|       | 産業技術総合研究所 機能材料コンピュータシミュレーション研究センター            | 協力機関                     |
|       | 滋賀大 データサイエンス教育研究センター                          | 協力機関                     |
|       | 昭和電工株式会社                                      | 協力機関                     |
|       | 住友化学株式会社                                      | 協力機関                     |
|       | 玉川大学 工学部                                      | 協力機関                     |
|       | 電気通信大学 情報理工学部                                 | 協力機関                     |
|       | 東京大学 情報基盤センター                                 | 協力機関                     |
|       | 東京大学 大学院工学研究科                                 | 協力機関                     |

|       | 実施機関／協力機関                        | 備考                      |
|-------|----------------------------------|-------------------------|
|       | 東京大学 大学院新領域創成科学研究科               | 協力機関                    |
|       | 東京大学 物性研究所                       | 協力機関                    |
|       | 東京理科大学理学部応用化学科                   | 協力機関                    |
|       | 株式会社東芝                           | 協力機関                    |
|       | 東北大学 原子分子材料科学高等研究機構              | 協力機関                    |
|       | 東レ株式会社                           | 協力機関                    |
|       | トヨタ自動車株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 名古屋工業大学 大学院物質工学専攻                | 協力機関                    |
|       | 名古屋大学 情報基盤センター                   | 協力機関                    |
|       | 名古屋大学 未来材料・システム研究所               | 協力機関                    |
|       | 株式会社日産アーク デバイス機能解析部              | 協力機関                    |
|       | 日東電工株式会社                         | 協力機関                    |
|       | 福井大学 大学院工学研究科                    | 協力機関                    |
|       | 富士フイルム株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 物質・材料研究機構 情報統合型物質・材料研究拠点         | 協力機関                    |
|       | 物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究拠点         | 協力機関                    |
|       | ブリヂストン株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 三重大学 大学院工学研究科                    | 協力機関                    |
|       | 三菱ケミカル株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 三菱樹脂株式会社                         | 協力機関                    |
|       | 横浜国立大学 大学院工学研究院                  | 協力機関                    |
|       | 理化学研究所 計算科学研究センター                | 協力機関                    |
| サブ課題C | 岡山大学                             | 分担機関<br>(サブ課題責任者) 田中 秀樹 |
|       | 北海道大学                            | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 武次 徹也 |
|       | 早稲田大学                            | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 中井 浩巳 |
|       | 自然科学研究機構 分子科学研究所                 | 分担機関<br>(サブ課題実施者) 奥村 久士 |
|       | 株式会社IHI 技術開発本部 基盤技術研究所           | 協力機関                    |
|       | Oak Ridge National Laboratory、米国 | 協力機関                    |
|       | 岡山大学 大学院自然科学研究科                  | 協力機関                    |
|       | 京都大学 大学院工学研究科/WPI-iCeMS          | 協力機関                    |
|       | 京都大学 大学院工学研究科                    | 協力機関                    |
|       | 慶應義塾大学 理工学部 機械工学科                | 協力機関                    |
|       | 産業技術総合研究所 機能材料コンピュータリサーチ研究センター   | 協力機関                    |
|       | 首都大学東京 都市教養学部                    | 協力機関                    |
|       | 新日鐵住金株式会社 先端技術研究所                | 協力機関                    |
|       | 成均館大学校、韓国                        | 協力機関                    |
|       | 台湾國立交通大學、台湾                      | 協力機関                    |
|       | 太陽誘電株式会社                         | 協力機関                    |
|       | (公財) 地球環境産業技術研究機構(RITE) 化学研究グループ | 協力機関                    |
|       | 東京大学 大学院理学系研究科化学専攻               | 協力機関                    |
|       | 東北大学 流体科学研究所                     | 協力機関                    |
|       | パナソニック株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 物質・材料研究機構                        | 協力機関                    |
|       | 物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究拠点         | 協力機関                    |
|       | 北海道大学 情報基盤センター                   | 協力機関                    |
|       | 北海道大学 触媒科学研究所                    | 協力機関                    |
|       | 北海道大学 大学院工学研究院                   | 協力機関                    |
|       | 北海道大学 大学院理学研究院                   | 協力機関                    |
|       | 三菱ケミカル株式会社                       | 協力機関                    |
|       | 早稲田大学 先進理工学部                     | 協力機関                    |