

[報 告] 計算科学・計算機科学人材育成のためのスーパーコンピュータ無償提供利用報告

理学部化学科での計算化学演習

— 物理化学演習 B の Gaussian 実習 —

森田明弘

東北大学大学院理学研究科化学専攻

東北大学理学部化学科では、3年生を対象として当センターの「計算科学・計算機科学人材育成のためのスーパーコンピュータ無償提供」の制度を利用して、物理化学演習 B が実施されている。この演習（担当：森田明弘教授）は、水曜日 1 限に前期semesterを通して開講され、化学科 3 年生の大半が受講した。本稿ではその内容を紹介する。

本演習は、物理化学系の講義の一環として、群論および量子化学の理解を深めることを目的として、1 semester の前半に群論の演習、後半に量子化学の演習を行っている。毎回化学科の講義室にて演習で扱う内容をまとめた講義を行い、それに関連する演習問題を宿題とする。学生は各自次回の演習までに、それを解いてレポートをまとめて提出する。次回の演習の初めには、その解答を解説して質問を受け付ける。成績は、提出されたレポートをもとにして評価する。サイバーサイエンスセンターより学生のための教育用アカウントを発行していただき、後半の量子化学の演習問題を解く際に、学生はサイバーサイエンスセンターの計算機で Gaussian を使用した。

群論と量子化学は、物理化学の中でも特に演習が必要な課題である。群論は化学系の学生にとって、分子・結晶の対称性を理解する上で必須の知識といえるが、論理的な体系を講義するだけでは十分な理解が身に着くとはいえず、実際に学生自ら手を動かして対称性の感覚を把握できるようにならないと、今後の研究で使いものにならない。そのためには、演習問題をこなす機会を用意することが必要であると考えている。量子化学も同様であり、近年の計算機の進歩に伴って、分子軌道法や密度汎関数法は、一部の理論化学者だけのものではなく、汎用的な“計測機器”として実験化学者にも日常的に用いられる手法となっている。量子化学を実際の研究で使うためには、電子状態の理論を学ぶだけでは十分でなく、実際に使用してみることが不可欠である。本演習では、現在最も広く普及している電子状態計算プログラムである Gaussian を用いて、その使い方に即して演習の機会を提供した。

本演習全体の内容をまとめると、以下のようになる。

群論演習（前半）

1. 群論の化学における重要性、対称操作、群とは、点群の種類と記号
2. 群の表現、既約表現と指標
3. 既約表現の記号、指標表の見方・使い方
4. Hamiltonian の対称性、直積表現
5. 分子の電子状態と電子スペクトルへの応用
6. 振動スペクトルへの応用
7. 固体結晶への応用

量子化学演習（後半）

1. Schrödinger 方程式と電子状態理論の精度

2. 分子内座標、原子単位
3. 基底関数
4. 構造最適化と振動計算
5. 開殻系の波動関数、電子相間
6. Gaussian の実用的な使い方、分子間力、分子内の電荷分布
7. 溶液内の分子、励起状態

以下、サイバーサイエンスセンターを利用させていただいた後半の量子化学の演習を紹介する。

分子の電子状態計算は、Schrödinger 方程式に対する何らかの近似解を求めるものであるが、長い研究の歴史のなかで、その精度や妥当性に関して多くの知見が蓄積している。精度を無視した計算結果は無意味であり、本演習の第一の目的として、自分が扱いたい分子や物性量を実際に計算してみて、ユーザーの立場からみてその精度を実感してもらうことに置いた。良い結果を得るためには、適切な電子状態理論の手法（電子相間の扱い）と基底関数を選ぶことが必要であり、それぞれ実例をもって納得してもらう。

たとえば基底関数について例をあげると、基底関数には最小基底、double zeta、triple zeta という精度の系列があり、さらに分極関数や diffuse 関数が適切に加えられることを知っておく必要がある。よく知られた例では、アンモニア NH_3 分子の分子構造を記述するには分極関数が必要であること、アニオンの電子状態を描くには広がった基底関数が必要であることなど、実例をあげて演習する。また開殻系や励起状態など、電子状態の特徴を知って波動関数の記述を考える場合があることを学習した。励起状態の詳細な扱いは本演習の範囲を超えているが、時間依存密度汎関数のレベルで扱った。構造最適化や振動数計算、Gaussian の多段ジョブなど、実用的にも役に立つ計算手法も、なるべく紹介するようにした。

一般に良い精度の計算を実行するには大きな計算資源が必要であり、実際の電子状態計算は、精度と計算資源のバランスの中で行われる。本演習のなかでも、可能なかぎり良い精度での計算を学生に体験してもらうためには、本サイバーサイエンスセンターの計算資源の提供は大変有意義であった。

謝辞

本演習は、東北大学サイバーサイエンスセンターのスーパーコンピュータを利用することで実現することができた。また、研究にあたっては同センター関係各位に有益なご指導とご協力をいただいた。