

[8] 研究室だより「金沢大学理工学域数物科学類計算科学コース 計算分子科学研究室」

金沢大学 数物科学類

三浦伸一 smiura@mail.kanazawa-u.ac.jp

1. はじめに

金沢大学の角間キャンパスは、金沢市郊外の緑あふれる山の中腹にあります。自然にあふれていますので、運が良ければキャンパスの端にある駐車場近辺で野生の熊に出会うことができますし、運が悪ければそのまま熊の餌食となります[1]。山の中とはいえ、学生街を形成している麓からバスで数分程度の距離で、朝は麓から大学までの一本道を大勢の学生が立ちこぎをしながら自転車で登っていく姿を見ることができます。また繁華街である片町・香林坊は大学からバスで20分程度のところにあり、結構な便数がありますので交通の便は良いと言えるでしょう。

北陸に視点を広げると、福井大学には玉井さん、古石さんのグループ、富山大学には石山さんのグループがあり、少しずつ交流を始めようとしています。少し離れますが、新潟大学には大鳥さんのグループもありますし、最近吉森さんも移ってこられたので、日本海側もだんだんと賑やかになってきました[2]。

さて、金沢に視点を戻しましょう。私の所属は理工学域・数物科学類・計算科学コースという見慣れない名称のオンパレードですので、多少説明が必要かと思います。金沢大学では、2008年度に学部が改組され、理学部と工学部が合併して理工学域となりました。少し大きめの学科に対応するものとして、旧理学部の数学科、物理学科、計算科学科が合同して数物科学類となっています。さらに旧3学科に対応するものとして数学、物理学、計算科学の3コースが学類のなかにあります。

私は計算科学コースに所属しているのですが、これまた一般には馴染みのない名称です。計算機のアーキテクチャ、コンパイラ的设计、ネットワークの構築などなど、を対象としているのは「計算機科学」です。「計算科学」は、計算機科学の技術を駆使して科学の問題を発見し解決する学問です[3]。一般的には計算科学がカバーする領域は極めて広大ですが、金沢大学の計算科学コースは主に数学と物理学を研究教育の基礎としています。この2つの学問領域に対応して、計算数理教育プログラムと計算実験教育プログラムという2つのプログラムがコース内に用意されています。私が

関係しているのは計算実験教育プログラムなのですが、このプログラムでは物理学コースのスタッフと協調しながら、物理学の学部教育をすると共にコンピュータシミュレーションの基礎も学ぶことになります。学部レベルで計算機シミュレーション関係の講義に多くの時間を割いているところは国内にはおそらくないと思いますので、金沢大学の大きな特色であると言えるでしょう。

2. 研究室の概要

個人的な話で恐縮ですが、分子科学研究所から金沢大学の計算科学科へ助教授として着任したのは、2007年の1月でした。引っ越しの最中に豪雪に見舞われ、大学までの坂を学生が皆かんじきをはいて登学しているのを目の当たりにして、北陸恐るべしと思ったというのは作り話で、寒いけれどもそれほどでもないかなあという印象でした[4]。着任後は、独立した研究グループを立ち上げ、2014年の教授への昇任を契機に計算分子科学研究室としての活動を始めました。現在の研究室は、私と岩崎宏先生のスタッフ2名で運営しています。岩崎先生は、流体力学の非線形波動論がご専門ですが、液体論にも関心を持っていただき楽しく共同研究をしています。現時点で、学生は、博士課程にインドネシアからの留学生が1名、修士課程は4名、学類生は3名が在籍しており、スタッフを含めて総勢10名ということになります。

某研究会のニューレターの〈研究室めぐり東西南北〉に研究室紹介を寄稿した際にも書きましたが[5]、外部の研究者を招聘してのセミナーの機会が少ないことがいささか寂しい状況です。細々とではありますが、私の研究室主催で面白そうな研究をしている人を呼んでコロキウムを開催しています。北陸新幹線も金沢まで開通して、交通の便も以前よりもずっとよくなりましたので、是非とも遊びにきて頂ければと思います。一時期中断していた時期もありましたが、これまで12回開催しています。最近では、京都大学の高賢得先生をお招きし、量子ダイナミクスの最近の話題をお話いただきました。コロキウムは盛況のうちに終了し、その後は金沢の繁華街である片町に繰り出しました(図1参照)。皆さんご想像のとおり、北陸の海



図 1 コロキウム後の懇親会。研究室のメンバーと片町界隈の木倉町通りにある居酒屋にて。分かりにくいですが、左手奥が講師の金さん。結構いける口でした。

の幸は格別で、訪問者の皆さんは舌鼓を打ちたおしておられます。錦織圭さんの宣伝効果で、のどろへの妄想は膨らむ一方でございましょう。

3. 研究内容

これまで取り組んできた問題を今後の展望も含めて個別に説明します。多少古い話も含まれていますが、ご容赦下さい。

3.1 量子液体の諸相

近年、極低温下における量子凝縮系で生起する分子プロセスへの関心が高まっています。超流動状態にあるナノサイズの液滴ヘリウムを舞台として、その内部（あるいは表面）に捕捉された分子系が分光学的に測定可能となってきたことによりその興味は加速されています。媒体である超流動ヘリウムはその名が示すように粘性率がゼロで特徴づけられる量子力学的な液体状態です。このような特異な環境下での分子プロセスはどのようなものになるのでしょうか？ナノ液滴を用いた実験技術の進歩によりこの問いに鋭く迫ることが可能になってきました。この手法はしばしば Helium Nano-Droplet Isolation (HENDI) 分光法と呼ばれます。これまでの HENDI 分光実験から、液滴内の分子ダイナミクスは様々な“奇妙な”振る舞いを示すということが明らかになってきました。極めて印象的な例として OCS 分子の回転運動をあげることができます。液滴に捕捉されたこの分子の赤外スペクトルはあたかも真空中で自由回転しているような振る舞いを示します。つまり液滴内に溶媒

和した分子は、周りのヘリウム原子と相互作用しているにもかかわらず、“有効的に”媒体から摩擦を受けずに運動していることになります。超流動ヘリウムは巨視的にはゼロの粘性率で特徴づけられますが、実験は微視的なレベルでも超流動性が分子のダイナミクスに劇的な変化を与えることを明確に示しているのです。

私は、上述の問題に対して“第一原理”から量子シミュレーション法を駆使し、理論的にアプローチしました[6]。分子をドーブした超流動ヘリウムクラスターのためのシミュレーション手法を開発し、この方法を OCS 分子をドーブした超流動クラスター（原子数 $N=64$ ）に適用することにより、超流動媒体内での特異な回転ゆらぎはヘリウム原子が従うボーズ統計の直接的な帰結であることを示しました。さらにクラスターの原子数 N を変化させ ($N=2\sim 64$)、OCS 分子-ヘリウム複合体として振る舞っている小さいクラスター領域から量子論的な溶媒和状態をとっているところまで広く計算を実行しました。クラスターが超流動性を発現するサイズ領域 ($N=10$ 程度) で分子の量子力学的な回転ゆらぎが定性的に大きく変化し、その後サイズの増大と共に大きなクラスター領域の極限へ回転ゆらぎの性質がゆっくりと収束していくことを示しました。

ヘリウムクラスター内の分子過程については未解決の問題がたくさん残されています。また、水素分子クラスターなど新規な超流動物質の探索[7]や様々な条件下での超流動相の振る舞いなど今後取り組んでみたい問題が山積みです。

3.2 水溶液・水素結合系の量子論

水素結合を介したプロトン移動反応は、広く分子系に見られる重要な素反応のひとつです。そのようなプロトン移動反応の一つのモデルとして蟻酸二量体間で起こる二重プロトン移動反応を取り上げ、第一原理的な計算機シミュレーション手法であるカー・パリネロの方法と経路積分分子動力学法を結合した方法を用いて解析しました[8]。反応は重たい原子核の熱揺らぎにアシストされたプロトンのトンネル効果により進行することを示しました。この研究の際に、高いエネルギー障壁を伴うトンネルダイナミクスのシミュレーションの大変さを痛感しました。最近、CMSI 研究員として研究室のメンバーであった河津励さん[9]とインスタントン法ベースの手法を開発し、電子状態計算と結合することにより、精度よくトンネル現象

を取り扱えることを示しました[10]。半古典論ではありますが、トンネル過程に主要な寄与をする経路に集中することにより、上述の方法よりずっと効率的に取り扱うことができます。この手法は、まだ開発の端緒にいたばかりであり、方法論的にはむしろこれからが本番なのですが、いきなり4年生の課題として出すわけにもいかず、残念ながら店晒しにされたままです。この文章を読んで、もし興味を持たれた方がおられましたら、ご連絡いただければ幸いです。

水をめぐる問題としては、プロトン化した水クラスターの問題にも取り組んでいます。後述の変分経路積分分子動力学法を使って、基底状態での様相に迫りつつあります。また、氷や水素ハイドレートの量子ダイナミクスについても検討を始めました。

3.3 新しい量子シミュレーション手法の開発

量子モンテカルロ法は、量子多体系の基底状態を精密に計算する一群の確率論的なシミュレーション手法です。最近、変分経路積分法という量子モンテカルロの方法を動力的にサンプリングする手法を開発しました[11]。変分経路積分分子動力学法といいます。同時に、試行関数を与えて物理量の期待値を分子動力学法で計算する手法の開発も行いました。こちらは変分分子動力学法といいます。液体・固体ヘリウムのような量子系にベンチマークとして適用し、その有用性は示されており、前節で触れたように水素分子クラスターやプロトン化した水クラスターのような非自明な問題に対して適用し、その物性を明らかにしつつあります。中期的な目標としては、変分経路積分法に基づくフェルミ粒子系のシミュレーション手法の確立で、いわゆる量子モンテカルロの精度で第一原理分子動力学を実現することが目的のひとつなのですが、こちらは実現するのはいつのことやら...

これ以前にもボーズ多体系の経路積分ハイブリッドモンテカルロ法や、ボーズおよびフェルミ統計の効果をポテンシャルの形に射影することによって、経路積分分子動力学法を定式化しました。ハイブリッドモンテカルロ法は、3.1 節の超流動ヘリウムクラスターの計算に大いに役立ちましたが、経路積分分子動力学法は、いくつか理由があり大規模な計算に利用できるといった状況にはありません。特にフェルミ粒子系の経路積分分子動力学法は、実用レベルまで到達すれば多方面に大

いに役立つので、今後とも考えていきたい課題です。

3.4 生体高分子の構造と機能

かなり前の話で恐縮ですが、液体の積分方程式の方法を使って水中の過剰電子の問題に取り組んだり、ヘリウムのような量子液体に対して方法を拡張したりしました[12]。その後、超流動ヘリウム内の分子ダイナミクスの問題に集中していたこともあり、積分方程式の方法からは、離れていました。ここ数年、蛋白質分子の折りたたみや超分子システムの構造を支配している自由エネルギー地形のモデリングに、液体の積分方程式理論をベースにチャレンジしようと幾つかの試みを始めています。ジペプチドに対するベンチマークや、ストリング法、拡張アンサンブル法と積分方程式の方法との結合を指向した研究を、分子シミュレーション討論会でも少しずつ発表を始めたので、まだ未熟な点多々あるかと思いますが、ご指導ご鞭撻のほどよろしくお願いします。

4. 学生生活

学類生(学部生)は、4年生になると研究室に配属されます。研究室の毎週の予定として、グループミーティングと輪読に参加することになります。グループミーティングでは、教員から順番に毎回1名が担当者となり、パワーポイントを使って発表をします。研究がまとまっている場合は、そのプレゼンテーションをしたり、あるいは各自の研究の関連領域をレビューしたりします。4年生は、まずは論文紹介あたりでしょう。半期に1回程度担当がまわってきます。適当なことを書いたり言ったりしているとじゃんじゃん突っ込まれるバーリトゥードスタイルを採用していますので、鍛えられます。輪読は、毎年1冊テキストを決めて、学生が順番に担当者となり自分に割り当てられた部分の説明をします。現在は、4年生と修士1年が担当者となり、修士2年はオブザーバーとして参加しています。今年は、チェイキン・ルベンスキーの「現代の凝縮系物理学」に取り組んでいます。

また、4年生は私が前期に担当している専門科目「化学物理学」を履修してもらうことにしています。3年生までに履修している熱統計力学と実際に研究をする際に必要な知識との間にはかなりのギャップが有りますので、それを埋めることが目的です。講義では、液体の統計力学を統計集団



図 2 大学最寄りの BBQ サイト，奥卯辰山県民公園にて。

の復習からはじめて，分布関数の方法を講述し，不可逆過程の統計力学の初歩あたりまでをカバーします。これと連動して，研究室の 4 年生には液体アルゴンの分子動力学シミュレーションの課題が課され，プログラムを作成し，液体物性を詳細に解析することにより，講義で習得した理論を自らの血肉とすることになります。

後期になると，卒業に向けて具体的なテーマに取り組むことになります。多くの学生は，そのまま大学院に進学しますので，院での研究にスムーズに接続するよう，問題設定をします。推薦入試などで早めに進学が決まった学生は，秋の討論会で発表したりすることもあります。

年間の行事としては，花見，新歓コンパ，春の遠足 BBQ (図 2 参照)，前期打上げ，忘年会，追出しコンパなどの節目の行事は勿論のこと，コロキウムなどでお客さんが来たり，特に理由はないけれども飲み会をしたりします。また，修士以上の学生は，秋に分子シミュレーション討論会などの学会活動をし，研究がまとまれば，国際誌に論文が掲載されることもあります。

5. おわりに

以上，駆け足で金沢大学の計算分子研究室の紹介をしました。以下の URL にグループのウェブページがありますので[13]，時間に余裕のあるときにもでも訪問していただければと思います。また，大学院入学希望者は歓迎ですので，いつでもコンタクトしてください。

<http://cmt.w3.kanazawa-u.ac.jp/>

参考文献

- [1] 実際に被害にあったという話は聞いたことはありません，念のため。
- [2] 金さんは，あっという間に太平洋側の人になってしまいました。
- [3] 計算科学コースのウェブページから転載。
- [4] とはいえ，太平洋側と比べると降雪量はずっと多いですし，数年に 1 回はしゃれにならないほど積もります。こういう時は，空から雪が，ボトツ，ボトツと際限なく落ち続けるという感じです。
- [5] 溶液化学研究会ニュース，2009 年頃 (バックナンバーは公開されていないので，詳細は不明)。
- [6] S. Miura, J. Chem. Phys. **126**, 114308 (2007); *ibid.* **126**, 114309 (2007).
- [7] 三浦伸一，“水素分子クラスターの量子構造ゆらぎ”，J. Comput. Chem. Jpn. (印刷中)。
- [8] S. Miura, M. E. Tuckerman, and M. L. Klein, J. Chem. Phys. **109**, 5290 (1998).
- [9] 現在は，横浜市立大学の立川研究室に所属。
- [10] T. Kawatsu and S. Miura, J. Chem. Phys. **141**, 024101 (2014); *ibid.*, Chem. Phys. Lett. **634**, 146 (2015).
- [11] S. Miura, Chem. Phys. Lett. **482**, 165 (2009).
- [12] K. Shinoda, S. Miura, and S. Okazaki, J. Chem. Phys. **114**, 7497 (2001); *ibid.*, J. Chem. Phys. **115**, 4161 (2001).
- [13] なかなか時間がとれないので，あまり更新されていません。大学以来の友人 (情報系) に，ウェブページをわざわざ貧乏くさくしている理由は何だと聞かれましたが，わざわざではありません。

著者紹介



三浦伸一 (博士 (理学)) : [経歴] 1995 年京都大学理学研究科博士課程単位取得満期退学，その後，ペンシルバニア大学博士研究員，東京工業大学総合理工学研究科助手，分子科学研究所助手を経て，2007 年から金沢大所属。[専門] 液体物性理論，理論分子科学，分子シミュレーション。[趣味] 海外旅行，読書，映画鑑賞。