

相対論的電子論が拓く革新的機能材料設計

中井浩巳：早大、波田雅彦：首都大、中嶋隆人：理研、長谷川淳也：北大、
青木百合子：九大、平田聡：イリノイ大

理論計算に基づく物質設計では、置換基の変化による機能発現など、化学的精度での取り扱いが求められる。元素戦略が対象とする希少元素や規制元素の多くは重元素であり、相対論的効果が無視できない。しかしながら、今日の量子化学計算は Schrödinger 方程式に基づく非相対論的な取り扱いが主流であり、相対論効果はアドホックに考慮する程度である。そのため、化学的精度での理論設計は困難な状況である。

本研究では、Dirac 方程式に基づく相対論的量子化学理論の確立を目指した。さらに、この理論に基づき、触媒活性・電磁気特性・電子機能材料・生体光機能・機能性高分子における元素の特性を理解し、革新的な機能を持つ物質・材料設計を目指した。

相対論的量子化学理論の確立では、2 成分相対論法に対する線形スケリング法などいくつかの理論開発を行った[1,2]。図 1 に示すように、本研究で開発した相対論的手法 (DC-LUT-IODK) 法は、従来法 (4c, X2C, IODK) より圧倒的に高速であり、非相対論 (DC-NR) と同等の計算時間となった。開発した理論は、独自の相対論的量子化学計算プログラム RAQET に実装した。RAQET を公開することにより、世界中の研究者が周期表のあらゆる元素が関与する現象に対して理論研究が可能となる。

機能材料設計については、代表的な成果として、スピナー軌道相互作用を考慮した励起状態理論による次世代色素増感太陽電池材料の理論設計、「京」コンピュータを利用した非鉛化ペロブスカイト太陽電池の探索に関して、ポスター発表を行う。

以上の研究に加えて、CREST「元素戦略」領域内外の研究チームとの連携研究を行った。成果の一例として、森田チームが合成した安定なラジカルの計算結果を示す (図 2)。独自の手法を用いた大規模計算により光学特性を再現し、新たな光吸収機構を提案した[3]。

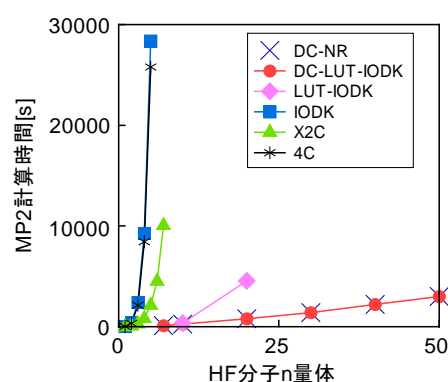


図 1. DC-LUT-IODK 法と従来法の計算時間比較.

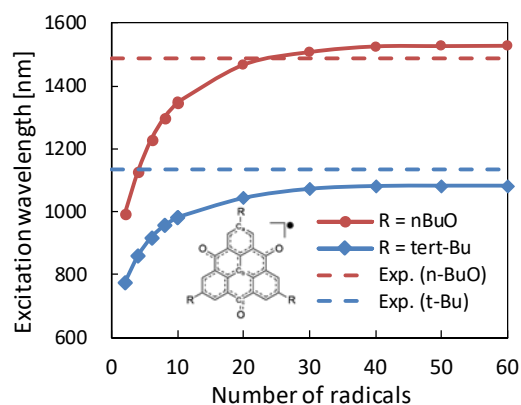


図 2. 安定ラジカル集積体の光吸収波長.

参考文献

- [1] J. Seino and H. Nakai; J. Chem. Phys., **139**, 034109 (2013).
- [2] J. Seino and H. Nakai; J. Comput. Chem. Jpn., **13**, 1 (2014).
- [3] Y. Ikabata, Q. Wang, T. Yoshikawa, A. Ueda, T. Murata, K. Kariyazono, M. Moriguchi, H. Okamoto, Y. Morita, H. Nakai; npj Quantum Materials, **2**, 27 (2017).

関連 web

<http://www.chem.waseda.ac.jp/nakai/crest/>