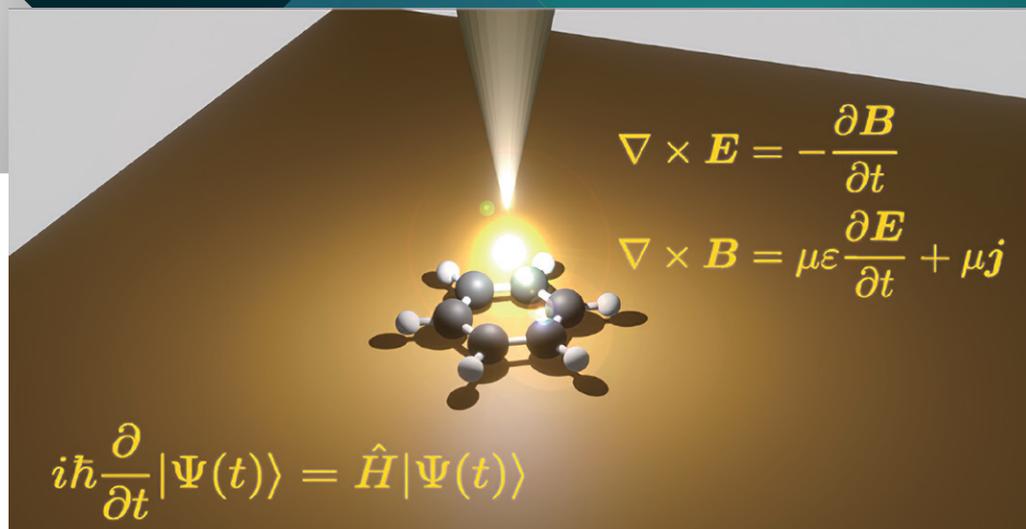


近接場光による励起状態の 制御に向けた最先端の理論構築と 計算科学の推進

Your
Trusted,

technology and solution advisor.

SOLUTION
Report



北海道大学
理学部化学科 理学研究院化学部門
Department of Chemistry, Faculty of Science, Hokkaido University

北海道大学大学院 理学研究院 化学部門

北海道大学大学院 理学研究院 化学部門 量子化学研究室は、化学反応のメカニズムとダイナミクスの解明に「理論と計算」で取り組む最先端の研究拠点である。進化し続ける計算化学は「予測する化学理論」としての役割を担うようになり、実験データの再現や解釈を超える成果が期待されている。北海道大学 大学院理学研究院 化学部門 量子化学研究室 助教の岩佐豪氏は、我が国における「近接場光化学・ナノ分光理論」のトップランナーの一人。2020年12月には「近接場ラマン分光のための理論手法」の開発で画期的な成果をあげた。量子力学と電磁気学で解き明かすナノ領域の光と分子の相互作用——その最先端の取り組みに迫る。

- POINT 01 ● 近接場光と分子振動の相互作用の定式化と計算
- POINT 02 ● 光散乱のメカニズムを知り、励起状態を人の力で制御する
- POINT 03 ● 分子と光、化学と物理の学際領域で、双方の良いところを活用
- POINT 04 ● AMD EPYC™プロセッサ搭載HPE ProLiant DL325 Gen10サーバーを導入
- POINT 05 ● 多くの研究者に利用してもらえる学術的意義の高い研究を追求

AMD



北海道大学大学院 理学研究院 化学部門 量子化学研究室 助教 岩佐 豪 氏

POINT 01 ▶ 近接場光と分子振動の相互作用の定式化と計算

分子に光を照射したときに、その電子状態と分子構造に変化を引き起こす「光化学反応」が知られている。光化学反応は条件によって発現する性格や現象が異なるが、そのメカニズムとダイナミクスを「理論と計算」で説明することが、北海道大学大学院 理学研究院 化学部門 量子化学研究室が掲げる大きなテーマだ。同研究室で「近接場光化学・ナノ分光理論」の構築に取り組む岩佐豪 助教は次のように話す。

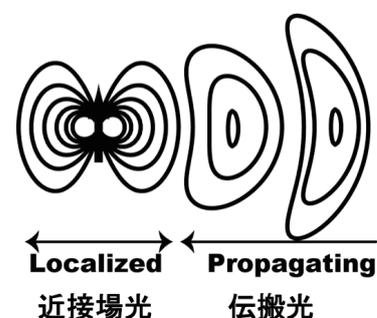
「理論と計算によって実験データを再現するだけでなく、実験では観測できない光化学反応の機構の解明や予測も可能になってきています。近年の研究では、高度な分子理論と計算手法を利用して、『単一分子による共鳴ラマン散乱の可視化』のような近接場光を使った世界最先端の実験に対して、共鳴ラマン散乱の発生を支配している選択則を理論的に裏づけました」

岩佐氏が注力する「近接場光化学」は、近接場光と分子振動の相互作用を定式化し量子化学計算により解明する研究である。近接場光は超高倍率の顕微鏡などに応用されている例もあるが、分子との相互作用については未解明の領域が大きい。

「ナノスケールで微細加工した金属針に光を照射すると、その表面付近に『近接場光』が生成されます。近接場光は、私たちが普段目にする『伝搬光』の回折限界を超えた分光やイメージングが可能のため、原子スケールの空間分解能での物質の分析に応用できます。こうした『ナノ分光理論』の確立は、触媒反応などの固体表面上における化学反応の解明にも直接的に寄与するものです」(岩佐氏)

しかし、近接場光と分子振動の相互作用は、Gaussianのような一般的な量子化学計算プログラムでは計算できない。伝搬光を前提とした双極子近似の仮定は、近接場光のような局在光では成り立たないからだ。

「私たちは、従来の枠を超えたアプローチで『ナノ分光理論』の研究を進めてきました。具体的には、近似する前のハミルトニアンに立ち戻って新しい理論と新しい計算手法を開発し、ナノスケールの局所的な光と分子の相互作用を探っています。複雑な空間構造を持つ近接場ラマン分光の選択則の解明に向け、その第一歩を記すことができたことは2020年の最大の成果と言えるでしょう」(岩佐氏)



“この近接場ではこの励起状態ができる、という相互関係をしっかりと理解できれば、究極的には励起状態そのものをデザインすることができるようになると思っています。私たちが取り組んでいる『近接場光化学』と『ナノ分光理論』の確立は、触媒に代表される革新的な新素材の開発にも結びつくものです”

— 北海道大学大学院 理学研究院 化学部門 量子化学研究室 助教 岩佐 豪 氏

POINT 02 ▶ 光散乱のメカニズムを知り、励起状態を人の力で制御する

岩佐氏が近接場光に着目し、最初の研究成果をあげたのは2009年のことだ。近接場光が分子にどのような影響を与えるか、当時はそれを計算するためのフレームワークすら存在しなかったが、岩佐氏は多重極ハミルトニアンを使うと帰結できることに気づきプログラム開発と計算に没頭したという。

「近接場光の空間構造を計算に取り込むための方法を確立したことが2009年の成果です。2015年には、近接場光による分子振動励起の相互作用に関する理論計算手法を構築しました。当時、赤外吸収分光のような解析手法を近接場光に適用した例はどこにもなかったので、やってみようと思ったのです」と岩佐氏は振り返る。

その後、岩佐氏の研究はより実践的に、より実験との連携を強く意識したものに進化していく。2016年には、実験に対応したスペクトルの計算を行って先の理論計算手法の確かさを示した。

「さらに、赤外吸収分光に続いてラマン分光による解析理論を構築したのが2018年の研究です。理化学研究所の実験チームと協力し、『単一分子による共鳴ラマン散乱』の実験結果に理論的な解釈を示しました。走査トンネル顕微鏡 (STM) を使用した世界最高レベルの空間分解能による実験に、共鳴ラマン散乱の発生を支配している選択則を記述することに成功したのです」(岩佐氏)

本研究は、著名な科学雑誌 Nature Nanotechnology (オンライン版) にも掲載された。さらに2020年には、「多極ハミルトニアンと実時間電子ダイナミクスを用いた近接場ラマン分光法の理論的方法」を発表した。岩佐氏は次のように説明する。

「複雑な電場の空間構造と非線形それぞれの効果を取り込める新しい計算手法を使い、優れた分解能を持つ『チップ増強ラマン分光法 (TERS)』における解析を行いました。これにより、近接場ラマン分光を実際の実験で利用するための理論計算手法の確立に向けた研究を、大きく前進させることができました」

岩佐豪氏・研究の歩み

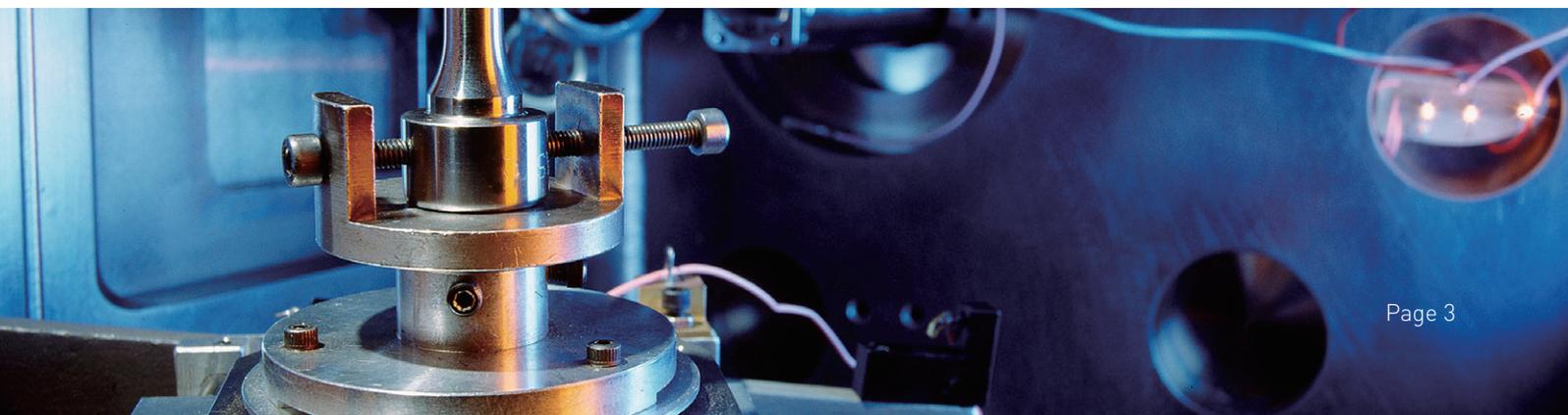
2009年: 近接場光による光化学反応の研究 (近接場光の空間構造を計算に取り込む方法を確立)

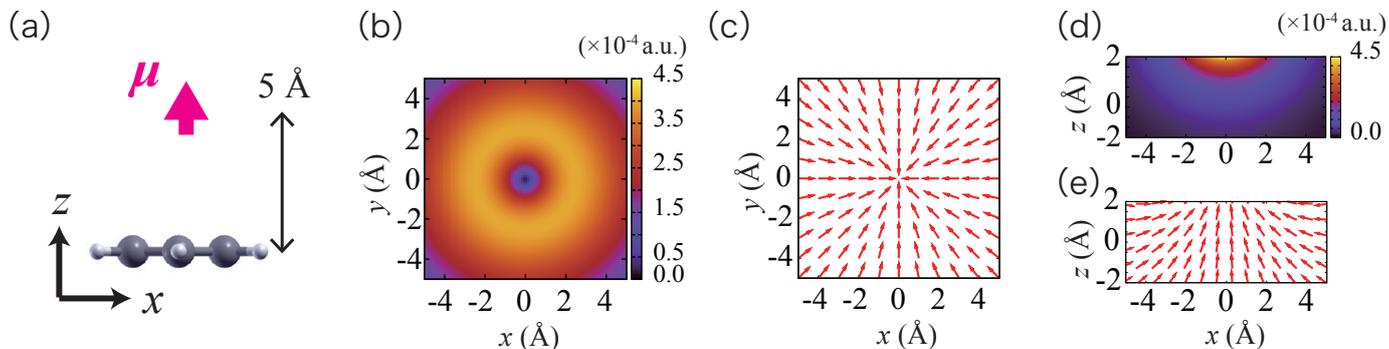
2015年: 近接場と分子振動の相互作用に基づいた光学応答理論 (近接場振動分光の基礎理論を構築)

2016年: 近接場振動分光の実在系への応用 (電磁場計算の導入)

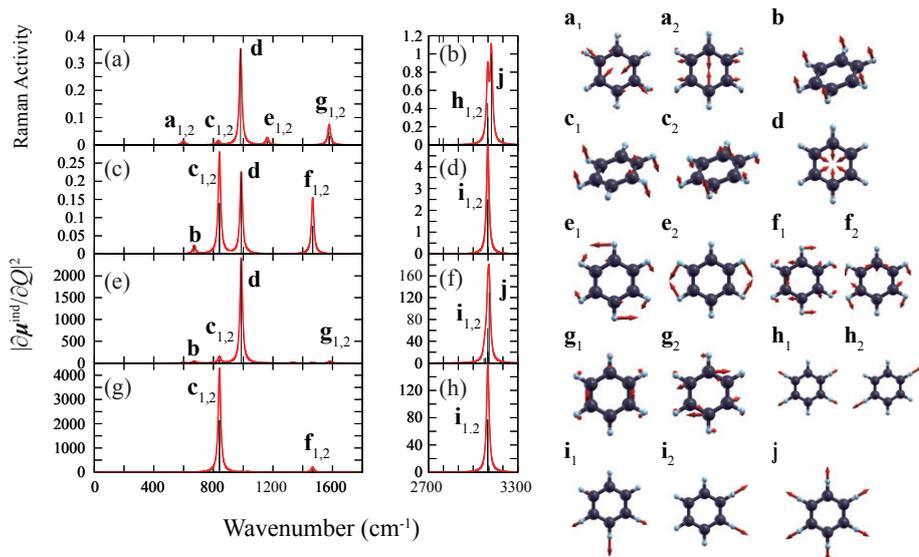
2019年: 単一分子による共鳴ラマン散乱の可視化 (世界最高レベルの実験とラマン分光の選択則の解明)

2020年: 近接場ラマン分光のための理論手法開発に成功

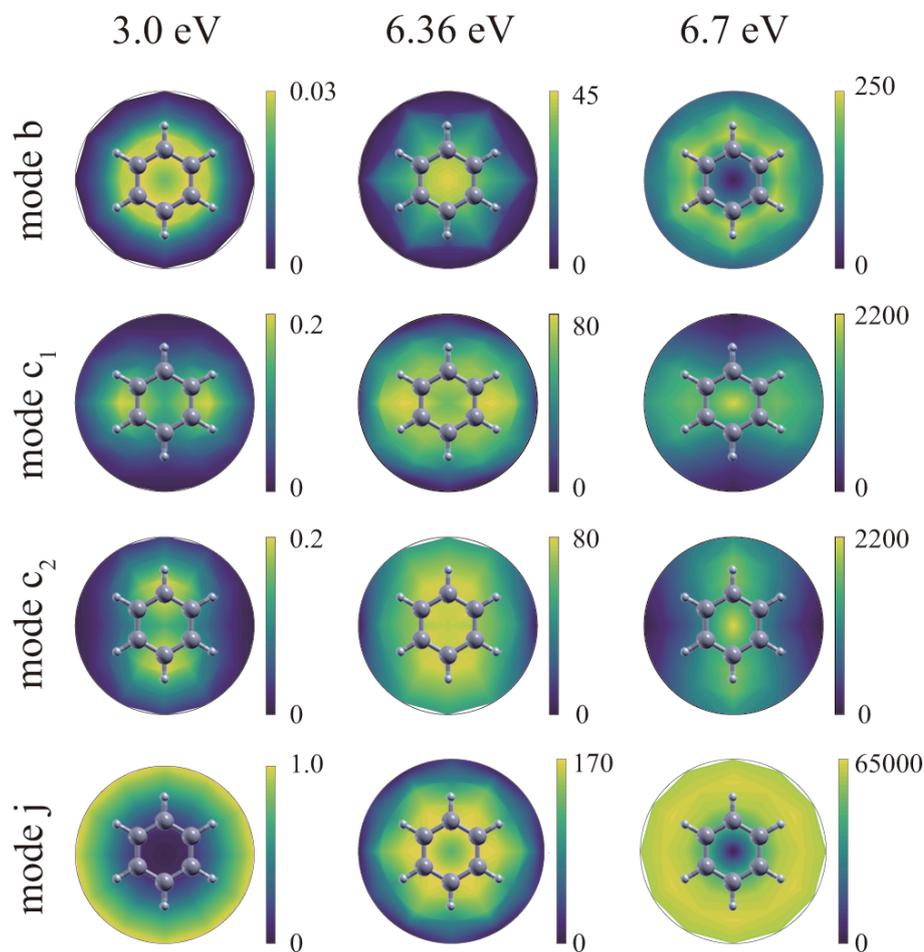




(a) 点双極子を分子の環から垂直に5Å離れた所に置き計算を実施。(b-e) 点双極子が分子の周りに作る電場。電場は中心が弱い輪形の分布をしており、電場ベクトルが環の中心に向かって集まっていることがわかる。



計算結果に基づき、面外CH 変角振動、環伸縮振動、CH 伸縮振動をモデル化。それぞれのピークが現われた要因は電場の空間構造によって説明できる。



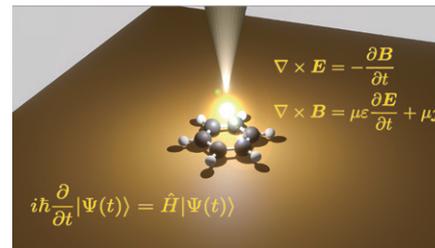
近接場ラマン画像マッピングの例を示す。TERS の探針の位置を変えながら共鳴条件と非共鳴条件において計算を行った結果を可視化した。

POINT 03 ▶ 分子と光、化学と物理の学際領域で、双方の良いところを活用

岩佐氏の研究は年を追うごとに着実に成果を積み重ねてきたが、近接場光と分子振動の相互作用の計算には、既存のフレームワークや量子化学計算プログラムを適用できなかった。研究には多くの困難が伴ったに違いないが、「ないものは作ればいい」と笑顔で話す岩佐氏の姿勢は常に挑戦的だ。

「光が作り出す空間構造など、光が持つ個性をしっかりと捉えながら理論構築を行い、これに基づく定式化とプログラム開発に取り組んできました。励起状態が分子振動によってどのように変化するのか、どのような枠組みを用意すればラマン分光を計算できるのか、その理論構築が最大のチャレンジでした。10年を超える積み重ねを経て、ようやく実験レベルのラマン分光の計算に応用できるところまで辿り着いたところです」

量子化学の分野で分子を理解するために利用されるシュレーディンガー方程式、電磁場や光の空間を理解するために使われるマクスウェル方程式——化学と物理を行き来しながら答えを探し続ける岩佐氏は、自身の取り組みの独創性について「分子と光、化学と物理の境界にあって、それぞれの良いところを上手く活用していること」と説明する。



POINT 04 ▶ AMD EPYC™プロセッサ搭載 HPE ProLiant DL325 Gen10サーバーを導入

岩佐氏の研究チームでの計算機に対する要求は、電子状態計算と電磁場解析がその多くを占める。その中で、最も多くの計算リソースが必要なのはラマン分光に対する電子状態計算だという。

「量子化学研究室では100台規模の計算機を運用していますが、リソースはいくらあっても足りない状況です。2020年6月に、AMD EPYC™プロセッサ搭載のHPE ProLiant DL325 Gen10サーバーを導入しました。シネックスジャパンのアドバイスを受けて、非常にコストパフォーマンスの高いシステムを構築することができたと思っています」(岩佐氏)

採用されたHPE ProLiant DL325 Gen10サーバーは、AMD EPYC™ 7601プロセッサ(1CPU/32コア)と128GBメモリを搭載する高性能モデル(計4台)である。x86サーバーの中でも突出したコストパフォーマンスを誇り、コストを抑えながら2ソケットサーバーに迫る計算性能を発揮する。8つのDDR4メモリチャンネルを備え、チップセット不要で128レーンのPCI Expressを利用できることも魅力だ。

「Gaussian、TURBOMOLE、VASP、SALMON、Octopusといった研究室で使う主要なプログラムの動作に問題がないことを確認しています。いわゆる本計算は、分子科学研究所や東京大学物性研究所などのスパコンを利用しますが、普段の計算の大半は研究室の計算機を使います。研究室で使っているプログラムやデータセットをそのまま学外のスパコンで利用できることは大事ですね。きちんと互換性があるコストパフォーマンスの高いHPE ProLiant DL325 Gen10サーバーは、研究室にとって理想的な計算機のひとつと言えるでしょう」と岩佐氏は話す。



HPE ProLiant DL325 Gen10
AMD EPYC™ 7601 計128コア (32コア×1)
128GBメモリ





POINT 05 ▶ 多くの研究者に利用してもらえる学術的意義の高い研究を追求

量子化学研究室の源流である北海道大学理学部化学科は、2010年にノーベル化学賞を受賞した鈴木章氏(現・北海道大学名誉教授)や、宇宙飛行士として知られる毛利衛氏など優れた研究者を輩出している。岩佐氏が取り組む近接場光化学・ナノ分光理論の研究は、科学技術立国を謳う日本で改めて重要性が指摘されている基礎研究分野のひとつである。「多くの研究者に『これは使える』と思ってもらえるような意義のある研究をやりたい」と岩佐氏は意欲を示す。

「光が分子に与える影響を知りたい、という興味がこの研究に取り組む起点にあり、今も変わらない探求心の源泉です。実際のところ、電子の励起状態をどうしたら記述できるのか、時間による変化はどうか、近接場光化学の解明すべき課題は目の前に大きく広がっています」(岩佐氏)

岩佐氏の研究は「近接場光による励起状態制御の理論」と題したテーマで、科学技術振興機構(JST)が主導する個人型研究(さががけ)にも採択されている。

「この近接場ではこの励起状態ができる、という相互関係をしっかりと理解できれば、究極的には励起状態そのものをデザインすることができるようになって考えています。私たちが取り組んでいる『近接場光化学』と『ナノ分光理論』の確立は、触媒に代表される革新的な新素材の開発にも結びつくものです。ナノ領域の光と分子の相互作用を量子力学と電磁気学で解き明かす——その変わらない探求心が、多くの応用研究の起点になれるよう取り組んでいきます。2021年に登場する次世代AMD EPYC™プロセッサへの期待は大きいですね。シネックスジャパンには、私たちの研究を支える技術支援をこれからもよろしくお願いいたします」

●お問合せ・お見積りは下記までお願い致します。



シネックスジャパン株式会社

Email : pr@synnex.co.jp

※掲載されている社名又は製品名は、各社の商標又は登録商標です。
©2021 SYNNEX Japan Corp.