

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (特設分野研究)

研究期間：2016～2019

課題番号：16KT0059

研究課題名(和文) 高分子重合反応の効率的遷移状態制御のためのELG-RP-TS法の開発

研究課題名(英文) Development of ELG-RP-TS method for efficient transition state control in polymerization reactions

研究代表者

青木 百合子 (Aoki, Yuriko)

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：10211690

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では大規模系のための独自量子化学計算法Elongation(ELG)法の利点を生かしながら、新しい遷移状態探索法を導入することにより、反応制御・触媒設計が困難な触媒分野への貢献を目的としている。化学的に重要で遷移状態計算・解析に必要な活性領域とその周辺のHessian行列を効率的に計算するELG-Hessian法の構築、およびHessianを要しない効率的Replica-Path(ELG-RP)法の導入という二種類の開発を手がけ、均一系および不均一系触媒反応に応用した。また、含金属系用Through Space/Bond法により、遷移構造の個々の軌道相互作用の寄与を解析可能とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Elongation法による安定構造最適化において、既存ab initioプログラムの構造最適化法を駆使しても到達できない別の安定構造を高効率で見出しうるようになってきた。これを遷移状態計算に応用することにより、これまで不可能であった複雑系の遷移状態探索を効率よく成し遂げうることに繋がる。工業的に反応過程が不明である触媒反応解析に適用すると、ミクロな電子状態レベルでの原理的な反応解明が可能となり、現実の触媒設計の的を絞れる基礎データを提供できる。計算手法を整備すれば、高分子合成のための触媒開発のみならず環境触媒の設計においても、合成前に役立つ反応設計ツールとして社会に役立つと期待できる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this project is to contribute on a field where reaction control and catalytic design are difficult. It was implemented by means of introducing a new transition state search method while taking advantage of the unique quantum chemical calculation theory -Elongation (ELG) method- for large-scale molecular systems. We introduced two types of approach: one is to construct an ELG-Hessian method that efficiently calculates the Hessian matrix around the active region which is chemically important and the other is to establish an efficient Replica-Path (ELG-RP) method that does not require heavy Hessian calculations. The method was applied to homogeneous and heterogeneous catalytic reactions. In addition, to analysis of each orbital interaction at transition state we developed a Through Space/Bond method for transition structure analysis.

研究分野：量子化学

キーワード：量子化学計算 メタロセン触媒 Ziegler Natta触媒 高分子反応 効率的遷移状態探索 Elongation法 Through Space/Bond解析 電子状態

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高分子重合反応の反応制御は、新機能を持った物質の創成、工業レベルでの反応の省コスト・省エネルギー化などに繋がることから社会的重要性の高い課題である。他方、合理的な反応制御・触媒設計は未だに難しい。この問題の解決を謳った遷移状態計算は量子化学計算パッケージを用いて過去数十年間数多くおこなわれてきた。しかしながら、実体は先行する実験結果を説明するための各論の研究に留まっている。この問題に対して、遷移状態制御に重要な「普遍的」因子を発見するためには、各論を超えるのに十分なデータ量が必要だと考える。

近年エクサスケールを目指す新たな日本のスパコン・プロジェクトが立ち上がり、ソフトウェア開発も超並列計算を目的としたものになっている。我々は逆に時代と逆行するようであるが、数コアのみの利用で、高速に且つ超高精度に計算できる手法を開発してきた。それは結果論であって、実際には、開発当初は並列計算という概念もなかったからである。巨大かつランダムな生体分子をターゲットとし、当時オーダーN法という言葉すら存在しなかった1990年よりElongation (ELG)法を提唱し、世界にさきがけて本研究に着手し開発してきた。巨大系に対するオーダーN法の試みはいくつかあるが、本方法以上に高精度手法は他に存在しない完全オリジナルである。また、スパコンのみならず1CPUで超高速を発揮する手法は他になく、材料開発に関わるスパコンのない企業にも非常に利用し易い。

個々の材料の機能や性質の行き着くところは電子状態となるが、近年の量子化学と超並列計算機の目覚ましい発展にもかかわらず、これらの基礎科学の財産が高分子や材料分野で殆ど役に立っていない。1991年に発表して以来開発を続けてきた高分子の理論的重合法-Elongation法は、小さな分子を計算しておき(Initiation)、得られた分子軌道の形を変形し、高分子反応が起こる部分に軌道を集めて、その小さな部分空間である活性領域だけで超効率的に大きな系の電子状態を正確に解くものである(Propagation)。また、一次元系のみならず、絡み合い高分子や結晶などの三次元系に対しても高効率に計算可能となるよう発展させてきた(3D-ELG法)。ELG法は重合反応を模した理論であるため高分子系、三次元系に優れた性能を発揮できる。こと高分子の第一原理計算に関しては他の追随を許さない。発展の著しい化学反応経路の探索・最適化法を取り込むことで、高分子重合触媒設計システムへの展開を試みるという発想に至った。

2. 研究の目的

本課題は、研究責任者らが約30年掛けて発展させてきた高分子の理論的重合(Elongation, ELG)法を、産業界の特に材料設計に活用することを目的として開発している。これまでHartree-Fock(+Local MP2)法レベルあるいは密度汎関数(DFT)法のレベルで構造最適化ルーティンを導入し、高分子等巨大系の安定構造のみに注目してきた。本研究ではELG法の特徴を生かして反応過程の効率的解明にも展開するため、高分子重合を対象に第一原理量子化学による遷移状態計算を実施、生成された大規模・多次元のデータを解析することで遷移状態制御因子を抽出することを目標とする。これを可能とする次世代システムの構築を中心に研究・開発を進め、高分子重合反応触媒のComputer-Aided Designへの道を拓くことを目指す。

3. 研究の方法

本研究ではELG法の性質を活かし高分子重合反応の遷移状態制御に資する触媒解析・スクリーニングシステムを構築する。ELG法の特徴を活かした更なる高速化と効率化が鍵となる。そのために化学的に重要な領域に着目する、1で述べた活性領域の概念をELG法にも導入し、Elongation-Hessian法とElongation-Replica-Path法と呼称する手法を開発した。ELG-Hessian法は遷移状態計算・解析に必要な活性領域とその周辺のHessianを、系全体を効率的

に計算するための手法である。また、化学反応経路を計算する強力な手法として NEB など Chain-of-States と呼称される手法があるが、これらは系の複数のコピーを取り扱う必要があり計算コストが高い。ELG-Replica-Path 法では活性領域部分の系のコピーしか要らないため大幅な高速化を達成できることが特徴である。そこで、ELG 法を遷移状態探索法 Nudged Elastic Band (NEB) と組み合わせ、高分子化学反応解析のための高効率第一原理計算アルゴリズム (ELG-NEB 法) の構築をおこなった。また、別途開発してきた、触媒反応機構を軌道間相互作用の立場からより詳細に解析を行うための Through Space/Bond 解析法を、重金属を含む系の反応の遷移構造に対しても適用できるように改良を行った。

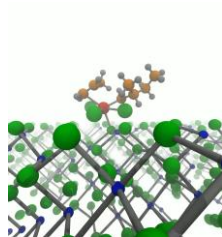
本課題では前述の代表者ら独自の大規模原子分子系のための量子化学計算理論 Elongation (ELG) 法の利点を生かしながら、新しい高効率遷移状態探索法を導入することにより、反応制御・触媒設計が困難である現状の触媒分野への貢献を図った。本方法において、化学的に重要で遷移状態計算・解析に必要な活性領域とその周辺の Hessian (二次微分行列) を効率的に計算する ELG-Hessian 法の構築および、Hessian を要しない効率的 Replica-Path (ELG-RP) 法の導入という二種類の開発を手がけた。

4. 研究成果

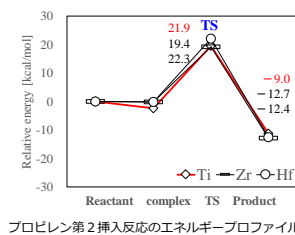
上記前者の ELG 法への Hessian 計算組込についてはほぼ終わり、ポリグリシン、ポリアラニンレベルの簡単な高分子系にテスト計算を行った。得られた振動モードより、その計算精度の信頼性を確認しているため、さらなる大規模系への応用は今後の課題である。

後者の ELG-RP 法については、化学反応経路を計算する強力な手法である Nudged Elastic Band (NEB) 法の導入に着目した。Elongation 法を不均一系触媒にも適用可能となるよう二種類の切り口から攻めている。一つめは、平面波基底による固体用の密度汎関数プログラム (VASP) に、NEB 法、Climbing-Image-NEB 法、Dimer 法を段階的に作用させることにより機械的に TS を見出す手法である。二つめは、量子化学計算による高分子伸長反応解析を目的としており、ELG 法上での NEB 法稼動のための構造最適化ルーティン呼び出すインターフェースを構築することである。二つ目については、ポリエチレン等のテストモデル高分子に適用した。ELG 法による活性軌道を元に反応末端の回転障壁が正しく算出できることを確認し、全伸長過程における演算効率の検証を行った。応用例として、ここでは主として一つめの方法に関して以下に述べる。

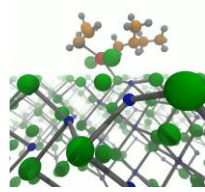
不均一触媒に関する固体表面系のモデルとして、ポリプロピレン製造用工業触媒である不均一系 Ziegler-Natta (ZN) 触媒を採用した。異なる活性中心元素 Ti、Zr、Hf に対して適用した結果、類似の反応経路が示唆された。特に、オレフィン重合の反応モデルとして六配位と五配位の 2 種類を調査した。六配位モデルにおいて Zr、Hf を導入した場合も Ti と同様に重合反応が進行する可能性はある。しかし、Zr、Hf を導入した場合 π 錯体が安定化し過ぎているため、 π 錯体からみた反応障壁は高く、吸着反応となっている。対して五配位モデルにおいて、六配位モデルと比べて相対的に不安定化しているため、Zr、Hf を導入した場合も Ti と同様に触媒活性を示し得る結果となった。結果、本手法による計算では、活性点さえあれば Zr、Hf を導入した場合もオレフィン重合が起こり得る結果を与えている。六配位モデルと五配位モデルの大きな違いは活性金属に結合している Cl の数・酸化数である。これらの反応障壁や反応熱を調査した結果、Zr、Hf を導入しようとする場合、六配位モデルより五配位モデルの方が実現しそうであるという結果が得られた。オレフィン重合反応の五配位モデル (四価) および六配位モデル (三価) によってプロピレン第 2 挿入反応の障壁を調査して得られたエネルギープロファイルを以下に示す (PBE 平面波 DFT 法・スラブモデル・MgCl₂ 110 面)。



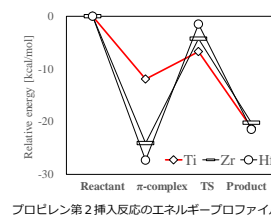
五配位モデル (四価)



プロピレン第2挿入反応のエネルギープロファイル



六配位モデル (三価)



プロピレン第2挿入反応のエネルギープロファイル

一方、均一性触媒への応用として、ポリオレフィン合成における高い構造制御能を持つため重合触媒として注目されている均一系メタロセン触媒についても、構造選択性の機構解明、共重合生成ポリマーの特性解析を目的として、ポリプロピレン重合の構造制御メカニズムの解明反応ルートの解析、助触媒の役割等について解明するべく遷移状態解析を行った。

その一つとして、遷移構造における軌道相互作用と立体選択性解析を行うために、Zr 等重元素を含む系に適用可能な Through Space/Bond (TS/TB)-遷移状態解析法の改良とその適用を試みた。Through Space/Bond (TS/TB) 解析法は、人為的な軌道収縮により特定の軌道間相互作用をカットし、カット前後の比較から注目している相互作用の寄与を非経験レベルで定量評価できる。遷移状態における相互作用解析法を目指し、本解析法を遷移構造を探索するためのエネルギー勾配法 (上向きのエネルギー停留点探索) および振動解析法と結合させた (TS/TB-遷移状態解析法)。これにより、特定の相互作用をカットした仮想状態下での遷移構造や振動モードが得られ、個々の相互作用の寄与を解析可能とした。これを、上記メタロセン触媒や Ziegler-Natta 触媒など重元素を含む系に適用可能となるよう有効内殻ポテンシャル (ECP) 法との結合についても完了した。巨大系への展開のため、ELG 法の演算中に逐次発生する領域局在化軌道 (RLMO) を基底とした TS/TB 解析法を開発した (RLMO-based TS/TB 法)。開発手法の有効性検証の第一歩として S_N2 反応の遷移状態解析を行い、活性化エネルギーを下げる (遷移構造を安定化させる) 相互作用の同定とその寄与の定量評価に成功した。現在、遷移金属触媒系についても本手法を適用し、高分子の立体制御を支配している相互作用の解明を進めている。さらに、生成ポリマーの触媒活性部に与える影響の解析のために、上記 ELG 法に組み込み中の ELG-NEB 法を適用し、反応活性点における局所的遷移状態を、生成高分子の電子状態を導入した上で評価を試みているが、この部分は現在進行形である。

生体系への応用としては、塩基対ミスマッチ生成機構解明に適用した。アポトーシスや癌の原因となる DNA 損傷の一つに、グアニン (G) の O^6 位のメチル化がある。アニンが O^6 位のメチル化されることにより O^6 -メチルグアニン (O^6 MeG) に変化すると、 N^1 位のプロトンが脱離するため、チミンの N^3 のプロトンと N^1 位が水素結合を作り、シトシン (C) だけではなくチミン (T) との対合も可能にする。このため G-C から A (アデニン)-T への突然変異を引き起こす原因となる。本研究では量子化学計算を用いて、X 線構造解析ではわからない O^6 MeG の N^1 位のプロトン化状態に特に着目し、 O^6 MeG による誤対合生成機構についても解析を行った。DNA ポリメラーゼ中で O^6 MeG とシトシンが対合するには、各塩基のプロトン化状態とメチル基の配向に厳しい制約があることが示唆された。結果、制約のない O^6 MeG とチミンとの誤対合生成の反応速度が相対的に向上し、DNA 複製時に遺伝情報にエラーを導入してしまうというメカニズムを理論的に予想した。

以上、応用については今後も検証とさらなる改善を重ねる予定であるが、概ね予定している計算手法を構築し、いくつかの現実の触媒反応や生体内反応への適用を通して、本手法の利点や今後改良すべき点を比較的明確にできた状態にあると言える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 16件 / うち国際共著 5件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Orimoto Yuuichi, Shirane Satoru, Aoki Yuriko	4. 巻 40
2. 論文標題 Extent of structural change during the reaction and its relationship to isoselectivity in polypropylene polymerization with ansa zirconocene/borate catalyst: A computational study	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Computational Chemistry	6. 最初と最後の頁 2622 ~ 2635
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/jcc.26040	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Orimoto Yuuichi, Aoki Yuriko, Imamura Akira	4. 巻 123
2. 論文標題 Extraction of One-Handed Helical Frontier Orbital in Even [n]Cumulenes by Breaking Mirror Images of Right- and Left-Handed Helical Orbitals: Theoretical Study	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 11134 ~ 11139
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b01829	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 C. Wang, T. Hosomi, K. Nagashima, T. Takahashi, G. Zhang, M. Kanai, H. Zeng, W. Mizukami, N. Shioya, T. Shimoaka, T. Tamaoka, H. Yoshida, S. Takeda, T. Yasui, Y. Baba, Y. Aoki, J. Terao, T. Hasegawa, and T. Yanagida	4. 巻 19
2. 論文標題 Rational Method of Monitoring Molecular Transformations on Metal-Oxide Nanowire Surfaces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nano Lett.	6. 最初と最後の頁 2443-2449
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.8b05180	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 D. R. Price, L. Peng, S. Li, F. L. Gu, and Y. Aoki	4. 巻 58
2. 論文標題 Elongation toward Linear Scaling: Two Electron Integrals in Regionally Localized Molecular Orbital Basis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni	6. 最初と最後の頁 91-102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.13471/j.cnki.acta.snus.2019.01.011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yuuichi Orimoto, Kosuke Ishimoto, and Yuriko Aoki	4. 巻 122
2. 論文標題 Role of Pyridinium Groups and Iodide Ions in Photoelectrochromism in Viologen-Based Ion-Pair Charge-Transfer Complexes: Molecular Orbital Analysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 4546-4556
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b10281	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Teramae and Y. Aoki	4. 巻 2040
2. 論文標題 Ab Initio Electronic Structure Calculation of Polymononucleotide, a Model of B-type DNA	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 020013(1-4)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5079055	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Aoki, Y. Orimoto, and A. Imamura	4. 巻 4
2. 論文標題 One-handed Helical orbitals in conjugated molecules	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Cent. Sci.	6. 最初と最後の頁 664-665
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscentsci.8b00228	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Orimoto, K. Ishimoto, and Y. Aoki	4. 巻 122
2. 論文標題 Role of Pyridinium Groups and Iodide Ions in Photoelectrochromism in Viologen-Based Ion-Pair Charge-Transfer Complexes: Molecular Orbital Analysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C	6. 最初と最後の頁 4546-4556
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b10281	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuuichi Orimoto, Kohei Otsuka, Kazuma Yagyu, Hiroshi Tochihara, Takayuki Suzuki, and Yuriko Aoki	4. 巻 121
2. 論文標題 Theoretical Study of Cu Intercalation Through a Defect in Zero-Layer Graphene on SiC Surface	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 7294-7302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b00314	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki	4. 巻 15
2. 論文標題 An Attempt at Theoretical Calculation of Electronic Structure of model-DNA	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 219-220
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2016-0057	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuuichi Orimoto, Kohei Otsuka, Kazuma Yagyu, Hiroshi Tochihara, Takayuki Suzuki, and Yuriko Aoki	4. 巻 121
2. 論文標題 Theoretical Study of Cu Intercalation through a Defect in Zero-Layer Graphene on SiC Surface	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 7294-7302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b00314	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuuichi Orimoto, Kohei Kato, and Yuriko Aoki	4. 巻 121
2. 論文標題 Importance of Through-Space Interaction of [2,2]-Paracyclophane-oligo(p-phenylenevinylene) Molecular Wires for Photovoltaic Application and Effective Wire Design by Chemical Substitution	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 17703-17711
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b05730	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki	4. 巻 1906
2. 論文標題 An attempt at ab initio crystal orbital calculation of electronic structure of B-type model-DNA	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 030023(1-4)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5012302	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Xun Zhu, Yuuichi Orimoto, and Yuriko Aoki	4. 巻 230
2. 論文標題 An efficient unrestricted PCM-elongation method for large high-spin polymer/dendrimer systems	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Zeitschrift fur Physikalische Chemie	6. 最初と最後の頁 667-680
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/zpch-2015-0722	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Xun Zhu and Yuriko Aoki	4. 巻 54
2. 論文標題 Development of molecular fragment interaction method for designing organic ferromagnets	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Mathematical Chemistry	6. 最初と最後の頁 1585-1595
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10910-016-0638-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yuuichi Orimoto and Yuriko Aoki	4. 巻 145
2. 論文標題 Automated property optimization via ab initio O(N) elongation method: application to (hyper-)polarizability in DNA	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 024107(1-10)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4956456	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuuichi Orimoto and Yuriko Aoki	4. 巻 1
2. 論文標題 Computational study of Cu-containing artificial DNA: twist angle dependence of magnetism	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ChemistrySelect	6. 最初と最後の頁 5521-5529
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/slct.201600940	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Lin Jin, Yun-an Yan, and Yuriko Aoki	4. 巻 136
2. 論文標題 Computational scheme to determine local vibrations of large systems using elongation method	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Theoretical Chemistry Accounts	6. 最初と最後の頁 11(1-10)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00214-016-2030-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki	4. 巻 15
2. 論文標題 An Attempt at Theoretical Calculation of Electronic Structure of model-DNA	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 219-220
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2016-0057	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計42件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 18件)

1. 発表者名 T. Shiota, W. Mizukami, H. Tochihara, K. Yagyu, T. Suzuki, and Y. Aoki
2. 発表標題 Elucidation of the diffusion mechanism of PTCDA on Ge(001) using first principles calculations
3. 学会等名 81st Okazaki Conference : Forefront of Measurement Technologies for Surface Chemistry and Physics in Real-Space, k-Space, and Real-Time (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青木 百合子
2. 発表標題 高分子における量子化学計算
3. 学会等名 2018東海シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Orimoto, A. Pomogaeva, A. Yano, K. Nakatani, and Y. Aoki
2. 発表標題 High throughput molecular design/exploration for DNA bulge/mismatch recognition: computational approach by elongation method
3. 学会等名 The 45th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry(ISNAC2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Orimoto, S. Shirane, and Y. Aoki
2. 発表標題 Ab initio MO study of propylene polymerization by zirconocene/borate catalyst
3. 学会等名 16-th V.A. Fock Meeting on Theoretical, Quantum and Computational Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Aoki
2. 発表標題 Elongation method for efficient material design by quantum chemical calculations
3. 学会等名 16-th V.A. Fock Meeting on Theoretical, Quantum and Computational Chemistry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Aoki
2. 発表標題 Efficient electronic states calculations by elongation method and its application to DNA, Nanotubes, and functional polymer design
3. 学会等名 Symposium at St. Petersburg State University (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木 百合子, 折本 裕一
2. 発表標題 ナノリボン末端修飾による構造転移に関する量子化学的研究 有機太陽電池ワイヤー設計に向けてー
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2018」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 折本 裕一, 白根 聡, 青木 百合子
2. 発表標題 メタロセン触媒の高イソ選択的オレフィン重合反応の量子化学的機構解明 遷移状態構造における歪と緩和
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2018」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺前 裕之, 青木 百合子
2. 発表標題 モデルDNAのHartree-Fock計算(2)
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Pomogaeva, 折本 裕一, 青木 百合子
2. 発表標題 高精度かつ効率的なノチューブ表面反応の電子状態解析法
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 水上 渉, 藪下 彰啓, 原田 明, 青木 百合子
2. 発表標題 H2Oを介した O2-I- 間の電荷移動励起についての理論的研究
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂上 弘樹, 顔 忍, 水上 渉, 青木 百合子
2. 発表標題 第一原理計算を用いた不均一Ziegler-Natta触媒のアルキル化過程の解析
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 汐見 彩花, 折本 裕一, 青木 百合子
2. 発表標題 リバーゼのエナンチオ選択性の発現に関する量子化学的反應機構解析
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 折本 裕一, A. Pomogaeva, 矢野 綾香, 中谷 和彦, 青木 百合子
2. 発表標題 多階層Elongation構造最適化法によるDNAパルジノミスマッチ認識分子の効率探索と理論設計
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 D. Mashkovtsev, W. Mizukami, J. Korchowicz, A. Stachowicz-kusnierz, and Y. Aoki
2. 発表標題 Improving the elongation method: intermediate electrostatic field for DNA and proteins via genetic algorithms
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石本 晃佑, 折本 裕一, 青木 百合子
2. 発表標題 光スイッチ設計に向けたビオロゲン含有ポリマーのフォトエレクトロクロミズムに関する量子化学的研究
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 D. Mashkovtsev, W. Mizukami, and Y. Aoki
2. 発表標題 Accelerating modeling of polymers: atomic charges via genetic algorithms
3. 学会等名 三者連携シンポジウム 100年後の科学と社会を考える “数理・AI が解く未来 ~計算科学の展開と期待~ ”
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Aoki, A. Pomogaeva, and Y. Orimoto
2. 発表標題 Development of efficient elongation method toward locally perturbed aperiodic nano/bio systems
3. 学会等名 7th JCS SYMPOSIUM (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yuriko Aoki
2. 発表標題 Efficient quantum chemical method for functional material design
3. 学会等名 The 10th International Conference on Computational Physics(ICCP10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Ab Initio Crystal Orbital Calculation of Electronic Structure of B-type model-DNA
3. 学会等名 11th Triennial Congress of the World Association of Theoretical and Computational Chemists(WATOC 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Ab Initio Calculations on Polymononucleotide and Polydinucleotides as Model of B-type DNA Polymers
3. 学会等名 11th European Conference on Theoretical and Computational Chemistry(EUCO-TCC 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山本 瞳, 水上 渉, 木村 加奈, 北條 元, 青木 百合子, 永長 久寛
2. 発表標題 第一原理計算によるPt-Rhバイメタリックナノ粒子触媒の物性評価
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 坂上 弘樹, 水上 渉, 青木 百合子
2. 発表標題 Zr, Hfを導入した不均一系 Ziegler-Natta 触媒の理論化学的研究
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 水上 渉, 青木 百合子
2. 発表標題 表面化学反応に対する第一原理遷移状態計算のガウス過程を用いた高速化
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 青木 百合子, 水上 渉, 伊藤 雅浩, 折本 裕一
2. 発表標題 Elongation法による生体高分子の効率的構造最適化および反応解析法
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 折本 裕一, 汐見 彩花, 青木 百合子
2. 発表標題 生体分子の反応機構解明と機能設計を目指した量子化学的手法開発とその応用
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 白根 聡, 折本 裕一, 青木 百合子
2. 発表標題 メタロセン触媒重合の構造制御機構の解明と超効率的計算手法によるポリマー特性の解析
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺前 裕之, 青木 百合子
2. 発表標題 モデルDNAのHartree-Fock計算
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 水上 渉, 青木 百合子
2. 発表標題 Elongation法を用いた化学反応計算とポテンシャル面のon the fly構築によるその高速化
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yuuichi Orimoto and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Computational design of DNAs: property control via elongation method
3. 学会等名 The 44th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry(ISNAC 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Satoru Shirane, Yuuichi Orimoto, and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Selectivity of olefin polymerization with metallocene catalyst and the effects of producted polymers on its mechanism
3. 学会等名 The 19th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology(CSS-EEST19) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yuuichi Orimoto, Satoru Shirane, and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Mechanism of Highly Selective Olefin Polymerization by Metallocene Catalyst: Computational Approach
3. 学会等名 IRCCS-JST CREST Joint Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki Teramae and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Ab Initio Electronic Structure Calculation of Polymononucleotide, a Model of B type DNA
3. 学会等名 14th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering(ICCMSE 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木 百合子, 水上 渉, 大川 育子, 折本 裕一
2. 発表標題 Elongation method for efficient quantum chemistry calculations toward functional designs of bio/nano materials
3. 学会等名 第1回 九州大学女性研究者ダイバーシティシンポジウム 理工系分野
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yuriko Aoki and Yuuichi Orimoto
2. 発表標題 Linear-scaling elongation method for efficient search of the best functional polymers-applications to DNA
3. 学会等名 Current Trends in Theoretical Chemistry VII (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuriko Aoki, Wataru Mizukami, Yuuichi Orimoto, and Kai Liu
2. 発表標題 閉殻系および開殻系 Elongation 法の展開と機能性ナノワイヤへの応用
3. 学会等名 第10回分子科学討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuuichi Orimoto and Yuriko Aoki
2. 発表標題 酵素反応機構解明のための軌道相互作用解析法の開発と応用
3. 学会等名 第10回分子科学討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Wataru Mizukami and Yuriko Aoki
2. 発表標題 スピン制約を導入したElongation法の開発
3. 学会等名 第10回分子科学討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuuichi Orimoto and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Theoretical approach to the property and reaction design of DNA/proteins by through- space/bond interaction analysis and elongation method
3. 学会等名 第43回国際核酸化学シンポジウム (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Wataru Mizukami and Yuriko Aoki
2. 発表標題 Modeling Molecular Interactions in Halogen-bonding Cocrystal
3. 学会等名 International Symposium on Multi-scale Simulation of Condensed-phase Reacting Systems (MSCRS2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuriko Aoki and Yuuichi Orimoto
2. 発表標題 An efficient NLO functional optimization by elongation method for nanotubes and DNA
3. 学会等名 Stereodynamics 2016 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuriko Aoki
2. 発表標題 Efficient quantum chemical method for functional material design
3. 学会等名 The 10th International Conference on Computational Physics (ICCP10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Yuriko Aoki, Yuuichi Orimoto, and Akira Imamura	4. 発行年 2017年
2. 出版社 Springer International Publishing	5. 総ページ数 138
3. 書名 Quantum chemical approach for organic ferromagnetic material design	

〔産業財産権〕

〔その他〕

--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	折本 裕一 (Orimoto Yuuichi) (00398108)	九州大学・総合理工学研究院・学術研究員(特任助教) (17102)	

