

平成22年5月20日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2009

課題番号：18066001

研究課題名（和文） 励起状態反応ダイナミクスと光化学への応用

研究課題名（英文） Ab initio Excited-State Reaction Dynamics and Its Applications to Photochemistry

研究代表者

武次 徹也 (TAKETSUGU TETSUYA)

北海道大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号：90280932

研究成果の概要（和文）：多配置波動関数に基づく、電子励起状態に適用可能な非断熱遷移を実装した *ab initio* 分子動力学プログラムを完成させ、アゾベンゼンやスチルベンの光異性化反応、星間分子の解離性再結合反応、7 アザインドールの励起プロトン移動、クマリン 151 の溶液内光反応へと適用して、反応分岐比、量子収率、反応経路、励起寿命の解明を行った。

研究成果の概要（英文）：We have developed an *ab initio* molecular dynamics (AIMD) program code for excited-state processes, and applied it to several significant reactions to clarify key factors in excited-state dynamics, i.e., (1) non-adiabatic transition, (2) solvent effects, (3) spin-orbit coupling effects, (4) quantum effects of nuclei, (5) branching ratio, (6) lifetime, and (7) reaction pathways.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	4,600,000	0	4,600,000
2007年度	6,000,000	0	6,000,000
2008年度	6,000,000	0	6,000,000
2009年度	4,100,000	0	4,100,000
年度			
総計	20,700,000	0	20,700,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：反応ダイナミクス、励起状態、非断熱遷移、溶媒効果

1. 研究開始当初の背景

量子化学分野において、従来は概念的なものであった電子状態計算に基づく動力学計算は現実のものとなり、電子基底状態に対するダイレクトダイナミクスのプログラムコードは、汎用の量子化学プログラムに実装されて応用研究の数も増える傾向にある。一方、光化学分野は実験的研究が先行し、理論的研究は励起状態の定量的取り扱いの難しさゆえに立ち遅れている状況にあった。本研

究は、光化学反応の動力的側面に焦点を当てた理論研究をより推進していくことを念頭に、第一原理分子動力学の手法を電子励起状態に拡張することとした。実験サイドで体系化されてきた光化学の基本的描像を再検証するとともに、最新の実験的研究から提起されている分子レベルでの様々な疑問に対し、高精度 *ab initio* 計算と動力学シミュレーションを駆使することにより明快な回答を与えることを目指す。

励起状態に対する第一原理分子動力学については、*ab initio* 法より計算コストの面で優位に立つ「時間依存密度汎関数法」による研究が国内外で始められていたが、非断熱遷移の取り扱いなどに問題があり、手法として確立したとは言えない状況にあった。そこで本研究では、状態平均多配置 SCF 法・多状態多参照 *ab initio* 理論を動力学計算に適用することにより、状態間の遷移をあらわに取り込んだ多状態-励起状態ダイナミクスを確立することを課題の柱とした。高精度 *ab initio* 法に基づく励起状態の研究は、断熱状態間のポテンシャル曲面の交差領域を探索する研究が主流であるが、本研究では、動力学シミュレーションを行うことによって励起状態ポテンシャル曲面の幾何学的特性とダイナミクスとの相関を明らかにすることに焦点をあてる。

2. 研究の目的

Ab initio 量子化学計算で得られるエネルギー勾配に基づいた分子動力学(AIMD)法は、ポテンシャル関数を用いる従来の分子動力学計算に比べて計算コストはかかるが原理的には任意の化学反応過程に適用できる強みを持ち、近年の計算機性能の向上とともにその応用範囲はますます広がっている。本課題では、AIMD 法の適用範囲を電子励起状態に拡張し、非断熱結合により引き起こされる状態間遷移をあらわに考慮した汎用的動力学プログラムを開発することを目的とする。全自由度を考慮した複数の電子状態を同時に扱うシミュレーションによって励起ポテンシャル曲面とダイナミクスの相関を議論するとともに、QM/MM 法により周囲の溶媒分子の影響を取り入れた動力学計算を行って光反応における溶媒の役割を明らかにする。電子状態計算には状態平均多配置 SCF (SA-CASSCF) 法を採用し、あらかじめ関与する電子状態を特定した上で多状態シミュレーションを行う。非断熱遷移には、Tully の最少遷移数アルゴリズムを適用し、スピン-軌道相互作用が重要となる系に対しては数値微分によりあらわにその効果を取り入れる。光異性化反応や解離性再結合反応、励起プロトン移動反応、スピン-軌道相互作用が重要な系、溶液内光反応など様々な反応系への適用を通して、励起ダイナミクスの方法論上の問題点を検討し、実在系分子の励起ダイナミクスに対する第一原理反応動力学を確立することを目指す。

3. 研究の方法

電子励起状態で進行する反応過程では、非断熱領域で生じる状態間遷移を考慮する必要がある。断熱状態が近接する非断熱領域では、分子系は単一のポテンシャル曲面(断熱

状態)上に存在するのではなく、複数の断熱状態に確率的に分布することになる。非断熱効果を実装した古典トラジェクトリー計算の手法として、半古典的 Ehrenfest 法と Surface hopping 法が挙げられる。半古典的 Ehrenfest 法では、分子系は電子波動関数によるハミルトニアン期待値によって作られた仮想的ポテンシャル曲面上を運動すると考える。したがって半古典 Ehrenfest 法は断熱状態がエネルギー的に解離していくときの *minor path* を記述することが出来ず、反応の分岐比を議論することはできない。一方 *surface hopping* 法では、分子系は単一のポテンシャル曲面上を運動するものとして扱い、非断熱領域において確率的に状態遷移が考慮される。多数のトラジェクトリーを走らせることにより生成物 *channel* の分岐を表現することが出来るため、分岐比を議論することが可能である。*Surface hopping* 法としてはこれまでに多くのアルゴリズムが提案されているが、得られる結果の精度や計算コストは遷移確率を求めるアルゴリズムに強く依存する。

本研究では *surface hopping* 法を採用し、状態間遷移には Tully の最少遷移数アルゴリズムを適用する。このアルゴリズムは正味の状態間遷移を考慮しており、統計的議論を可能にするほど多数のトラジェクトリーを走らせたときに分子系が存在する断熱状態の分布割合が電子状態の確率振幅 c に一致するように設計されている。トラジェクトリーに沿ってステップ毎に状態間遷移の可否を判定するために、電子波動関数の確率振幅を利用する。トラジェクトリーに沿って電子の時間依存 Schrodinger 方程式を解くことにより、電子波動関数の確率振幅が得られる。非断熱結合項が大きくかつ非断熱結合方向の分子系の速度が大きいときに電子状態は大きく変化する。複数の断熱状態がのエネルギー的に近接すると非断熱結合ベクトルは大きな値を持ち、非断熱遷移の確率が増大する。Tully の方法では、微小時間 Δt の間に状態 k から状態 j への遷移が起こる確率 P_{kj} を各点で計算し、一様乱数と比較することにより状態遷移をさせるか否かをそのつど判定する。遷移が起こる場合、系全体のエネルギー保存則を満足させるために、状態間のエネルギー差を非断熱結合方向の速度成分に運動エネルギーとして与える。

状態遷移を考慮した AIMD 法では、励起状態のエネルギー勾配に加えて非断熱結合ベクトルが必要となる。現時点で電子励起状態の計算が可能な *ab initio* 法としては、CIS, MCSCF, SAC-CI, EOM-CC, MS-CASPT2, MR-SDCI 法が挙げられるが、それぞれの計算精度、適用範囲、コストを考慮して方法を選択する必要がある。ここで注意すべきは、研究対象は垂直励起エネルギーではなく結合

の解離と生成を伴う励起反応過程であり、反応過程では単配置に基づく手法は容易に破綻するということである。また、エネルギー勾配と非断熱結合項を解析的に計算できる方法でなければ実用には耐えられない。したがって、現時点では選択肢は MCSCF 法に絞られることになる。本研究では、電子状態理論として解析微分と非断熱結合項が入手可能な状態平均 MCSCF 法を採用した。用いた ab initio プログラムは MOLPRO である。

4. 研究成果

・解離性再結合反応ダイナミクス

星間空間では、陽イオン分子が電子と再結合して中性分子の fragment へと解離する解離性再結合(DR)反応が重要な役割を果たす。多原子分子イオンが解離すると複数のチャンネルが存在し、解離生成物の分岐比が星間分子の進化過程を理解するうえで鍵を握る。近年、静電蓄積リングを利用した実験によって様々な DR 反応に対して分岐比が調べられている。これら分岐比を決定する要因をミクロスコピックな観点から明らかにするためには、複数の電子状態を考慮した多状態・多自由度の動力学シミュレーションが不可欠である。我々はこれまで AIMD 法を DR 反応 $\text{HCNH}^+ + e^-$ に適用し、星間分子雲で観測されている HNC/HCN の存在比の起源を明らかにした。また、 H_3O^+ および HD_2O^+ の DR 反応に対して valence 及び Rydberg 状態を考慮した動力学シミュレーションを行い、解離生成物の分岐比を再現することに成功している。

今回、新たに DR 反応 $\text{CH}_3^+ + e^-$ を取り上げ、AIMD シミュレーションを行った。まず解離チャンネルである CH_2+H , $\text{CH}+\text{H}_2$, $\text{CH}+\text{H}+\text{H}$, $\text{C}+\text{H}_2+\text{H}$ に対して解離経路を設定し、CASPT2 レベルで交差点を求めたところ、解離に関与するのは 7 番目の励起状態であり、交差点のエネルギーは CH_3^+ の零点振動エネルギーの範囲にあることがわかった。そこで CH_3^+ の各振動モードに零点振動エネルギーを与えて 350 通りの初期条件を生成し、AIMD 計算を行って CH_3 の 7 番目の励起状態のエネルギーをモニターしながら交差点を探索した。結果 172 点の交差点が得られ、各交差点における座標と速度を初期条件として CH_3 の解離過程に対する AIMD 計算を行った。最初の 2~3 fs で非断熱領域を通るが、90% のトラジェクトリーではスムーズに状態遷移を起こして 4 番目の状態まで降りてくる。ここで SA-CASSCF 法の状態数を制限することによって由来するポテンシャルの非連続的な変化が生じるので、状態数を 7 から 4 に減らしてシミュレーションを継続した。最初の非断熱領域をスムーズに降りてくる場合には 1 つの H 原子が CH_2 から解離して離れていくので、系全体としてはスピン 2 重項であるが解離 fragment

である H, CH_2 のスピン状態もそれぞれ定まってくる。 CH_2 のスピン状態は、基底状態のみ 3 重項で励起状態は 1 重項となっており、本手法をそのまま適用すると CH_2 のスピン状態が 1 重項から 3 重項へと変わってしまうことになるので、約 12 fs のあたりで解離した H 原子をはずし、 CH_2 の 1 重項状態での AIMD 計算を継続した。172 本のうち 156 本でこのような CH_2+H へのスムーズな解離が見られた。一方、最初の非断熱領域で遷移が起こらなかった場合は複数の H 原子が解離を試みる複雑な動きを示す。そのうちの 1 本では $\text{C}+\text{H}_2+\text{H}$ へと解離し、C 原子の縮退を反映して最終的にすべての電子状態が縮退する。解離後の fragment のエネルギー分布についても解析を行ったが、解離時間とエネルギー分布の相関について興味深い結果が得られた。

・励起プロトン移動ダイナミクス

溶液内光反応の AIMD シミュレーションを可能にするために QM/MM 法を利用した。QM/MM 法を実装した AIMD 法では、反応に関与する溶質・溶媒分子の電子状態は量子力学的に取り扱い、反応に関与しない周囲の溶媒分子は分子力学的に取り扱うことにより溶媒効果をあらわに考慮したダイナミクスを調べることができる。QM/MM 法の一つとして、多極子展開に基づく Effective Fragment Potential(EFP) 法が提案され、量子化学プログラムパッケージ GAMESS に実装されている。EFP は予備的な量子化学計算に基づいて溶質-EFP、EFP-EFP 間の静電、分極、交換反発の相互作用を再現するように作ることができるモデルポテンシャルである。個々の溶媒分子を EFP として扱うことにより、個々の溶媒分子の相互作用を考慮しながら溶媒効果を量子化学計算の中に効率良く取り込むことが可能となる。

本研究では気相中、および溶液中における 7アザインドール(7AI)光異性化反応の励起状態ダイナミクスに注目し、EFP を用いた AIMD シミュレーションを行った。7AI は DNA 塩基のモデル分子であり、気相中や溶液中において光励起されると五員環上の N 原子から六員環上の N 原子へプロトンが移動し異性化することが知られている。7AI の光異性化反応については、孤立気相中や溶液中の分光実験が行われており、反応のメカニズムとして二量体モデルやプロトン性溶媒とのクラスターモデルが提案されている。炭化水素やアルコール溶媒中において、異性化前(Normal)と後(Tautomer)の 7AI に対応する蛍光がそれぞれ ~350 と ~500nm の領域に観測されている。一方水溶液中では、二つの異性体に対応する蛍光強度は混合溶液中の水の濃度を上げていくにつれ減少することが報告されている。そこで本研究では、水溶液中と気相中での水クラスターのプロトン移動

反応の挙動の違いを調べるために、気相中、水溶液中での反応を想定した $7\text{AI}-(\text{H}_2\text{O})_n$ ($n=1,2$) クラスターの AIMD シミュレーションを行い、結果を比較した。電子状態計算は CASSCF 法、基底関数には DZP を用いた。溶質分子と EFP の運動方程式を時間発展させるアルゴリズムには蛙飛び法を採用した。 $7\text{AI}-(\text{H}_2\text{O})_n$ ($n=1,2$) の初期構造は基底状態安定構造とし、初速度は $7\text{AI}-(\text{H}_2\text{O})_n$ の二つの基準振動モードに 2~3 量子数に相当する運動エネルギーを与えた。水溶液中を想定したシミュレーションの溶媒の初期条件は、電子基底状態の $7\text{AI}-(\text{H}_2\text{O})_n$ ($n=1,2$) クラスターの周りに EFP で表した 100 個の H_2O 分子を配置し、温度 300 K となるように AIMD 計算を行って決定した。

気相、溶液中でのシミュレーションから得られたトラジェクトリーより、プロトン移動によって励起される振動モードが特定された。プロトン移動後、異性化に伴う安定化エネルギーが運動エネルギーに変換されることにより、クラスターを形成していた水分子は 7AI から離れて行く様子が見られた。プロトン移動後、 S_0 - S_1 間のエネルギー差が数 kcal/mol 以下となる構造が見つかり、基底状態と第一励起状態との間の conical intersection に至る可能性が示唆された。溶媒分子の初期配置を変えた数本のトラジェクトリーから、プロトン移動は溶媒の配向によって変化する様子が示された。さらに、気相中のシミュレーション同様、クラスターを形成していた水分子は 7AI から離れるが、周囲の溶媒が存在するために気相中の時ほど遠くへは離れて行かなかった。溶液中のシミュレーションで得られた構造を基に conical intersection が見つかり、プロトン移動反応後に無輻射過程で失活する可能性が示された。

・溶液中光励起ダイナミクス

QM/MM-AIMD プログラムにより、水溶液中におけるクマリン 151 (C151) の光緩和過程のダイナミクスを調べた。クマリンの蛍光量子収率は、一般的に極性溶媒中で小さく、非極性溶媒中では大きくなることが知られているが、C151 は逆の傾向を示すことから、C151 の光励起緩和過程のダイナミクスに興味を持たれている。CASSCF 計算により、C151 の S_1 状態には分子内分極の大きさの異なる二つの安定構造があることが見出された。構造 I では NH_2 部分は分子平面に乗っているが、右側の環は平面からゆがんだ構造をとっている。一方構造 II では、 NH_2 部分のみが分子平面から面外方向に外れた構造となっている。また、 S_0 状態では C151 の平衡構造は構造 II と類似していた。双極子モーメントは S_0 状態で 5.0 Debye と計算されたが、 S_1 状態の構造 I, II ではそれぞれ 11.1, 8.3 Debye と算出され、電子励起状態ではより大きく分

極されることが示された。

C151 に対し、孤立気相中および水溶液中の条件下、CASSCF レベルで励起状態の AIMD 計算を行った。水溶液中のシミュレーションでは、C151 の周りに 150 個の水分子(EFP)を配置した。孤立気相中および水溶液中ともに電子基底状態において 300 K の温度下で 10 ps の AIMD 計算 (RHF/DZP レベル) を行うことにより初期条件を定めた。孤立気相中の AIMD 計算から、C151 は非極性溶媒中では双極子モーメントの大きな構造 I に近い円錐交差を経由して無輻射遷移を起こすことが示された。無輻射遷移には $-\text{NH}_2$ 基の傘反転運動が関与していることが分かった。また、EFP を用いた水溶液中の AIMD 計算では、溶媒効果により S_0 と S_1 状態の分子内電荷分布が近くなり、二つのポテンシャル曲面は似た形となるため、無輻射遷移が起こりにくくなることがわかった。これらの結果は、実験で報告されている反応の特徴を合理的に説明するものである。

・光異性化反応ダイナミクス

アゾベンゼン及びその誘導体は *cis-trans* 光異性化を示す典型的な分子であり、光化学の基礎的観点からだけでなく、光誘導スイッチ、大容量イメージ蓄積装置等の工業的応用において高いポテンシャルを有する点からも重要な分子である。工業的応用における機能はアゾベンゼン部分の *cis-trans* 光異性化に基づいており、その機構解明は重要な意義を持つ。実験研究では、異性化経路として $S_0 \rightarrow S_1(n\pi^*)$ 励起では NN-C 結合角が変化することによる *inversion*、 $S_0 \rightarrow S_2(\pi\pi^*)$ 励起では N=N 結合軸に対するフェニル基の回転による *rotation* により反応が進行すると考えられてきた。Fujino らにより行われた *trans* アゾベンゼンに対する時間分解ラマン分光法を用いた実験では、NN 伸縮振動数を測定した結果 S_0 、 S_1 状態における振動数がほぼ同じであったことから、光異性化反応を通して NN の二重結合が保持されており、 S_1 励起状態を経由する光異性化反応においては平面構造を保持する結果となっている。また、 S_2 状態から S_1 状態への緩和の量子収率がほぼ 1 となったことから $S_0 \rightarrow S_2(\pi\pi^*)$ 励起においても S_1 にすぐに落ち $S_0 \rightarrow S_1(n\pi^*)$ 励起と同じ異性化経路をたどると結論している。理論研究では、 $S_1(n\pi^*)$ 励起では長らく *inversion* の経路が有利であるとされてきたが、Ishikawa 等により $S_1(n\pi^*)$ 状態のポテンシャル曲面 (PES) の *rotation* に沿った経路上に S_0 、 S_1 の円錐交差が見出され、*rotation* の経路の優位性が報告された。その後、アゾベンゼンの光異性化経路について多くの理論計算 (CASSCF / CASPT2 / TDDFT) が行われたが、 $S_1(n\pi^*)$ 、 $S_2(\pi\pi^*)$ いずれの励起状態においても *rotation* の経路が有利であると報告されている。さらに最近は、

半経験的分子軌道法や DFT 法に基づく励起状態のポテンシャル曲面上の動力学計算も行われているが、 S_1 状態については *inversion* の経路ではなく *rotation* の経路にそって反応が進行する様子が報告されている。

本研究では、アゾベンゼンの $S_0 \rightarrow S_1(n\pi^*)$ 励起後の反応ダイナミクスに対し、CASSCF レベルで状態遷移をあらわに考慮した AIMD シミュレーションを行い、異性化の収率、励起寿命、反応経路、状態遷移機構について詳細な議論を行った。アゾベンゼンは 24 原子系と励起状態 AIMD 計算の対象としてはかなり大きく、trajectory を数百本走らせるには計算コストの軽減が重要なポイントとなる。AIMD シミュレーションにおいてコストを軽減するには、1 点あたりの電子状態計算を軽くすることと、trajectory 計算のタイムステップを可能な限り大きくするという 2 つの因子が考えられる。電子状態計算では、CASSCF の active space として π, π^* 軌道に N の非結合性軌道(n)を 2 つ加えた 6 電子 4 軌道と比較的小さな空間を適用し、さらに基底関数として STO-3G を適用することによりコスト軽減を図った。もちろん PES の記述が貧弱であればダイナミクス計算の結果も信頼性を失うので、垂直励起エネルギーについて計算値と実験値を比較し、PES の形状について DZP 基底による結果と比較して、CASSCF/STO-3G レベルでも PES の精度が極端に落ちることはないことを確認した。また、タイムステップを大きくとるために、反応にそれほど関与しないと考えられるフェニル基の CH 結合長を平衡構造の値に固定し、conventional な MD 計算でよく用いられる RATTLE/SHAKE 法を AIMD プログラムに実装して、励起ダイナミクス計算を行った。アゾベンゼンでは、この CH 伸縮振動が最も速い運動であるので、この自由度を固定することによりタイムステップをかなり長めにとることが可能となる。本研究では予備計算を十分に行い、タイムステップとして通常の座標領域では 1.0 fs、非断熱領域では 0.1 fs を採用することとした。電子状態間の遷移には Tully の最少遷移数アルゴリズムを適用し、原子核の時間発展には Velocity Verlet-RATTLE 法を適用する。また、初期条件は、cis 体および trans 体の基底状態における平衡構造近傍において 300 K の条件下で各基準振動の座標と運動量を生成し、cis 体から 200 本の trajectory を 240 fs、trans 体からは 100 本を 3 ps 走らせた。電子状態計算には MOLPRO2006 を使用し、状態遷移を考慮した ab initio 拘束分子動力学プログラムは独自に開発したものを利用した。

本 AIMD シミュレーションにより、 $n\pi^*$ 励起においてもアゾベンゼンの光異性化は基本的に中心部分の CNNC 二面体角が回転することにより進行することが確認された。た

だし、この回転の様式には時計周りとは反時計回りの 2 種類があり、初期条件によりいずれかの経路をとることが新たにわかった。cis 体、trans 体からの反応の異性化の収率はそれぞれ 0.45, 0.28 となり実験値と非常に良い一致を示した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 3 件)

- (1) Y. Ootani, K. Satoh, A. Nakayama, T. Noro, and T. Taketsugu, "Ab initio molecular dynamics simulation with internal constraint on photoisomerization of azobenzene in $n\pi^*$ state," *J. Chem. Phys.*, **131**, 194306 (2009). 査読有
- (2) D. Kina, P. Arora, A. Nakayama, T. Noro, M. S. Gordon, and T. Taketsugu, "Ab initio QM/MM excited-state molecular dynamics study of coumarin 151 in water solution," *Int. J. Quant. Chem.*, **109**, 2308-2318 (2009). 査読有
- (3) A. Nakayama, N. Seki, and T. Taketsugu, "Efficient sampling for ab initio Monte Carlo simulation of molecular clusters using an interpolated potential energy surface," *J. Chem. Phys.*, **130**, 024107 (2009). 査読有
- (4) S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu, and T. Tahara, "Spectroscopic Tracking of Structural Evolution in Ultrafast Stilbene Photoisomerization," *Science*, **322**, 1073-1077 (2008). 査読有
- (5) M. Kayanuma, T. Taketsugu, and K. Ishii, "An ab initio molecular dynamics study on the dissociative recombination reaction of $HD_2O^+ + e^-$ " *Theor. Chem. Accounts*, **120**, 191-198 (2008). 査読有
- (6) D. Kina, A. Nakayama, T. Noro, T. Taketsugu, and M. S. Gordon, "Ab initio QM/MM molecular dynamics study on the excited state proton transfer of 7-azaindole in water solution," *J. Phys. Chem. A*, **112**, 9675-9683 (2008). 査読有

[学会発表] (計 1 0 5 件)

- (1) T. Taketsugu, "Ab initio molecular dynamics approach to excited-state reactions" *69th Okazaki conference "New Frontier in Quantum Chemical Dynamics"*, 2010 年 2 月 21-23, Okazaki
- (2) 武次徹也 「Ab initio 計算に基づく振動分光学と反応ダイナミクス」近畿化学協会コンピュータ化学部会公開セミナー第 77 回例会「GAMESS の研究事例紹介」2010 年 1 月 20 日、大阪
- (3) T. Taketsugu, "Ab initio excited-state dynamics study" *International Symposium on Molecular Theory for Real Systems*, 2010 年 1 月 7-9 日、Kyoto
- (4) T. Taketsugu, "Ab initio Molecular Dynamics

Simulations of Dissociative Recombination Reactions," *The fourth Asian Pacific Conference of Theoretical & Computational Chemistry*, 2009年12月21-23日、Port Dickson, Malaysia

(5) 武次徹也「Ab initio 分子動力学法とポテンシャル曲面生成」化学反応経路探索のニューフロンティア、2009年9月24-25、豊田

(6) T. Taketsugu, "Ab initio Molecular Dynamics Approach to Excited-State Reactions" *Long Island University Seminar 2009*, 2009年9月15日、New York

(7) 武次徹也「量子化学計算に基づく励起状態ダイナミクスへのアプローチ」新化学発展協会先端化学技術部会コンピュータケミストリー分科会講演会、2009年3月10日、東京

(8) 武次徹也「励起状態反応ダイナミクスと光化学への応用」計算科学研究センターワークショップ「次代理論化学の新展開と超並列計算への挑戦」、2009年1月19-21日、岡崎

(9) 武次徹也「計算分子分光学の最近の展開」平成20年度日本分光学会年次講演会シンポジウム、2008年11月19日、仙台

(10) T. Taketsugu, "Ab initio Molecular Dynamics Approach to Excited-State Reactions," *Hokudai-TORJIN-JUSTIPEN-EFES workshop*, 2008年7月21-25日、Onuma

(11) 武次徹也「Ab initio 分子動力学法による励起反応ダイナミクスへのアプローチ」第5回AMO討論会、2008年6月13-14日、八王子

(12) 武次徹也「量子化学計算に基づく励起反応ダイナミクスへのアプローチ」理研シンポジウム：原子衝突から生体分子分析まで広がる化学反応研究の最前線、2008年1月22-23日、和光

(13) T. Taketsugu, "Ab initio Molecular Dynamics Approach to Excited State Reactions," *Progress in advanced chemistry: The 3rd Nanjing-Hokkaido University Joint Symposium*, 2007年11月20-22日、Nanjing

(14) 武次徹也「Ab initio 分子動力学法による励起状態ダイナミクス」第100回触媒討論会、2007年9月17-20日、札幌

(15) T. Taketsugu, "Ab initio Molecular Dynamics Approach to Chemical Reactions in Excited States," *Molecular Science of Ultrafast Electronic Dynamics*, 2007年5月18-19日、Sendai

(16) T. Taketsugu and Yumiko Watanabe, "Ab initio molecular dynamics study on the cis-trans photoisomerization in stilbene," *Practicing Chemistry with Theoretical Tools*, 2007年1月15-18日、Hawaii

(17) T. Taketsugu, "Ab initio surface hopping simulation on interstellar dissociative

recombination reactions," *Japan-China Joint Symposium on Modern Chemistry*, 2006年11月10-11日、Sapporo

(18) 武次徹也「量子化学計算に基づく分子動力学と分光学～星間分子の励起ダイナミクスから希ガス化合物の理論予測まで」日本コンピュータ化学会、2006年10月14-15日、函館

〔図書〕(計1件)

(1) T. Taketsugu, D. Kina, A. Nakayama, T. Noro, and M. S. Gordon, "QM/MM Study of Excited State Solvation Dynamics of Biomolecules," in *Hydrogen Bonding and Transfer in the Excited State*, edited by K.-L. Han and G.-J. Zhao (Wiley, 2010) in press.

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

○取得状況(計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

武次 徹也 (TAKETSUGU TETSUYA)

北海道大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号: 90280932

(2) 研究分担者

野呂 武司 (NORO TAKESHI)

北海道大学・大学院理学研究院・准教授

研究者番号: 50125340

中山 哲 (NAKAYAMA AKIRA)

北海道大学・大学院理学研究院・助教

研究者番号: 10422007

(3) 連携研究者

なし