

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 23 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24245005

研究課題名(和文) 複雑分子系の化学反応の計算化学的研究

研究課題名(英文) Computational chemistry studies of chemical reactions of complex molecular systems

研究代表者

諸熊 奎治 (Morokuma, Keiji)

京都大学・福井謙一記念研究センター・シニアアーリサーチフェロー

研究者番号：40111083

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,600,000円

研究成果の概要(和文)：推進してきた複雑分子系の化学反応の理論化学・計算化学的研究をさらに発展させることを目的として、1. 化学反応経路自動探索(GRRM)戦術の構築と応用、2. 複雑分子系の励起電子状態の化学反応、3. 均一系触媒反応機構とその制御、4. 炭素ナノ構造生成及び反応の機構と制御、5. ONIOM法を用いた生体分子内での化学反応機構と動力学について、計算化学的研究を行った。

研究成果の概要(英文)：In order to make further development of theoretical and computational studies of chemical reactions of complex molecular systems, this year studies of the following topics have been performed. 1. Development and applications of the automatic reaction path search method, the GRRM strategy. 2. Chemical reactions of excited electronic states of complex molecular systems. 3. Mechanism and control of homogenous catalytic reaction systems. 4. Mechanism and control of the growth and reaction of carbon nano structures. 5. Mechanism of chemical reactions of biomolecular systems using the ONIOM method

研究分野：理論化学、計算化学

キーワード：計算化学 化学反応 反応経路探索 炭素ナノ構造 生体反応機構 理論化学 ポテンシャル面 触媒反応

1. 研究開始当初の背景

(1) 化学反応の理論化学・計算化学的研究はこの 20 年ほどの間に大きな進歩を遂げ、数十原子程度を含む有機分子反応系の基底状態の平衡構造や鞍点（遷移状態）を求めることはもはやルーティンとなった。しかし、化学はより複雑な分子系や反応系に重心が移っており、このような反応の電子論的機構、その決定因子の解明、反応設計指針などについては、理論家の果敢なチャレンジが必要とされているものが沢山ある。本研究では、化学反応の理論化学・計算化学的研究の困難なフロンティアと考えられる 3 つの小研究課題に対し研究を行う。

(2) 化学反応経路自動探索法の構築と応用: 反応物から生成物に達する化学反応は、途中いろいろな中間体を通る多段階反応であることが多く、また同じ反応物から同じ生成物に達する経路も数多く存在する。上述のように遷移状態を決めることはルーティンになったが、一般に用いられている方法では推定構造が必要で、推定構造が悪いと探している遷移状態(TS)が見つからず、最低エネルギー経路を決めることができないことが起る。前田、大野が提案した ADDF (anharmonic downward distortion following)法は推定構造なしに遷移状態を求められる方法で、一つの平衡構造(EQ)から出発して EQ→TS→EQ とたどって、芋づる式にすべての EQ と TS を決定することができる。最近代表者と連携研究者(前田)が開発した AFIR (artificial force induced reaction)法は、反応する分子間に人工的な力をかけてポテンシャル面を変形させ、近似的反応経路を作る。この上の最低構造、最高構造はそれぞれ真のポテンシャルの最適化構造、遷移状態構造の良い推定構造で、ここから最適化すれば真の構造が容易に求まる。また、両法は GRRM(Global Reaction Route Mapping)戦術として同じプログラム GRRM に実装され、基底状態のみならず、励起状態の EQ や TS、およびそれらの差(すなわち 2 つのポテンシャル面の交差曲面)の最低構造(MECL, MESX)の決定にも拡張され、応用に成功している。

(2)炭素ナノ構造生成及び反応の機構と制御: 炭素ナノ構造の生成の機構は本質的にはまだ解明されていない。フラーレン生成に関しては、小さな炭素クラスターが一定の順序で規則的に積み上がって C₆₀が生成するモデルなどが多く提唱されているが、1500°C を越える高温下、平衡から大きく離れた条件で、規則的な反応経路

を通して生成が進むとは考えにくい。カーボンナノチューブ(CNT)についても、炭素原子が一つずつ規則的にチューブの先端の決まった位置に付加して行くモデルも提唱されているが、全くの理想化モデルで現実的でない。より現実的な考え方は、小さな炭素クラスターが非平衡動力学的に様々な径路を通して自己集積することで、過去に分子動力学(MD)法を使って研究が行われた。しかし、フラーレンや CNT は sp²炭素系であり、パイ電子の共役が反応性を制御するので、その効果をあらわに取り込めない分子力場(MM)ポテンシャルでは不十分で、量子化学的(QM)ポテンシャルを用いる必要がある。われわれは、計算効率と精度のバランスを考え、DFTB 法と言われる半経験的量子化学法を使った QM/MD を行った。その結果、C、C₂あるいは炭化水素の燃焼中に得られる C_nH_m から自己集合により巨大フラーレンが生成し、それが C₂を放出して小さくなって C₆₀などが生成する機構を提唱した。さらに、Fe や Ni などの遷移金属クラスターの上で、C、C₂ からポリイン鎖ができ、最初の 5 員環をへて sp²共役したキャップが生成すること(nucleation)、キャップが成長してチューブ構造を生成する(growth)が、この構造は欠陥を沢山含んでいること、成長の後ゆっくりと欠陥が除去されること(healing)を見出した。

(3)ONIOM 法を用いた生体分子内での化学反応機構と動力学: 酵素反応や生体分子光反応など生体環境の関与した複雑な化学反応にも最近計算化学的方法の手が届くようになり、研究が盛んに行われるようになった。しかし、活性中心のみを抜き出した活性中心モデルや半経験的方法を QM 法として用いた QM/MM 法まだ多く用いられているが、それぞれ問題を抱えている。一方生体分子全体の複雑な化学反応の反応経路の決定には QM/MM 法が主力とならざるを得ない。代表者らは柔軟性のあるハイブリッド法 ONIOM を考案し生体分子反応にも応用してきた。とくにこの数年、金属酵素反応におけるタンパク場の効果に注目した研究を行ってきた。その例には、ビタミン B₁₂ 依存型 methylmalonyl-CoA mutase (MMCM)、フェリチンタンパク中で Pd 錯体を使ったフェニルアセチレンの重合反応、Isopenicillin-N synthase (IPNS)の反応機構、緑色蛍光色素の一種 Dronpa の光励起後の動力学等である。

2. 研究の目的

(1) GRRM 戦略を用い、多成分有機反応や均一触媒サイクルなど今まで不可能であった

複雑な反応系の最低エネルギー経路の自動探索法を構築することを目標の一つとする。

(2) また、GRRM の開発に先行して、複雑な化学反応の機構を従来法を用いて解明する理論的研究も実施する。

(3) 炭素ナノ構造生成及び反応に関し、未だ実験的にも達成されていないキラリティを制御した CNT の生成の QM/MD シミュレーション、グラフェンの生成機構の QM/MD によるシミュレーションを目標とする。

(4) 生体分子系の化学反応機構に関し、ONIOM 法により生体分子環境をあらわに考慮した生体反応機構の解明と反応設計、生体分子の光化学過程の ONIOM 計算を研究目標とする。

3. 研究の方法

必要に応じて種々の量子化学的方法(DFTB法、DFT法、ab initio法)や分子力場ポテンシャル、およびONIOM法を、GRRM戦略(ADDF法とAFIR法)、分子動力学法などと組み合わせて用い、計算化学的に、多成分有機反応および均一触媒反応への応用、炭素ナノ構造生成及び反応の機構と制御、および生体分子内の化学反応機構と動力学を解明する。

4. 研究成果

(1) 化学反応経路自動探索(GRRM)戦略の構築と応用

まず、ADDF及びAFIR法による反応経路自動探索の最新の情報をperspectiveとして、論文23に発表した。上述のように、AFIR法を当初分子間反応のために開発されたが、発表論文14では分子内反応の遷移状態の探索にも使えるかどうかのテストを行った。その結果、分子内反応においても、ADDF法の10-100倍速いことが見いだされた。これにもとづいて、AFIR法を分子内反応にも常用する新しいコードを開発した。

上に述べたように、光化学反応では、分子は先ず励起電子状態ポテンシャル面に励起され、励起状態と基底状態(あるいは別の励起状態)との円錐交差曲面の最低構造(MECI)を通過して基底状態ポテンシャル面に非断熱遷移を起こし、新しいポテンシャル面で反応することが往々にして起こる。このMECIを従来法で探索するには多くな困難が伴う。研究代表者らは既にADDF法がMECIを決めるのに大変有効である事を示し、多くの小分子の光化学反応機構の解明に使用してきた。下述の発表論文21,16,7等はその例である。これらの研究では高精度CASPT2法をエネルギーの計算に使ってきたが、大きな分子系ではこの方法は計算時間がかかりすぎる。そこで、計算コ

ストの低いスピンフリップ(SF)時間依存密度汎関数(TDDFT)法を用いれば、大きな分子でもGRRM法でMECIを求められるはずである。この可能性を探るため、論文17では、エチレンとブタジエンを例として、SF-TDDFT/GRRM法をテストした。その結果、この方法が十分に役に立つ事が分かったので、これをコードとして実用化した。下述発表論文4は、これを応用したものである。

有機化学へのAFIRの一つの応用として、セスキテルペン類生成および異性化経路を自動探索で求めたところ、従来知られていないテルペン異性体とそれに達するエネルギーの低い経路がいくつも見つかった(論文11)。今後さらに類似系への応用を進める予定である。

B. AFIR法の触媒反応への応用

AFIR法を用いて、遷移金属および有機分子触媒反応機構の解明をいくつかの系に対して実施して成果をあげ、論文を発表した。

4級アンモニウム塩を触媒とする不斉中間移動触媒反応機構の理論的研究(論文9):丸岡グループが開発した配座的に固いホモ並びにヘテロキラルな4級アンモニウム塩を触媒とするグリシン誘導体のアルキル化に関し、反応経路自動探索法により、40個以上の遷移状態を見いだした。ホモキラル触媒はR-生成物を選択的に生成するのに反し、ヘテロキラル触媒では選択性が良くない。

超分子錯体L-Cu(II)-R/d(CAAAAA TTTTGG)₂を触媒とする分子内フリーデルクラフツ反応のエナンチオ選択性の起源(論文10):京大杉山グループが発見したこのエナンチオ選択性の起源は、pro-S基質とDNAの相互作用がpro-Rより強く、また遷移状態とより似ているためである事が分かった。

一級アミン有機分子触媒による不斉直接アルドール反応に対する水分子の効果(論文1) 詳細省略

水中でのランタノイドを触媒とする向山アルドール反応の機構(論文16):ランタノイド(Ln)錯体は、配位子との結合がイオン結合的であるため構造がゆらぐと考えられているが、この効果をあらわに考慮した研究例はない。AFIR法を用いて反応機構を調べたところ、まずEu³⁺に水8個とアルデヒド1個が配位し、その後、C-C結合生成、プロトン付加、SiMe₃の脱離の順に反応が進むことがわかった。立体選択性を決めるC-C結合生成段階に着目し、配向や反応方向の異なる遷移状態(TS)を、AFIR法を用いて数多く得た。Eu³⁺まわりの構造ゆらぎがあるため、構造が少しずつ異なるTSが、91個(syn)、74個(anti)もみつけた。これらのTSを考慮することで、syn、antiの生成物比の実験値を定量的に説明することができた。

C. 気相分子系の励起電子状態の化学反応

AFIR 法の光化学反応への拡張 - Paternò-Büchi 反応への応用(論文 19): AFIR 法を励起状態の反応にも応用できるよう拡張し、 H_2CO と C_2H_4 の間の光化学反応に適用した。反応経路の予測無しに、従来知られていた反応経路全てが自動的に見つかった。

メチルアミンの光分解反応機構の解明(論文 21): メチルアミンの S_0 、 S_1 、 T_1 のポテンシャル面を GRRM 法を用いて探索し、中間体、遷移状態、最低(ME)CI および SX の構造とエネルギーを決定し、それに基づいて、222-240 nm 領域の光分解反応の機構を明らかにした。NH 結合の切断が S_1 上での最重要経路である。この経路上に S_1 から S_0 へ非断熱遷移する低エネルギーの MECI が存在し、一部の分子は S_0 に落ちて直接 $\text{CH}_3\text{NH} + \text{H}$ を生成する。

紙面の都合上詳細は省略するが、下記の反応のポテンシャル面の探索と反応機構の決定も行った。

ケテンの光解離反応(論文 16)

ニトロメタン CH_3NO_2 の光解離反応(論文 7)

$\text{N}^2(\text{D}) + \text{H}_2\text{O}$ 気相反応のための D_1 および D_0 状態のポテンシャル面(論文 5)

ランタニド錯体 f-f 発光と消光の反応座標 - Tb(III)ルミネッセンスの温度依存性(論文 4): ランタニド錯体の内核 f-f 遷移はルミネッセンスプローブとして広く用いられている。発光過程は、(1) 基底一重項 S_0 状態から配位子の励起 Sn 状態への励起、(2) Sn から最低三重項 T_1 状態への項間交差(ISC)、(3) 配位子 T_1 状態からランタニドの 4f 励起状態(5D_J , $J=4-0$)への励起エネルギー移動(EET)、(4) 5D_J 状態から 3D_J 状態への内部変換(IC)、(5) f-f 遷移による緑色発光 と言う一連の過程で起こる。エネルギーシフト近似と GRRM を用いて、上述の交差点の構造とエネルギーを計算し、配位子 X = hfa, acac, NO_3^- の間で比較し、発光強度の温度及び配位子依存性の起源を明らかにした。

(2) 従来法を用いた化学反応機構の研究

A. スピロピラン-メロシアン(SP-MC)フォトクロミック反応機構の DMRG 計算(論文 15): すでに(12e,10o)活性空間を用いた CASPT2 法を用いて発表したスピロピレンの光化学開環反応の反応機構に関し、DMRG 法を採用して大きな(20e,20o)活性空間を用いた CASSCF および CASPT2 計算を行ない、結果を比較検討した。 S_1 および S_2 状態の性質とエネルギーも従来法と同様の結果を得た。また $S_1 \rightarrow S_0$ 非断熱過程における HOOP (水素原子面外変位)ポテンシャル谷の役割も、DMRG 計算によって確認された。

B. Rh 錯体触媒によるベンゾシクロブテノールの Csp3-Csp2 結合と Csp3-Csp3 結合の選択的解裂の起源(論文 13): この反応は、基質から

水酸化ロジウムへのプロトン移動、C-C 切断、水分子から炭素へのプロトン移動の3段階で起こる。遷移状態の構造とエネルギー分割の比較から、強い Csp3-Csp2 結合が選択的に切断されるのは、Csp3-Csp3 遷移状態に比べ、Rh と基質のベンゼン環との相互作用により遷移状態がより安定化するためであることが見いだされた。

C. Ru 水分子錯体の励起状態非可逆のプロトン移動反応の反応機構(論文 12): DFT 法により、*trans*-[Ru(tpy)(pynp)(OH₂)]²⁺ (TA) と *cis*-体 (CA) 間の非可逆的光異性化反応の機構を明らかにした。TA では中間体が水分子を解離して 5 配位中間体を生じ、容易に異性化して CA を生成する。一方 CA では、励起状態プロトン移動を起こして強い Ru(II)-OH 結合を生じるので、中間体が極めて安定化し障壁が高くなって異性化が起こらなくなる。

D. ジアリアルエチレン異性体の光開閉環反応の経路のスピントラジエンス関数法による解明(論文 2): 分子スイッチ等の光でバイスに用いられるジアリアルエチレンの光開環及び閉環反応の機構を明らかにした。1,2-dithienylperfluoro-cyclopentene の 3 つの異性体に対し SF-TDDFT 計算を行って複数の状態のポテンシャル面を計算し、最低エネルギー円錐交差点(MECI)の構造を決定した。この付近のポテンシャル面の挙動から、3 つの異性体で異なる生成物が得られる理由を明らかにした。

(3) 炭素ナノ構造生成及び反応の機構と制御

A. 溶融表面をもつ Cu 触媒によるグラフェン核生成過程の DFTB/MD トラジェクトリー研究(論文 8) 詳細略

B. QM/MD による多環芳香族炭化水素生成反応における水素原子の欠陥修復と成長阻害の二重性の解明(論文 20) 詳細略

(4) ONIOM 法を用いた生体分子内での化学反応機構と動力学

A. UVR8 Photoreceptor の光センシングとホモ 2 量体解離の機構(論文 6) 詳細略

B. ONIOM 法とその応用に関する網羅的な総説(論文 3): ONIOM 法は、巨大分子系をいくつかの空間領域にわけ、機能の本質を担う重要な領域には精度の高い方法を、それほど重要でない領域には計算の容易な方法を組み合わせるハイブリッド法で、研究代表者が 1995 年に開発して以来、多くの分子系に応用されている。この方法の開発以来の進展と応用を網羅的にレビューするため、Chem. Rev. に、引用論文約 1000 件、印刷ページ数 120 頁におよぶ "ONIOM 法とその応用" と言う総説を発表した。

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 23 件)

① S. A. Moteki, K. Nakayama, H.-B. Li, G. Petrova, S. Maeda, K. Morokuma, and K. Maruoka, Positive Effect of Water in Asymmetric Direct Aldol Reactions with Primary-Amine Organocatalyst: Experimental and Computational Studies, *Chem. Asian J.* 10, 1-6. DOI: 10.1002/asia.201500078

② M. Isegawa and K. Morokuma, Photochemical Ring Opening and Closing of Three Isomers of Diarylethene: Spin-Flip Time Dependent Density Functional Study. *J. Phys. Chem. A* 119, 4191-4199 (2015). DOI: 10.1021/jp511474f

③ L. W. Chung, W. M. C. Sameera, R. Ramozzi, A. J. Page, M. Hatanaka, G. P. Petrova, T. V. Harris, X. Li, Z. Ke, F. Liu, H.-B. Li, L. Ding, and K. Morokuma, The ONOIM Method and its Applications. *Chem. Rev.* 115, 1-119, doi:10.1021/cr5004419

④ M. Hatanaka and K. Morokuma, Exploring the reaction coordinates for f-f emission and quenching of lanthanide complexes – thermo-sensitivity of terbium(III) luminescence. *J. Chem. Theo. Comp.* 10, 4184-4188 (2014). Doi: 10.1021/ct500668n

⑤ M. Isegawa, F. Liu, S. Maeda and K. Morokuma, Complete active space second order perturbation theory (CASPT2) study of $N(^2D) + H_2O$ reaction paths on D_1 and D_0 potential energy surfaces: direct and roaming pathways, *J. Chem. Phys.* 141, 154303/1-9 (2014). doi: 10.1063/1.4897633

⑥ X. Li, L. W. Chung, K. Morokuma and G. Li, A Theoretical Study on the UVR8 Photoreceptor: Sensing Ultraviolet-B by Tryptophan and Dissociation of Homodimer, *J. Chem. Theo. Comp.* 10, 3319-3330 (2014). DOI: 10.1021/ct5003362.

⑦ M. Isegawa, F. Liu, S. Maeda, and K. Morokuma, Ab initio reaction pathways for photodissociation and isomerization of nitromethane on four singlet potential energy surfaces with three roaming paths *J. Chem. Phys.* 140, 244310/1-11 (2014). doi: 10.1063/1.4883916.

⑧ H.-B. Li, A. J. Page, C. Hettich, B. Aradi, C. Koehler, T. Frauenheim, S. Irle and K. Morokuma, Graphene Nucleation on a Surface-Molten Copper Catalyst: Quantum Chemical Molecular Dynamics Simulations, *Chem. Sci.* 5, 3493-3500 (2014). doi: 10.1039/c4sc00491d

⑨ G. P. Petrova, H.-B. Li, K. Maruoka and K. Morokuma, Asymmetric phase-transfer catalysis

with homo- and heterochiral quaternary ammonium salts: a theoretical study, *J. Phys. Chem. B*, 118, 5154-5167 (2014). doi: 10.1021/jp501520g

⑩ G. P. Petrova, Z. Ke, S. Park, H. Sugiyama and K. Morokuma, The origin of enantioselectivity for intramolecular Friedel-Crafts reaction catalyzed by the supramolecular Cu / DNA catalyst complex, *Chem. Phys. Lett.* 600, 87-95 (2014). doi: 10.1016/j.cplett.2014.03.060

⑪ M. Isegawa, S. Maeda, D. J. Tantillo and K. Morokuma, Predicting Pathways for Terpene Formation from First Principles - Routes to Known and New Sesquiterpenes, *Chem. Sci.* 5, 1555-1560 (2014). DOI: 10.1039/c3sc53293c.

⑫ L. Ding, L. W. Chung, and K. Morokuma, Excited-State Proton Transfer Controls Irreversibility of Photoisomerization in Mononuclear Ruthenium(II) Monoaquo Complexes: A DFT Study, *J. Chem. Theo. Comp.* 10, 668-675 (2014). DOI: 10.1021/ct400982r

⑬ L. Ding, N. Ishida, M. Murakami, and K. Morokuma, sp^3 - sp^2 vs sp^3 - sp^3 C-C Site-Selectivity in Rh-Catalyzed Ring Opening of Benzocyclobutenol: A DFT Study, *J. Am. Chem. Soc.* 136, 169-178 (2014). doi: 10.1021/ja407422q

⑭ S. Maeda, T. Taketsugu, and K. Morokuma, Exploring Transition State Structures for Intramolecular Pathways by the Artificial Force Induced Reaction (AFIR) Method, *J. Comp. Chem.* 35, 166-173 (2014). doi: 10.1002/jcc.23481

⑮ F. Liu, Y. Kurashige, T. Yanai, and K. Morokuma, Multireference Ab Initio Density Matrix Renormalization Group (DMRG)-CASSCF and -CASPT2 Study on the Photochromic Ring-Opening of Spiropyran, *J. Chem. Theo. Comp.* 9, 4462-4469 (2013). DOI: 10.1021/ct400707k

⑯ M. Hatanaka and K. Morokuma, Theoretical Study of Mukaiyama-Aldol Reaction Catalyzed by Water-Tolerant Lanthanide Lewis Acid, *J. Am. Chem. Soc.* 135, 13972-13979 (2013). DOI: 10.1021/ja407357c.

⑰ Y. Harabuchi, S. Maeda, T. Taketsugu, N. Minezawa, and K. Morokuma, Automated search for minimum energy conical intersection geometries between the lowest two singlet states S_0/S_1 -MECIs by the spin-flip TDDFT method. *J. Chem. Theo. Comp.* 9, 4116-4123 (2013). DOI: 10.1021/ct400512u

⑱ H. Xiao, S. Maeda and K. Morokuma, A CASPT2 Study of Photodissociation Pathways of Ketene. *J. Phys. Chem. A*, 117, 7001-7008 (2013). DOI: 10.1021/jp312719a

⑱ S. Maeda, T. Taketsugu, and K. Morokuma, Exploring Pathways of Photoaddition Reactions by Artificial Force Induced Reaction Method: A Case Study on the Paternò-Büchi Reaction. *Zeit. Phys. Chem.* 227, 1421-1433 (2013). DOI: 10.1524/zpch.2013.0401

⑳ H.-B. Li, A. J. Page, S. Irle, and K. Morokuma, Revealing the Dual Role of Hydrogen for Defect Healing and Growth Inhibition In Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Formation with QM/MD Simulations, *J. Phys. Chem. Lett.*, 4, 2323-2327 (2013). DOI: 10.1021/jz400925f

21 H. Xiao, S. Maeda and K. Morokuma, Theoretical Study on the Photodissociation of Methylamine Involving S_1 , T_1 , and S_0 States, *J. Phys. Chem. A* 117, 5757-5764 (2013). doi:10.1021/jp404326d

22 M. Hatanaka, S. Maeda and K. Morokuma, Sampling of Transition States for Predicting Diastereoselectivity Using Automated Search Method - Aqueous Lanthanide-Catalyzed Mukaiyama Aldol Reaction, *J. Chem. Theo. Comp.* 9, 2882-2886 (2013). doi: 10.1021/ct4002637

23 S. Maeda, K. Ohno and K. Morokuma, Systematic Exploration of the Mechanism of Chemical Reactions: the Global Reaction Route Mapping (GRRM) Strategy by the ADDF and AFIR Methods, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 15, 3683-3701 (2013), doi:10.1039/c3cp44063j

[学会発表] (招待講演計 37 件; 紙面節約のためごく一部のみ示す)

① K. Morokuma, "New Fascinating World of Theory of Chemical Reactions", the 3rd International Symposium of Theoretical Chemistry, USTHB, Alger, Algeria, October 14-17, 2012.

② K. Morokuma, "Fascinating World of Theory of Chemical Reactions", CRC International Symposium in Strasbourg: Chemical Theory of Complex Systems, Strasbourg, France, March 7-8, 2013.

③ K. Morokuma, Exploring potential energy surfaces with GRRM automatic search strategy, International Symposium on Organic Reaction Mechanism, Shenzhen, China, May 8-9, 2013.

④ K. Morokuma, Exciting World of Theoretical Studies of Chemical Reactions -- From Gas Phase Reactions to Catalysts, and Enzymatic Reactions, Asian Pacific Conference of Theoretical and Computational Chemistry (APCTCC6), Gyeongju, Korea, July 10-13, 2013.

⑤ K. Morokuma, Automatic exploration of potential energy surfaces for catalysis and other complex chemical reactions, DOE Symposium on

New Theoretical Concepts and Directions in Catalysis, Santa Barbara, CA, USA, August 27-30, 2013.

⑥ K. Morokuma, Complex Chemical Reaction Pathways Explored by Automatic Search Strategy, 5th Japan-Czech-Slovakia International Symposium on Theoretical Chemistry, Nara, December 2-6, 2013.

⑦ K. Morokuma, Chemical Theory of Complex Molecular Systems: Discovery and Insights from Computational Studies of Chemical Reactions, CRC-EC Joint International Symposium on Chemical Theory for Complex Systems, Atlanta, GA, USA, January 9-10, 2014.

⑧ K. Morokuma, Exciting World of Theoretical Studies of Chemical Reactions - From Gas Phase Reactions to Catalysts, and Enzymatic Reactions, Swiss Chemical Society Lecture, University of Basel, Basel, Switzerland, May 19, 2014

⑨ K. Morokuma, Quantum chemical molecular dynamics (QM/MD) simulations of nucleation, growth and healing processes of fullerenes, carbon nanotubes and graphenes, the 17th International Symposium on Small Particles and Inorganic Clusters (ISSPIC XVII), Fukuoka, September 7, 2014

⑩ K. Morokuma, Theory and Computation Provide Insights and Discovery on Chemical Reactions of Complex Molecular Systems, International Conference "Molecular Complexity in Modern Chemistry" (MCMC-2014), Moscow, Russia, September 16, 2014

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

[http:// kmweb.fukui.kyoto-u.ac.jp/top/index.html](http://kmweb.fukui.kyoto-u.ac.jp/top/index.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

諸熊 奎治 (MOROKUMA KEIJI)
京都大学大学・福井謙一記念研究センター・シニアリサーチフェロー
研究者番号: 40111083

(2) 連携研究者

前田 理 (MAEDA SATOSHI)
北海道大学・理学研究院・准教授
研究者番号: 60584836
イレス テファン (IRLE STEPHAN)
名古屋大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号: 00432336