

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05675

研究課題名(和文)水を反応場とするグリーンケミストリーの計算化学

研究課題名(英文)Computational Green Chemistry of Reactions in Water

研究代表者

志賀 基之 (Shiga, Motoyuki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究主幹

研究者番号：40370407

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：グリーンケミストリーの観点から、豊富で毒性のない水の利用が注目され、水溶液を用いた反応制御技術が進歩してきた。よりよい反応設計のためには、水溶液中で反応がどのように進行し、水の果たす役割について詳しい知見を要するが、既存の実験手法では限界もある。そこで、本研究では計算化学的手法を用いて、高温水中の有機反応における詳細な反応メカニズムと、水の果たす役割を解明した。この研究を通じて、マルチスケール分子動力学法や第一原理分子動力学法を用いた新たな溶液反応自由エネルギー計算技術を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

この計算化学的研究によって、高温水中における有機反応の詳細な反応機構と、水の果たす役割への理解が飛躍的に進んだ。特に、温度や酸性度など、様々な実験条件において反応速度が変化する原因を突き止めることができた。今後、計算結果から高温水中における新たな有機合成ルートを探査、予測し、実験で実証可能なものを導き出す可能性に繋がった。また、溶液反応自由エネルギー計算技術は、高温水のみならず、幅広い応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：From the viewpoint of green chemistry, the use of abundant and non-toxic water has attracted attention, and reaction control technology using aqueous solutions has advanced. For better reaction design, detailed knowledge of how the reaction proceeds in an aqueous solution and the role played by water is required, but existing experimental methods have limitations. In this research, we have clarified the detailed reaction mechanism and the role played by water, targeting organic reactions in high-temperature water using computational chemistry techniques. Through this research, we have established a novel free energy calculation technique for reactions in solution using multi-scale molecular dynamics and first-principles molecular dynamics methods.

研究分野：計算化学

キーワード：グリーンケミストリー 計算化学 水 化学反応 第一原理計算

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

有機溶媒に頼らない有機合成ルートの探査は、クリーンで持続可能な環境をコンセプトとしたグリーンケミストリー分野で注目されている。近年、豊富で毒性のない水の利用が注目され、水溶液の内部や界面における反応制御の技術が著しく進歩してきた。1980年代に Diels-Alder 反応が水溶液中で加速されるという実験的事実が知られてから、それまで有機溶媒でしか起こらないと考えられてきた有機反応が次々に発見された。水溶性の基質や試薬で反応の簡素化・高効率化する研究も進んでいる。よりよい反応設計のためには、水溶液中で反応がどのように進行し、水の果たす役割について詳しい知見を要するが、既存の実験手法では限界もある。そこで、計算化学的手法を利用すれば、反応メカニズムについて重要な知見が得られるものと期待し、本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、複雑な溶液反応系の自由エネルギー計算を行う必要があるが、多大な計算機資源を要する従来手法では難しかった。並列化など、これを可能とする新しい計算アルゴリズムを取り入れることで、反応自由エネルギー計算のためのマルチスケール分子動力学法や第一原理分子動力学法を新規開発する。これを用いて水を反応場とする未知の有機反応メカニズムの理論的解明にあたる。グリーンケミストリー分野で最近注目されている反応として、バイオマス由来の多価アルコール脱水反応を主な対象とし、その詳細な反応メカニズムと、水の果たす役割を解明する。反応機構の解明によって、温度や酸性度など、様々な実験条件において反応速度が変化する原因を突き止めることを目的とする。

3. 研究の方法

マルチスケール分子動力学法は、反応部分を量子論と溶媒部分を古典論で扱うという領域分割によって計算量を抑え、大規模で複雑な溶液系の計算を可能にする便利な手法である。しかし、これまでのマルチスケール分子動力学法では自由境界条件が用いられることが多く、バルク溶液系を扱うのに適していなかった。そこで、周期境界条件下でのマルチスケール分子動力学法を新たに開発してこの問題を解決し、J. Chem. Phys. 誌上で報告した[1]。

一方、従来のマルチスケール分子動力学法や第一原理分子動力学法を用いた溶液系の反応自由エネルギー計算では、遷移状態を得るのに大変な時間がかかるという問題を抱えていた。特に、反応座標が複雑で多次的な場合には深刻である。そこで、新たな鞍点探索アルゴリズムを利用して遷移状態の計算を大幅に効率化し、その成果を J. Phys. Chem. Lett. 誌上で報告した[2]。

上記の新手法に加え、溶液反応の集団座標を求めるストリング法、反応自由エネルギー面を計算するメタダイナミクス法、ブルームーンアンサンブル法のプログラムを整備して、これを汎用計算コード“PIMD ver. 2.3”に実装し、ソース公開を通じて普及活動を行った[3]。このようにして確立した複雑な溶液反応のシミュレーション技術を利用して、水溶液中の多価アルコール脱水反応などの計算を行った[4,5]。

4. 研究成果

三価アルコールである R-pentanetriol (R-PTO) が水溶液中で起こす反応を J. Phys. Chem. B 誌上で報告した[5]。以下、その内容について詳しく紹介する。先行実験で、R-PTO 分子は高温高圧条件の水溶液下でアルコール脱水反応を起こすことが発見されていた。図1のように、脱水に関わる攻撃パターンによって四通りの反応経路が考えられ、それぞれ五員環エーテルの R-tetrahydrofurfuryl alcohol (THFA) と六員環エーテルの R- および S-3-hydroxytetrahydropyran (3HTHP) へ至ることが考えられる。主生成物が THFA であることや、酸によって反応速度が加速されることが報告されていたが、その原因を実験で探ることは困難であった。また、3-HTHP の立体異性体である R/S 依存性についても調べられていなかった。そこで、本研究で新規開発した分子動力学法でこれを詳しく解析した。

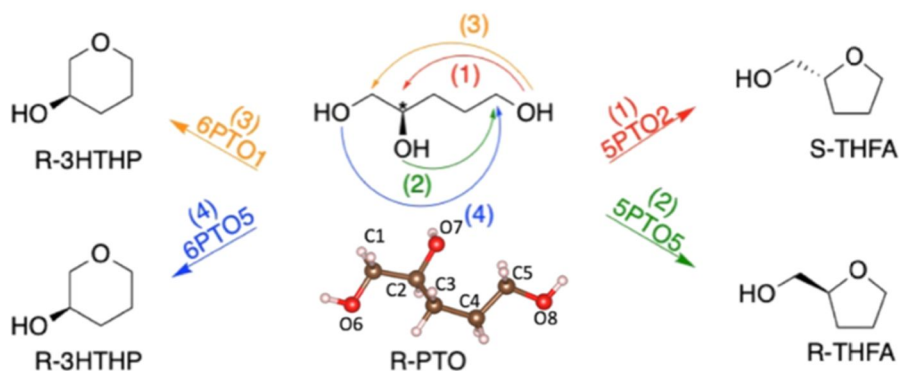


図1：水溶液中 R-PTO 分子の脱水反応における攻撃パターンの様式。

計算は PT0 水溶液に対して先行実験と同じ熱力学的条件 (573 K, 20 MPa) のもとで行った。バルク水溶液を周期境界条件下の 30-70 分子系で表現した以外には、特にモデル化することなく計算することができた。ポテンシャルには、PBE-D2 汎関数に基づく密度汎関数 (DFT) 法、3ob Slater-Koster パラメータに基づく密度汎関数強束縛 (DFTB) 法の二つを用いた。

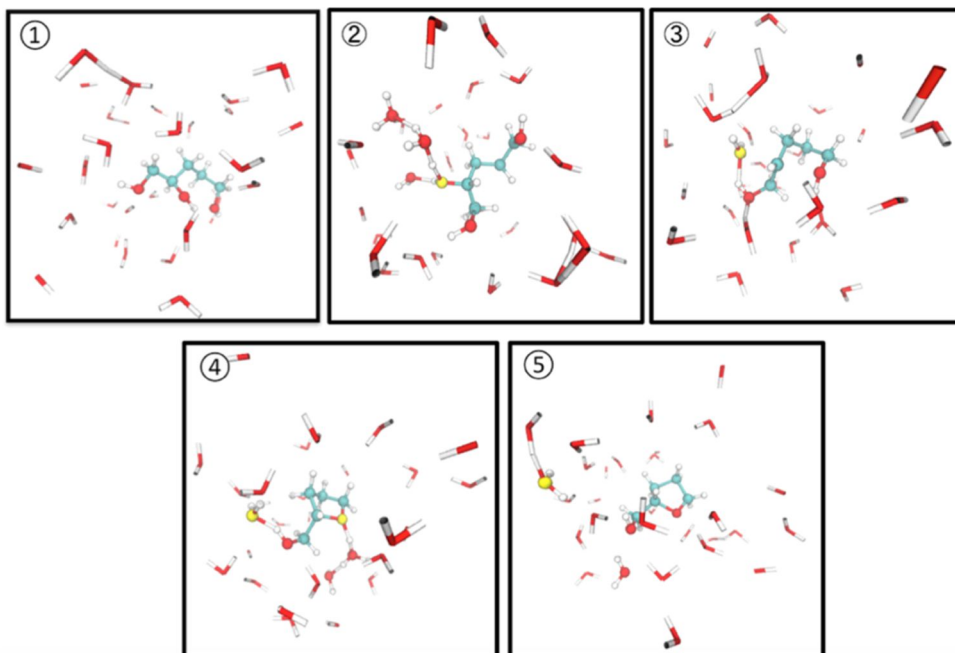


図 2 : R-PT0 から S-TFTA への反応過程。各原子は赤 (O)、白 (H)、青 (C) で表している。図 1 の赤矢印で示した反応に対応する。

計算から得られた R-PT0 から S-TFTA への反応における時系列変化を図 2 に示す。①は PT0 分子として水溶液中に溶解している状態を表す。②では PT0 分子の一つの OH 基がプロトン化されて OH_2^+ になる。この際、水溶液から水素結合網を介したプロトンリレーが見られた。③では、OH 基が五員環エーテルを形成するように反対側の C を攻撃し、 OH_2^+ 基が水分子として放出される。④では、既存の OC 結合の切断と新たな CO 結合の生成が同時に進行する。このとき O-C-O はほぼ一直線状になっており、 $\text{S}_\text{N}2$ 反応における遷移状態の特徴を示している。⑤では、遷移状態を越えると、エーテル環が閉じたのち余剰プロトンを放出して反応が完結する。このように、多価アルコール反応過程の詳細が初めて解明された。

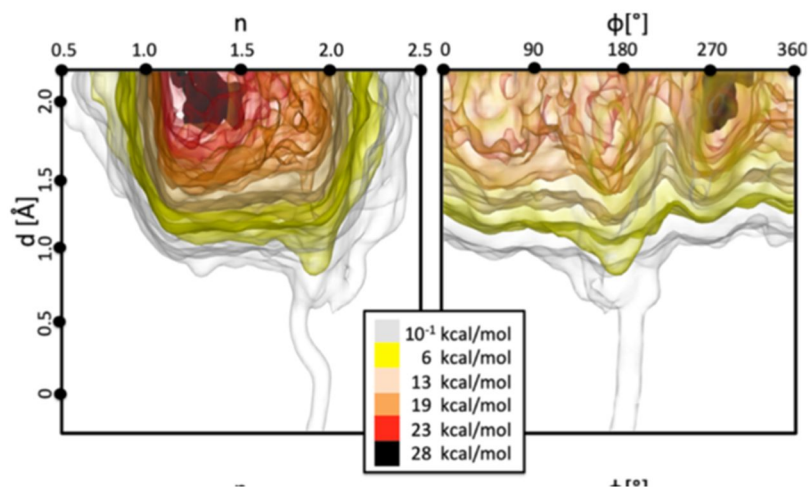


図 3 : R-PT0 から S-TFTA への反応における自由エネルギー面。d (OC 結合距離と CO 結合距離の差)、n (OH 基のプロトン配位数)、 ϕ (C-C-C-O の二面角) の 3 次元を集団座標とした。自由エネルギーは、黒、赤、橙、黄、灰、白の順で低い。

R-PT0 から S-TFTA への反応における自由エネルギー面を図 3 に示す。反応前は自由エネルギー面の低い場所 (黒) にいて、OC 結合距離差が $d > 0$ で、OH 基のプロトン配位数が $n=1$ の形態、つまり PT0 分子として存在する。一方、遷移状態になると $d=0$ となる場所 (灰) を通る。このとき、プロトン配位数は $n=2$ となって OH_2^+ へと変化する。同時に、炭素骨格の立体配座は $\phi=180^\circ$

にある。つまり、OH 基がプロトン化し、なおかつ O-C-O が直線状の SN2 的な立体配座となった時に遷移状態になる。裏を返せば、この二つの条件が重なりあった時にのみ反応が進行するのである。このことは、主たる反応過程が酸触媒型 SN2 反応であることを示唆しており、実験結果を見事に説明している。

R-PTO から R,S-TFTA、R-3HTHP へ至る四通りの反応過程について同様の計算を行い、その結果を図4にまとめた。いずれの過程も酸触媒型 SN2 反応であることがわかる。DFT および DFTB に基づく分子動力学計算の結果を比べると、大方は一致しているが、自由エネルギー障壁の絶対値が異なっている（ただし、実験の反応速度から推定される自由エネルギー障壁と同程度であり、どちらがより正しいとは言えない）。しかし、いずれの場合も五員環エーテルの R,S-TFTA への自由エネルギー障壁は六員環エーテルの R-3HTHP への自由エネルギー障壁に比べて低い。これは、五員環エーテルが主生成物となることを示していて、実験結果とも一致している。反応経路の違いをより詳細に調べたところ、六員環エーテルよりも五員環エーテルの方が OH 基のプロトン化が反応の初期でより容易に起こることが見出された。すなわち、五員環エーテルが主生成物となる一因は、五員環エーテル生成過程において、水素結合網を介した水と PTO の間のプロトン授受をしやすいことにあると推察される。

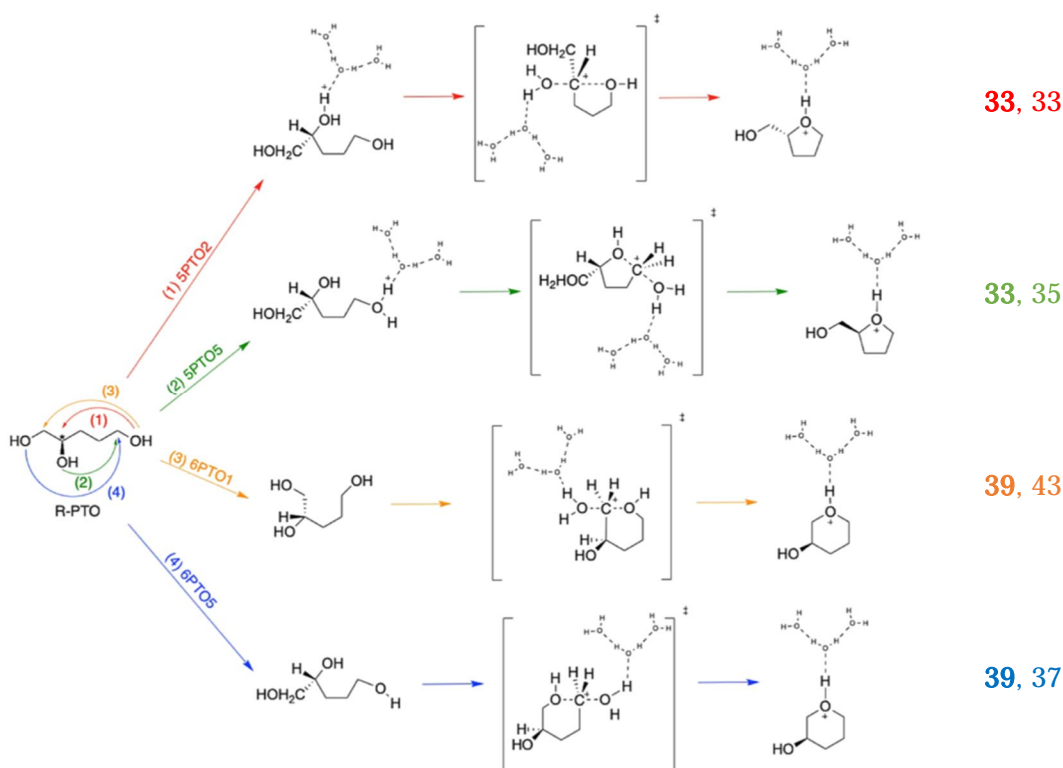


図4：R-PTO から R,S-TFTA、R-3HTHP へ至る4つの反応過程の様式。右の数字はDFT計算（太字）およびDFTB計算（細字）の自由エネルギー反応障壁の値（単位は kcal/mol）。

本研究を通じて得られた水溶液の第一原理分子動力学法に関する知見は、水の水素結合構造や水溶液の水和構造の研究のために活用された[6-9]。また、開発された汎用プログラム“PIMD ver 2.3”は系や現象に制限なく使えるため、分子動力学シミュレーションにおいて幅広い応用展開がなされている[10]。

[1] M. Shiga^{*}, M. E. Tuckerman^{*}, “Finding Free Energy Landmarks of Chemical Reactions”, J. Phys. Chem. Lett., 9, 6207–6214 (2018).

[2] Y. Kawashima^{*}, K. Ishimura, M. Shiga^{*}, “Ab initio quantum mechanics/molecular mechanics method with periodic boundaries employing Ewald summation technique to electron-charge interaction: Treatment of the surface-dipole term”, J. Chem. Phys. 150, 124103-1-14 (2019).

[3] M. Shiga, PIMD version 2.3. <https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/index.jp.html>. (日本語版) <https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/index.en.html> (英語版).

[4] S. Ruiz-Barragan, J. Ribas-Arino, M. Shiga^{*}, “The Reaction Mechanism of Polyalcohol Dehydration in Hot Pressurized Water”, Phys. Chem. Chem. Phys. 18, 32438-32447 (2016)

[5] Y.-L. Chang, T. Sasaki, J. Ribas, M. Machida, M. Shiga^{*}, “Understanding Competition of Polyalcohol Dehydration Reactions in Hot Water”, J. Phys. Chem. B, 123, 7, 1662-1671 (2019).

- [6] Y. Noguchi*, M. Hiyama, M. Shiga, O. Sugino, H. Akiyama, "Reverse Stability of Oxyluciferin Isomers in Aqueous Solutions", J. Phys. Chem. B, 120, 8776-8783 (2016).
- [7] M. Hiyama*, M. Shiga, N. Koga, O. Sugino, H. Akiyama, Y. Noguchi, "The effect of dynamical fluctuations of hydration structures on the absorption spectra of oxyluciferin anions in an aqueous solution", Phys. Chem. Chem. Phys., 19, 10028-10035 (2017).
- [8] M. Machida, K. Kato, M. Shiga*, "Nuclear quantum effects of light and heavy water studied by all-electron first principles path integral simulations", J. Chem. Phys. 148, 102324-1-11 (2018).
- [9] Y. Noguchi*, M. Hiyama, M. Shiga, H. Akiyama, O. Sugino, "Photoabsorption Spectra of Aqueous Oxyluciferin Anions Elucidated by Explicit Quantum Solvent", J. Chem. Theory Comput., 15, 5474-5482 (2019).
- [10] PIMD プログラムが使用された研究の論文リストはウェブサイトで公開され、常時アップデートされている。<https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/publications.jp.html>.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計16件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Lei Yan, Yoshiyuki Yamamoto, Motoyuki Shiga, Osamu Sugino	4. 巻 101
2. 論文標題 Nuclear quantum effect for hydrogen adsorption on Pt(111)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165414-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.165414	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 志賀基之	4. 巻 21
2. 論文標題 電子状態理論の初歩 XI	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 分子シミュレーション研究会会誌アンサンブル	6. 最初と最後の頁 277 ~ 282
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Yoshifumi Noguchi, Miyabi Hiyama, Motoyuki Shiga, Hidefumi Akiyama, Osamu Sugino	4. 巻 15
2. 論文標題 Photoabsorption Spectra of Aqueous Oxyluciferin Anions Elucidated by Explicit Quantum Solvent	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 5474 ~ 5482
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jctc.9b00392	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 Hajime Kimizuka, Shigenobu Ogata, Motoyuki Shiga	4. 巻 100
2. 論文標題 Unraveling anomalous isotope effect on hydrogen diffusivities in fcc metals from first principles including nuclear quantum effects	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 024104-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.024104	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 Yong Lik Chang, Takehiko Sasaki, Jordi Ribas-Arino, Masahiko Machida, Motoyuki Shiga	4. 巻 123
2. 論文標題 Understanding Competition of Polyalcohol Dehydration Reactions in Hot Water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 1662 ~ 1671
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpccb.8b11615	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 Motoyuki Shiga, Mark E Tuckerman	4. 巻 9
2. 論文標題 Finding Free-Energy Landmarks of Chemical Reactions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The journal of physical chemistry letters	6. 最初と最後の頁 6207-6214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.8b01958	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 Yukio Kawashima, Kazuya Ishimura, Motoyuki Shiga	4. 巻 150
2. 論文標題 Ab initio quantum mechanics/molecular mechanics method with periodic boundaries employing Ewald summation technique to electron-charge interaction: Treatment of the surface-dipole term	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 124103-1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5048451	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 Eiki Ozama, Sadia Adachi, Toshiyuki Takayanagi, Motoyuki Shiga	4. 巻 24
2. 論文標題 Quantum Simulation Verifies the Stability of an 18 Coordinated Actinium-Helium Complex	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemistry: A European Journal	6. 最初と最後の頁 12716-12721
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201802554	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 Yusuke Seki, Toshiyuki Takayanagi, Motoyuki Shiga	4. 巻 19
2. 論文標題 Photoexcited Ag ejection from a low-temperature He cluster: a simulation study by nonadiabatic Ehrenfest ring-polymer molecular dynamics	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 13798 ~ 13806
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cp00888k	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 Miyabi Hiya, Motoyuki Shiga, Nobuaki Koga, Osamu Sugino Osamu, Hidefumi Akiyama, Yoshifumi Noguchi	4. 巻 19
2. 論文標題 The effect of dynamical fluctuations of hydration structures on the absorption spectra of oxyluciferin anions in an aqueous solution	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 10028 ~ 10035
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cp01067b	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 志賀基之	4. 巻 72
2. 論文標題 マルチスケール法: 複雑分子系の計算科学	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 772 ~ 773
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Masahiko Machida, Kochiro Kato, Motoyuki Shiga	4. 巻 148
2. 論文標題 Nuclear quantum effects of light and heavy water studied by all-electron first principles path integral simulations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 102324 ~ 102324
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5000091	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 Hajime Kimizuka, Shigenobu Ogata, Motoyuki Shiga	4. 巻 97
2. 論文標題 Mechanism of fast lattice diffusion of hydrogen in palladium: Interplay of quantum fluctuations and lattice strain	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 014102-1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.014102	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 Sergi Ruiz-Barragan, Jordi Ribas-Arino, Motoyuki Shiga	4. 巻 18
2. 論文標題 The Reaction Mechanism of Polyalcohol Dehydration in Hot Pressurized Water	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 32438-32447
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C6CP05695D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Yoshifumi Noguchi, Miyabi Hiyama, Motoyuki Shiga, Osamu Sugino, Hidefumi Akiyama	4. 巻 120
2. 論文標題 Reverse Stability of Oxyluciferin Isomers in Aqueous Solutions	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 8776-8783
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b04963	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 Yusuke Minoshima, Yusuke Seki, Toshiyuki Takayanagi, Motoyuki Shiga	4. 巻 472
2. 論文標題 Effects of temperature and isotopic substitution on electron attachment dynamics of guanine-cytosine base pair: Ring-polymer and classical molecular dynamics simulations	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemphys.2016.02.019	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30件(うち招待講演 21件/うち国際学会 10件)

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 PIMD: A software for parallel molecular simulations
3. 学会等名 PIMD hands-on tutorial
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Nuclear Quantum Effects of Hydrogen in Materials
3. 学会等名 1st International Symposium Hydrogenomics combined with 14th International Symposium Hydrogen & Energy (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 水素系の新しい第一原理計算法の開発と応用
3. 学会等名 第2回ハイドロジェノミクス研究会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Ab initio Molecular Simulations of Hydrogen Bonded Systems
3. 学会等名 Seminar at Department of Chemistry, New York University (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Recent Advances in Quantum Simulations of Aqueous Solutions II
3. 学会等名 東京大学生産技術研究所セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Basics of biased sampling, umbrella sampling, WHAM, Bluemoon ensemble, quantum effects
3. 学会等名 Free Energy Calculations of Chemical and Biological Systems（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Introduction to path integral simulations
3. 学会等名 大阪大学大学院工学研究科精密科学・応用物理学専攻セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Recent Advances in Quantum Simulations of Aqueous Solutions
3. 学会等名 原子力機構先端基礎センター 基礎科学セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 分子シミュレーションにおけるレア・イベント解析手法
3. 学会等名 大阪大学大学院基礎工学研究科機能創成セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Finding Free Energy Landmarks of Reactions in Solutions
3. 学会等名 IQTC seminar, University of Barcelona（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 自由エネルギー面上の化学反応経路探索
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 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Locating Free Energy Landmarks of Chemical Reactions
3. 学会等名 3rd International Symposium on Research and Education of Computational Science（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 水素の量子効果を考慮した第一原理計算
3. 学会等名 第15回 水素量子アトムクス研究会 / 第1回ハイドロジェノミクス研究会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 自由エネルギー面上における停留点の探索法
3. 学会等名 第32回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Finding Free Energy Landmarks of Reactions in Solution
3. 学会等名 IQTC seminar, University of Barcelona (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 分子シミュレーションにおけるレア・イベント解析手法
3. 学会等名 大阪大学大学院基礎工学研究科機能創成セミナー (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Recent Advances in Quantum Simulations of Aqueous Solutions
3. 学会等名 原子力機構先端基礎セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Introduction to path integral simulations
3. 学会等名 大阪大学大学院工学研究科精密科学・応用物理学専攻セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Basics of biased sampling, umbrella sampling, WHAM, Bluemoon ensemble, quantum effects
3. 学会等名 Free Energy Calculations For Chemical And Biological Systems（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 並列分子シミュレーションコード PIMD について
3. 学会等名 第20回理論化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 QM/MM molecular dynamics of open boundary systems
3. 学会等名 北大理論化学セミナー
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Free Energy Landmark Search For Chemical Reactions
3. 学会等名 Recent Advances in Modelling Rare Events 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Ab initio simulations of hexanediol dehydration reaction in water
3. 学会等名 Indo-Japan Conference: New Insights into Multifunctional Catalysis for Biomass Transformations (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 溶液反応の計算法：ポリアルコール脱水反応を例として
3. 学会等名 岩手大学理工学部応用化学・生命理工学科セミナー (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 並列分子シミュレーションコード PIMD の開発と応用
3. 学会等名 NTChemワークショップ2018 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 A QM/MM method for open boundary systems II
3. 学会等名 Joint seminar at NYU Shanghai and China East Normal University (招待講演)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 A QM/MM method for open boundary systems I
3. 学会等名 International Conference on Molecular Simulation 2016 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 Exploration of rare events based on ab initio simulations
3. 学会等名 International Workshop on Frontiers in Molecular Biophysics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Motoyuki Shiga
2. 発表標題 A theoretical study of hexanediol dehydration reaction
3. 学会等名 32nd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 高温水における多価アルコール脱水反応に関する理論的研究
3. 学会等名 第19回理論化学討論会
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

並列分子シミュレーションコード PIMD のホームページ(日本語版) https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/index.jp.html 並列分子シミュレーションコード PIMD のホームページ(英語版) https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/index.en.html

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