

平成 21 年 3 月 31 日現在

研究種目：特定領域研究
研究期間：2006 ～ 2009
課題番号：18066009
研究課題名（和文） 実在系の分子理論
研究課題名（英文） Molecular Theory for Real Systems
研究代表者 榎 茂好 (SAKAKI SHIGEYOSHI)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：20094013

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：理論化学、電子状態理論、統計力学、ダイナミクス、分子動力学シミュレーション、実在系、量子化学、化学反応

1. 研究計画の概要

現代の化学の特徴として、周期律表の全ての元素の組み合わせによる多種多様な分子や物質を研究対象としていること、比較的小さい分子からナノスケールの分子まで研究対象に登場していることなどが上げられる。従って、多様な物質を対象とした現在の化学を更に発展させるには、微視的視点からの知見と考察、統一的な見方、一貫した基礎概念、基礎的法則からの理解が不可欠であり、理論化学・計算化学の重要性はこれまで以上に大きくなっている。しかし、現状の理論化学・計算化学が実験化学の真のパートナーとして力を発揮するには不十分な点が多い。本研究では、現在の理論化学に欠けている本質的な弱点を解決し、統合的な分子理論を確立すること、さらに、現実の実在系に適用し、微視的・量子化学的視点から本質を明らかにし、統一的な分子論的理解と理論先導的予測を実現しようとするものである。

具体的には、電子状態理論の高速化・高精度化、ダイナミクス理論の新展開、統計性の考慮、溶媒、置換基を含めた実在系の理論計算法の開発を含む統合的分子理論を構築し、複合複雑電子系の構造と反応制御、ナノスケール分子の電子状態と物性の評価と設計・制御、超分子、生体分子系の構造と反応過程の解明と理論予測、反応過程のダイナミクスの解明などを達成する。これらを総合し、電子状態理論と統計化学、双方の観点からアプローチする統合的分子理論の構築を行う。

2. 研究の進捗状況

総括班では、班員の研究の進捗状況を把握し、また、共同研究を促進させるための活動を積極的に進めてきた。この結果、特定領域全体での研究成果は順調に上がっており、多くの成果が期待できる。具体的には、遷移金属を含む複雑な分子の電子状態と結合性を解明し、大規模な実在系の高精度計算を可能とするアルゴリズムの開発、電子的効果の考慮を可能とする FOC-EP 法の開発、静的相関を高度に取り込む理論的方法の開発など枚挙に暇が無い。また、反応ダイナミクスでも新しい試みが提案され、従来にない大きな系の反応ダイナミクス研究が実行され、反応系の微視的理解を進めてきた。分子動力学シミュレーションでも溶液構造やタンパクの構造について新しい知見を次々と見出した。また、実験分野と理論化学分野との共同研究もいくつも開始され、化学全体への理論化学研究の波及を可能とした。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

項目 2 で述べたように達成状況は 80% に達し、残り 1 年間で、ほぼ 100%、当初の目標を達成可能と考えている。

4. 今後の研究の推進方策

もっとも重要な電子状態理論と統計力学の融合を今後 1 年間で達成する。そのため、共同研究を一層盛んにしたい。また、実験分野と理論分野の共同研究を進め、互いに知識

をぶつけあい、一層高いレベルでの理論化学の進展を達成したい。

5. 代表的な研究成果

(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 132 件)

- ① M. Ray, Y. Nakao, H. Sato, H. Sakaba, S. Sakaki, How to stabilize eta(3)-Silapropargyl/Alkynylsilyl Complex of [CpL2M](+) (L=CO, PMe3, or PF3 and M=W or Mo): Theoretical Prediction, *Organometallics*, 28 (1), 65-73, 2009, 査読有
- ② K. Iida, D. Yokogawa, H. Sato, S. Sakaki, A systematic understanding of orbital energy shift in polar solvent, *J. Chem. Phys.*, 130 (4), Article number:044107, 2009, 査読有
- ③ D. Yokogawa, H. Sato, T. Imai, S. Sakaki, A highly parallelizable integral equation theory for three dimensional solvent distribution function: Application to biomolecules, *J. Chem. Phys.*, 130 (6), Article Number:064111, 2009, 査読有
- ④ X. Gao, Z. Zhou, Y. Zhao, S. Nagase, S. B. Zhang, Z. Chen, Comparative Study of Carbon and BN Nanographenes: Ground Electronic States and Energy Gap Engineering, *J. Phys. Chem.*, 112, 12677 - 12682, 2008, 査読有
- ⑤ M. Katouda, S. Nagase, "Efficient Parallel Algorithm of Second-Order Møller Plesset Perturbation Theory with Resolution-Identity Approximation (RI-MP2)", *Int. J. Quant. Chem.*, 109, 2121-2130, 2009, 査読有
- ⑥ Y. Ohtsuka, S. Nagase, "Projector Monte Carlo Method Based on Configuration State Functions. Test Applications to the H₄ System and Dissociation to LiH", *Chem. Phys. Lett.*, 463, 431-434, 2008, 査読有
- ⑦ Y. Takii, K. Koga, H. Tanaka, A plastic phase of water from computer simulation, *J. Chem. Phys.*, 128, 204501 - 204508, 2008, 査読有
- ⑧ D. Takaiwa, I. Hatano, K. Koga, H. Tanaka, "Phase diagram of water in carbon nanotubes", *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 105, 2008, 査読有
- ⑨ Y. Nishihara, S. Hayashi, S. Kato, A search for ligand diffusion pathway in myoglobin using a metadynamics

simulation, *J. Chem. Phys.*, 464, 220 - 225, 2008, 査読有

- ⑩ T. Yonehara, K. Takatsuka, Phase-space averaging and natural branching of nuclear paths for nonadiabatic electron wavepacket dynamics, *J. Chem. Phys.*, 129, 134109 - 134122, 2008, 査読有
- ⑪ Y. W. Koh, K. Takatsuka, Expanding memory space and reducing spurious states in neural networks by introducing coherent and collective firing, *Neural Computation*, 21, 1-14, 2008, 査読有
- ⑫ M. Fujii, K. Takatsuka, Nonempirical statistical theory for molecular evaporation from nonrigid clusters, *J. Chem. Phys.*, 128, 114318-114333, 2008, 査読有

[学会発表] (計 282 件)

- ① 永瀬茂, The important Interplay between Theoretical Calculations and Experiment, WATOC2008, 2008年9月16日, Sydney, Australia
- ② 田中秀樹, Thermodynamic stability of hydrogen clathrate hydrates, American Chemical Society Annual Meeting, 2009年3月24日, Salt lake City, USA
- ③ 高塚和夫, Attosecond nonadiabatic electron dynamics with and without intense optical field, American Chemical Society Annual Meeting, 2009年3月25日, Salt Lake City, USA
- ④ 榊茂好, Geometry and Bonding Nature of Transition Metal Complexes: Theoretical Study with Frontier-Orbital-Consistent Effective Potentials (FOC-EP), WATOC2008, 2008年9月16日, Sydney, Australia

[図書] (計 4 件)

- ① Z. Slanina, F. Uhlik, S. Lee, S. Nagase, V. A. Basiuk and S. Irle, Eds., Research Signpost, Trivandrum India, Fullerene Structures: Computational Concepts of Their Stability. In DFT Calculations on Fullerenes and Carbon Nano tubes, 2008年, 29
- ② 高塚和夫, 東京大学出版会, 化学結合論入門—量子論の基礎から学ぶ, 2007, 231頁