

令和 6 年 6 月 22 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20H00373

研究課題名(和文) 超ボロン・オッペンハイマー化学における新化学結合論とその複雑分子系への展開

研究課題名(英文) Theory of chemical binding in beyond-Born-Oppenheimer chemistry and its applications to complex molecular systems

研究代表者

高塚 和夫 (Takatsuka, Kazuo)

京都大学・福井謙一記念研究センター・研究員

研究者番号：70154797

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,700,000円

研究成果の概要(和文)：「非断熱電子動力学理論」で支配される分子領域の基礎理論を深化し、原子核と同期して電子波動関数が実時間変動する様子を直接観る方法論を開拓し、新たな結合論、反応論、電子状態論に関する化学概念の発展と応用において多くの高い成果を得た。特に、原子クラスターの高励起状態における多次元・多状態・超高擬縮重非断熱電子動力学という未踏の領域を開拓し、全く新しい動的電子状態理論を展開した。そのための解析手法としていくつかの重要な理論的・方法論的な副産物を得た。例えば、複雑な基底・励起・波束状態の電子波動関数から、内部の不変エネルギー構造を取り出すためのenergy natural orbitalsである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、分子の電子状態理論(いわゆる量子化学)の新しい領域を開拓し、将来発展するであろう非断熱電子動力学理論の礎を構築するものである。特に、原子核と電子の多次元多状態非断相互作用、アト秒レベルの実時間電子流・電子エネルギー流・スピン流の実時間追跡、などを解析可能とし、従来の理論的枠組みの中でも有用な手法として応用可能な高励起状態化学の解析手法、などを提案している。

研究成果の概要(英文)：We have studied a new class of chemical dynamics to be found in molecular electronic excited states embedded in densely quasi-degenerate state manifolds, in which a huge fluctuation is induced due to persisting multidimensional nonadiabatic transitions among the states. The relevant phenomena can result in intramolecular energy redistribution, which we call intramolecular nonadiabatic electronic-energy redistribution. Despite the huge fluctuation, strong chemical bonding coexists to assist the molecules to survive. Such complex electronic excited states are found in, for example, boron and carbon clusters. Those excited states have been analyzed with our developed energy natural orbitals (ENO). It turns out that ENO energy spectra are composed of four robust layers of different physical natures. In the layer structure, the physical origin of the robust chemical bonds has been identified. We also have found novel electronic-state quantum chaos behind the fluctuation.

研究分野：理論化学動力学

キーワード：実時間電子ダイナミクス 電子・スピン流化学 非断熱遷移動力学 励起状態動力学 超高速化学反応 化学結合論 化学反応理論

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

ボルン・オッペンハイマー (BO) 近似 (1927 年) に基づく静的電子状態理論 (いわゆる「量子化学」) は、遷移状態等の電子エネルギーや構造の定量的計算を通して、化学現象の解釈に資するという極めて大きな役割を果たし続けている。しかし、その電子波動関数には時間変数が含まれておらず、あくまでも「静的電子描像」を与えるのみである。しかし、多くの重要な化学反応では、原子核の運動と電子の運動が強く運動学的に (キネマティックに) 相関することにより、原子核は電子雲からの摩擦に類似した量子力学的な力を受け、電子はその反跳により攪乱され、電子状態のコヒーレントな量子混合を受けることがある。更に進んで、分子の励起電子状態が密に擬縮重しているときには、それらは強い原子核からのキネマティック相互作用 (いわゆる非断熱相互作用) により、激しく、しかも頻繁に状態混合を起こし、ボルン・オッペンハイマー領域の化学で最も重要な概念の一つである単一断熱電子状態が作るポテンシャルエネルギー曲面が意味を失ってしまう。

このような状態でも、結合解離やイオン化をしないで、いわゆる「動的な化学結合」に支えられた励起状態群が存在することが我々の研究で分かってきた。このような状態を、以下では「複雑電子励起状態」と呼ぶ。しかし、このような動的な化学結合がなぜ存在し得るのかを理解するには、Pauling 等から始まる従来の化学結合論を超えた、全く新しい考えに基づく新世代の化学結合論の概念が必要である。さらには、このような動的な電子状態がどのような化学反応を起こすか? また、極めて特異な反応を起こすだけでなく、新規な反応場を作り出すことも分かっている。このように、超ボルン・オッペンハイマー領域では、新たな化学結合論と反応論を必要とする状況に至っていた。

(なお、本研究の「電子動力学理論の発展」に至るまでの長い時間スパンの理論化学的な発展段階に関しては、次の総説を見ていただきたい。

“Electron dynamics in molecular elementary processes and chemical reactions” Kazuo Takatsuka, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **94**, 1421–1477 (2021). (doi:10.1246/bcsj.20200388)

2. 研究の目的

本申請では、科研費基盤研究 (S) 「電荷移動、プロトン移動、電子伝達、巨大電子状態揺らぎの非断熱化学」 (2015–2019 年度、代表: 高塚和夫) で達成した豊かな動的電子化学の研究をさらに進めて、今後の動的電子化学反応学の核心となる、どうしても解明したい特徴的な化学結合と化学反応の本質の解明と応用を目的とした。具体的には、

項目 1 電子状態がびっしり詰まった擬縮重系の化学結合とその反応

- (1) 励起状態における動的化学結合論
- (2) ポテンシャル面が意味をなさない系の化学反応
- (3) プロトンと電子波束の同時移行 (Coupled proton and electron-wavepacket transfer (CPEWT) およびその逆過程 (inverse CPEWT) が複雑に絡み合う化学反応

項目 2 複雑分子場中での非断熱電子動力学および励起状態化学のための方法論の開発と応用

3. 研究の方法

課題代表者の高塚と共同研究者は、非断熱電子動力学理論の基礎的枠組みを作り、BO 近似のパラダイムを超えた多様な状況にある化学現象と化学反応のための基礎方程式を定式化し、それによる新たな応用領域を創り出し発展させてきた。これらの方法論では、通常の量子化学とは異なり、電子波動関数は必然的に複素関数となり、分子内電子流の実時間ダイナミクスを直接観ることができる。また、非断熱遷移に伴って発生する、波動関数の分岐 (分波) や、原子核の電子状態への同位体効果や、非断熱相互作用の本質的な多次元性も直接反映する。電子も原子核の運動も、同時に実時間で追跡するために、電子状態理論と反応動力学が統一され、圧倒的な化

学的解析力を持っている。(具体的な数学的方法論を含む総説として T. Yonehara, K. Hanasaki, K. Takatsuka, *Chemical Reviews*, **112**, 499-542 (2012); “Electron dynamics in molecular elementary processes and chemical reactions” Kazuo Takatsuka, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **94**, 1421-1477 (2021) を参照されたい。) また、基本的な手法として以上のような独自に開発してきたものの他に、本研究期間中に、複雑電子励起状態を解析する上で決定的な役割を發揮する新たな方法論を開拓した。

4. 研究成果

以下、主要なものを抜粋して報告する。

(1) 電子とプロトン同時移行の非断熱電子動力学

本項目は、非断熱電子動力学研究の典型的な重要例であるが、前課題科研費基盤研究 (S) 「電荷移動、プロトン移動、電子伝達、巨大電子状態揺らぎの非断熱化学」(2015-2019 年度、代表：高塚和夫) から一部持ち越したので、ここで、上記基盤 (S) の研究成果報告書と重なる部分はあるが、成果として得られた項目の総括をしておきたい。

① 電子励起状態におけるプロトンと電子の同時移行の非断熱電子動力学機構と水素原子移行反応との本質的差異の発見。

② Mn クラスターに共存する Ca 原子の「電荷再結合反応を抑制する効果」を発見。

③ 電荷分離したプロトンと電子を個別に輸送するための分子構造と電子状態の検討。

④ 電荷分離した電子が一方向的に輸送されるための非断熱電子動力学機構の発見。

⑤ 多核Mnクラスターにおける、個別のMn原子の役割の明確化。(プロトンと電子の射出と供給) (“Binuclear Mn oxo complex as a self-contained photocatalyst in water-splitting cycle: Role of additional Mn oxides as a buffer of electrons and protons” Kentaro Yamamoto and Kazuo Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **152**, 024115 (21 pages) (2020). DOI: 10.1063/1.5139065)

⑥ 電子基底状態における電荷分離の発生機構の発見。(chemi-charge-separation の発見)

⑦ Mn₄CaO₅ 触媒における、電子とプロトンの補給と再充填の仕組みおよび輸送経路の発見。

⑧ PSII (葉緑素内光学系 II) 内の Mn₄CaO₅ の 4 光子過程に対応する 4 個の個別の非断熱電子動力学過程の定性的解明 (下図 1 参照) (“Charge separation and successive reconfigurations of electrons and protons driving water-splitting catalytic cycle with tetranuclear Mn oxo complex. On the mechanism of water splitting in PSII.” Kentaro Yamamoto and Kazuo Takatsuka, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **22**, 7912-7934 (2020) DOI: 10.1039/d0cp00443j)

(項目 1-4、6、7 については、Researchmap (高塚和夫) 掲出の論文を参照されたい。)

以上、定量的な検証の必要性は残っているが、植物内で起きている水分子の分解反応



の非断熱電子動力学機構は定性的に解明できたものと理解している。

(2) Energy Natural Orbitals の発見と応用

密集した高擬縮重電子励起状態を持つ多原子分子 (例えばボロン原子クラスターや炭素原子クラスター) では、仮に、一つの断熱状態に励起させることが可能だとしても、直ちに分子内の広範囲で頻繁な非断熱遷移が繰り返し起き続け、瞬時にして電子混合状態 (波束状態) になる。しかも、高い励起状態にあるにも関わらず、分子変形はするものの、結合解離を起こさないで存続する。これが「複雑電子励起状態」である。例として図 2 を見ていただきたい。300 番目の断熱電子状態に用意された状態が、ほぼ一瞬にして電子状態間の激しい混合を起こし、状態空間で「拡散」のように振る舞うことが分かる。この状態は激しい状態揺らぎを持つが、一方で安定した結合力を保持しているように見える。このような状態では、断熱電子状態や断熱ポテンシャルエネルギー曲面という概念が失われる。また、古典的非断熱動力学の基本的な一次元理論である Landau-Zener 模型や便宜的な Surface Hopping 法が無効であることは明らかである。この複雑電子励起状態は、分子電子動力学の中では、考えられる最も困難で挑戦的な、実験的にも未踏の現

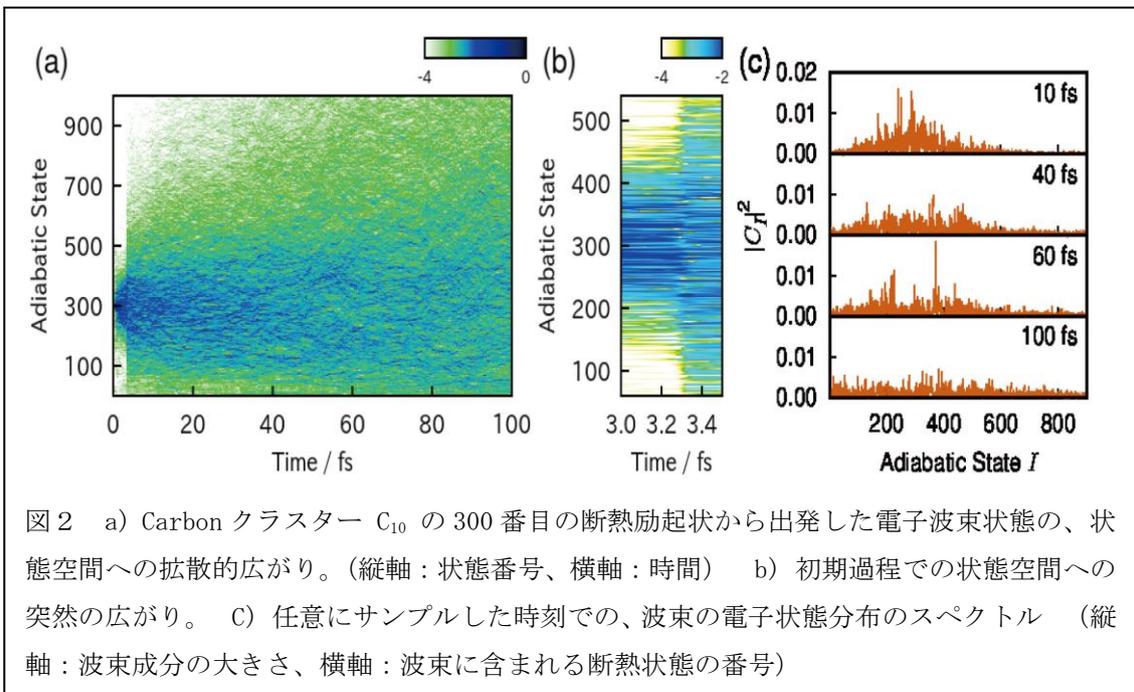


図2 a) Carbon クラスタ C₁₀ の 300 番目の断熱励起状態から出発した電子波束状態の、状態空間への拡散的広がり。(縦軸：状態番号、横軸：時間) b) 初期過程での状態空間への突然の広がり。 c) 任意にサンプルした時刻での、波束の電子状態分布のスペクトル (縦軸：波束成分の大きさ、横軸：波束に含まれる断熱状態の番号)

象である。

長年の困難な解析を続けたのち、本申請課題において、Energy Natural Orbital (ENO) と名付けた一電子軌道表現が決定的に有効であることを見出した。まず分子内の時空間上での電子エネルギー密度演算子 $\hat{H}^{(1)}$ を定義する。さらにその一電子固有関数を取り (式 (2))、ENO と名付ける。 (“Energy Natural Orbitals”, Kazuo Takatsuka and Yasuki Arasaki, J. Chem. Phys. **154**, 094103 (2021). (14 pages) DOI: 10.1063/5.0034810) 各 ENO は固有のエネルギーをもち、その総和は全電子エネルギーに一致する。しかも、状態に寄与する ENO の数は少数に限定されており、簡便な解析を可能にする。一例として、図 2 の複雑電子励起状態から ENO を求めると、図 3 のような見事な 4 層構造が現れた。状態空間の拡散 (図 2) とは見違えるようである。

(3) 複雑電子励起状態の解析

3-1 基本的電子エネルギー構造

ENO を複雑電子励起状態の解析手段として使い、従来、「超複雑性」の故に現象論的な解析にとどまり、理論的な理解が十分及ばなかった本質に光を当てることができた。

図 3 に即していえば、4 つの階層 (layer と呼ぶ) に明瞭に階層化され、それぞれ、低いエネルギーから Core layer, Valence layer, Half-occupied layer, Flowing layer と呼ぶ。これらから、状態の特徴抽出を行った。

- ① Core layer は内殻電子状態に対応する。驚くべきことに、分子軌道論の予測とは全く異なり、イオン結合的な役割を果たすことで、クラスタの凝集力に 30–40% に及ぶ多大な寄与をしていることが分かった。
- ② Valence layer はいわゆる原子価領域に対応するが、複雑電子励起状態の場合、共有結合が分子内全てに広がり、「energy corridor」と呼ぶ電子エネルギーの広がりによって結合と分子の形の形成に最も重要な役割を果たしていることが明らかになった。
- ③ Half-occupied layer はいわゆるラジカル電子領域で、酸化還元反応やラジカル反応の際重

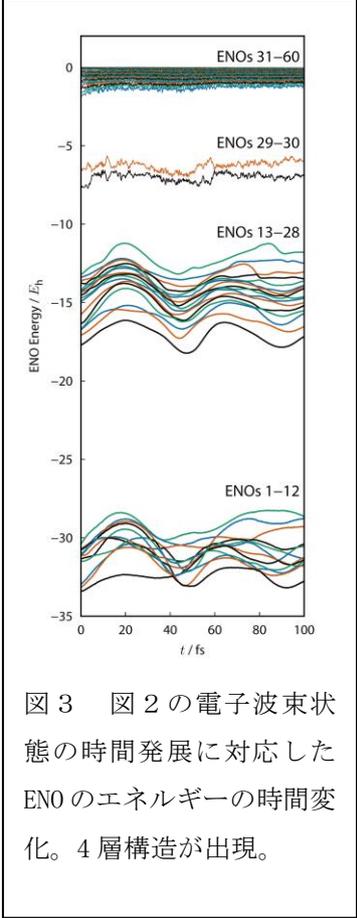


図3 図 2 の電子波束状態の時間発展に対応した ENO のエネルギーの時間変化。4 層構造が出現。

要な役割を果たす。

④ Flowing layer では、広い空間に電子がほぼ 2 個入っており、分子内で自発的な電子乱流・電子エネルギー乱流を起こしている。エネルギーがゼロに近い高領域であり、外場からの応答を最初に担当する layer である。 (“Energy natural orbital characterization of nonadiabatic electron wavepackets in the densely quasi-degenerate electronic state manifold”, Yasuki Arasaki and Kazuo Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **158**, 114102 (2023) (21pages) (open), <https://doi.org/10.1063/5.0139288>)

これまで、古典的な Mulliken の電荷密度や Natural Orbital 及びそれから派生する様々な電子状態解析手法を用いても、図 2 の背後にある化学結合を明瞭にとらえることができなかったが、ENO を用いることで、上のような明瞭な化学結合の起源が明らかになった。

3-2 複雑さの起源の解明

ENO を使って、複雑電子励起状態の背後に存在する大きな電子状態の揺らぎや、それにも関わらず分子を支える結合の存在の様態を明らかにしたが、一方で、図 2 で示した量子拡散状態の背後には、「量子カオス」が存在し、決定論的複雑性を演出していることが明らかになった。量子カオス理論には 40–50 年の歴史があるが、図 2 の背後にある量子カオスは、新たな機構による分子特有の普遍的な新種である。本研究では、量子カオスとしての現象論、量子カオスの化学現象における物理的帰結、化学的効果の解明、カオス発生の一般的な機構の解明を行った。

(“Electronic-state chaos, intramolecular electronic energy redistribution (INER), and chemical bonding in persisting multidimensional nonadiabatic systems”, Kazuo Takatsuka and Yasuki Arasaki, *J. Chem. Phys.* **159**, 074110 (2023) doi: 10.1063/5.0159178 (21pages))

(4) 電子スピン流と化学反応の伝送力学的機構

ラジカル反応などにおいて、スピン状態の組み換えと、それに伴う電子流 (electron flux) とスピン流 (spin flux) の関係を解析し、新たな化学反応論の重要な基礎を築いた。 (“Spin current in the early stage of radical reactions and its mechanisms”, Kota Hanasaki and Kazuo Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **159**, 144111 (2023) (22 pages), <https://doi.org/10.1063/5.0169281>)

“Spin current in chemical reactions”, Kota Hanasaki and Kazuo Takatsuka, *Chem Phys. Lett.* **793**, 139462 (2022) (7 pages), <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2022.139462>)

(5) 分子の量子論の基礎について

筆者は、分子科学に関わって、量子力学にどのような表現が可能であるか、また、それらの基礎的性質や解釈に多大な関心を抱いて研究を続けている。本課題研究期間内には以下の論文を出版した。

① 時間依存量子力学における新たな変分原理を提案した。

“Maupertuis-Hamilton least action principle in the space of variational parameters for Schrödinger dynamics; A dual time-dependent variational principle” Kazuo Takatsuka, *J. Phys. Comm.* **4**, 035007 (16 pages) (2020). DOI: 10.1088/2399-6538/ab7b34

② 分子における、全電子・原子核の量子波動関数を、上の変分原理に従って、時間発展させるアルゴリズムを提案した。

“Time-dependent variational dynamics for nonadiabatically coupled nuclear and electronic quantum wavepackets in molecules”, Kazuo Takatsuka, *Eur. Phys. J. D* **75**, 252 (2021). (22 pages) (open) DOI: 10.1140/epjd/s10053-021-00263-9

③ 分子で多用される Gauss 関数をベースとする半古典力学的時間発展の限界と、その拡張を一般論として展開した。半古典力学から全量子論に至る道と、その解釈を議論した。

“Schrödinger dynamics in length-scale hierarchy: from spatial rescaling to Huygens-like proliferation of Gaussian wavepackets”, Kazuo Takatsuka *J. Phys. A: Math. Theor.* **56** (2023) 445302 (22 pages) <https://doi.org/10.1088/1751-8121/acfe63>)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 13件）

1. 著者名 Takatsuka Kazuo	4. 巻 25
2. 論文標題 Quantum Chaos in the Dynamics of Molecules	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Entropy	6. 最初と最後の頁 63
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/e25010063	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 Takatsuka Kazuo, Arasaki Yasuki	4. 巻 159
2. 論文標題 Electronic-state chaos, intramolecular electronic energy redistribution, and chemical bonding in persisting multidimensional nonadiabatic systems	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 74110
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0159178	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 Takatsuka Kazuo	4. 巻 56
2. 論文標題 Schrödinger dynamics in length-scale hierarchy: from spatial rescaling to Huygens-like proliferation of Gaussian wavepackets	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical	6. 最初と最後の頁 445302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1751-8121/acfe63	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 Takatsuka Kazuo	4. 巻 160
2. 論文標題 Geometrical decomposition of nonadiabatic interactions to collective coordinates in many-dimensional and many-state mixed fast/slow dynamics	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 44112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0186816	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 Arasaki Yasuki、Takatsuka Kazuo	4. 巻 14
2. 論文標題 Sonification of molecular electronic energy density and its dynamics	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 9099 ~ 9108
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d4ra00999a	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 Hanasaki Kota、Takatsuka Kazuo	4. 巻 793
2. 論文標題 Spin current in chemical reactions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 139462 ~ 139462
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2022.139462	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 Arasaki Yasuki、Takatsuka Kazuo	4. 巻 156
2. 論文標題 Nature of chemical bond and potential barrier in an invariant energy-orbital picture	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 234102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0088340	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 Takatsuka Kazuo、Arasaki Yasuki	4. 巻 157
2. 論文標題 Real-time electronic energy current and quantum energy flux in molecules	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 244108
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0131200	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 Arasaki Yasuki、Takatsuka Kazuo	4. 巻 158
2. 論文標題 Energy natural orbital characterization of nonadiabatic electron wavepackets in the densely quasi-degenerate electronic state manifold	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 114102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0139288	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 Hanasaki Kota、Takatsuka Kazuo	4. 巻 159
2. 論文標題 Spin current in the early stage of radical reactions and its mechanisms	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 144111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0169281	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 Kazuo Takatsuka	4. 巻 94
2. 論文標題 Electron dynamics in molecular elementary processes and chemical reactions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn	6. 最初と最後の頁 1421-1477
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200388	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 Kazuo Takatsuka and Yasuki Arasaki	4. 巻 155
2. 論文標題 An orbital picture extracted from correlated electronic wavefunctions for symmetry-forbidden and nonadiabatic chemical reactions: 70 years of Fukui frontier orbital theory and beyond.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 064104 (18 頁)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0059370	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 Kazuo Takatsuka	4. 巻 75
2. 論文標題 Time-dependent variational dynamics for nonadiabatically coupled nuclear and electronic quantum wavepackets in molecules	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Eur. Phys. J. D	6. 最初と最後の頁 252 (22 頁)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1140/epjd/s10053-021-00263-9	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 Y. Ohnishi, K Yamamoto, and K. Takatsuka	4. 巻 27
2. 論文標題 Suppression of charge recombination by auxiliary atoms in photoinduced charge separation dynamics with Mn oxides: A theoretical study	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 755 (18 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/molecules27030755	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 Kota Hanasaki and Kazuo Takatsuka	4. 巻 793
2. 論文標題 Spin current in chemical reactions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chem Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 139462 (7 頁)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2022.139462	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 Kazuo Takatsuka and Yasuki Arasaki	4. 巻 154
2. 論文標題 Energy Natural Orbitals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 94103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0034810	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 Kazuo Takatsuka	4. 巻 -
2. 論文標題 Electron dynamics in molecular elementary processes and chemical reactions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 BCSJ	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200388	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 Kota Hanasaki and Kazuo Takatsuka	4. 巻 -
2. 論文標題 On the molecular electronic flux: Roles of nonadiabaticity and violation of conservation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0049821	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 -

[学会発表] 計13件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 Nature of Chemical Bonds in Excited States
3. 学会等名 APATCC-10 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 Persisting multiple multi-dimensional nonadiabatic interactions in densely quasi-degenerate excited states
3. 学会等名 TACC2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 花崎 浩太、高塚 和夫
2. 発表標題 ラジカル反応における電子ダイナミクスと スピンフラックス
3. 学会等名 理論化学討論会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高塚和夫、新崎康樹
2. 発表標題 励起状態の化学結合論
3. 学会等名 理論化学討論会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高塚和夫、新崎康樹
2. 発表標題 励起状態ボロンクラスターの巨大電子揺らぎと化学結合
3. 学会等名 分子科学討論会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 An invariant energy-orbital theory for the nature of chemical bonds and transition states
3. 学会等名 Theoretical Chemistry Meeting: Structure and Dynamics (TCMSD-2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高塚和夫, 新崎康樹
2. 発表標題 フロンティア軌道理論の70年: 電子相関と非断熱相互作用の下の反応論へ
3. 学会等名 理論化学討論会 (2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 花崎 浩太、高塚 和夫
2. 発表標題 電子フラックスと非断熱電子動力学
3. 学会等名 分子科学討論会 (2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 From energy-domain to time-domain in quantum chemistry: Nonadiabatic electron dynamics
3. 学会等名 Fall 2021National ACS meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fall 2021National ACS meeting (August 22-26, 2021) Symposium "Prominent ideas in quantum chemistry", online Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 Nonadiabatic dynamics and quantum chemistry
3. 学会等名 Theoretical Chemistry Symposium, India (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazuo Takatsuka
2. 発表標題 Real-time electron dynamics in molecular charge separations
3. 学会等名 The 58 Annual Convention of Chemists (Indian Chemical Society) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高塚和夫・新崎康樹
2. 発表標題 フロンティア軌道理論の70年： 電子相関と非断熱相互作用の下の反応論へ
3. 学会等名 理論化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高塚和夫・新崎康樹
2. 発表標題 フロンティア軌道理論の70年： 電子相関と非断熱相互作用の下の反応論へ
3. 学会等名 理論化学討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

高塚研究室 https://mns2.fukui.kyoto-u.ac.jp/

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------