

6-2 理論・計算分子科学研究領域

理論分子科学第一研究部門

永 瀬 茂 (教授) (2001 年 4 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：理論化学、計算化学

A-2) 研究課題：

- a) 分子のサイズと形状を利用した分子設計と反応
- b) 元素の特性を利用した分子設計と反応
- c) ナノサイズ分子の分子理論と量子化学計算

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) サイズの大きい分子が与える外部空間および内部空間は新しい機能発現として有用である。このために、金属内包フラーレンの $\text{La}_2@C_{80}$ のシリル化による内包金属の二次元ホッピング運動、 Sc_2C_2 を内包した C_{80} フラーレンの新規な構造と化学修飾、一次元に並んだ K_nC_{60} を内包したカーボンナノチューブの構造と電子特性、ナフタレンなどの芳香族化合物のカーボンナノチューブ表面への吸着の選択性へのホールドーピング効果、 ZnO ナノチューブの構造と安定性、 AlN ナノワイヤーとカーボンナノチューブあるいは BN ナノチューブからなるナノケーブルの構造と電子特性、外部修飾による金属性カーボンナノチューブと半導体カーボンナノチューブの分離等を理論計算で明らかにして実験と共同して解明した。金属内包フラーレンの化学修飾と機能化の一連の実験との共同研究の成果は、*Chem. Commun.* の表紙や日経サイエンスの記事としても紹介された。
- b) 高周期元素は新しい結合と多種多様な機能電子系の宝庫である。このために、典型元素化学で話題のケイ素 - ケイ素三重結合化合物の構造と特異な反応、三重結合に匹敵するほど異常に短いガリウム - ガリウム距離をもつ化合物の構造、かさ高い置換基に立体保護されたスズおよび鉛の多重結合化合物と単結合化合物の結晶中と溶液中の構造、炭素置換基に囲まれたスズの超原子価化合物、 $(\text{ZnO})_n$ クラスターの構造と成長プロセス、ルミフラビンの酸化状態と還元状態の電子スペクトル等を理論と計算あるいは実験と共同して明らかにした。
- c) ナノ分子系で主題となる超分子、ゲスト - ホスト相互作用、分子認識、自己集合、生理活性などで本質的な役割をする非共有結合相互作用を上手く取り扱えるように MP2 (second-order Møller Plesset perturbation) 法の並列高速化を昨年に引き続き行い、分子の対称性によるスピードアップも整備した。また、 SCS (spin-component-scaled) MP2 法のエネルギー微分計算の並列高速化により、非共有結合相互作用を精度高く取り込んでナノ分子の構造決定および反応経路や遷移構造が計算できるようにした。周期系のバンド計算は、計算コストが低いのとプログラムが容易なのでほとんど例外なく密度汎関数法によっているのが現状であるが、ナノ系で重要な非共有結合相互作用を取り扱うことができない。このために、 MP2 法による周期境界条件計算の高速並列化のプログラムの作成に着手した。また、基底状態および励起状態の高精度なエネルギー計算を可能にするために、configuration state function (CSF) を用いたプロジェクトモンテカルロ (CSF-PMC) 法と名付ける理論的スキームをほぼ完成して、この方法の有効性を簡単な H_4 系や LiH の解離反応のテスト計算で確認した。

B-1) 学術論文

- Z. SLANINA and S. NAGASE**, “A Computational Characterization of $N_2@C_{60}$,” *Mol. Phys.* **104**, 3167–3171 (2006).
- W. SONG, J. LU, Z. GAO, M. NI, L. GUAN, Z. SHI, Z. GU, S. NAGASE, D. YU, H. YE and X. ZHANG**, “Structural and Electronic Properties of One Dimensional K_xC_{60} Crystal Encapsulated in Carbon Nanotube,” *Int. J. Mod. Phys. B* **21**, 1705–1714 (2007).
- Z. SLANINA, S. -L. LEE, F. UHLIK, L. ADAMOWICZ and S. NAGASE**, “Computing Relative Stabilities of Metallofullerenes by Gibbs Energy Treatments,” *Theor. Chem. Acc.* **117**, 315–322 (2007).
- N. TAKAGI and S. NAGASE**, “Effects of Bulky Substituent Groups on the Si–Si Triple Bonding in $RSi\equiv SiR$ and the Short Ga–Ga Distance in $Na_2[RGaGaR]$. A Theoretical Study,” *J. Organomet. Chem.* (a special issue) **692**, 217–224 (2007).
- Y. -K. CHOE, S. NAGASE and K. NISHIMOTO**, “Theoretical Study of the Electronic Spectra of Oxidized and Reduced States of Lumiflavin and Its Derivative,” *J. Comput. Chem.* **28**, 727–739 (2007).
- N. TAKAGI and S. NAGASE**, “Tin Analogues of Alkynes. Multiply Bonded Structures vs Singly Bonded Structures,” *Organometallics* **26**, 469–471 (2007).
- B. WANG, S. NAGASE, J. ZHAO and G. WANG**, “Structural Growth Sequences and Electronic Properties of Zinc Oxide Clusters $(ZnO)_n$ ($n = 2-18$),” *J. Phys. Chem. C* **111**, 4956–4963 (2007).
- D. G. FEDOROV, K. ISHIMURA, T. ISHIDA, K. KITaura, P. PULAY and S. NAGASE**, “Accuracy of the Three-Body Fragment Molecular Orbital Method Applied to Møller-Plesset Perturbation Theory,” *J. Comput. Chem.* **28**, 1467–1484 (2007).
- Z. SLANINA, F. UHLIK and S. NAGASE**, “Computational Evaluation of the Relative Production Yields in the $X@C_{74}$ Series ($X = Ca, Sr, \text{ and } Ba$),” *Chem. Phys. Lett.* **440**, 259–262 (2007).
- F. UHLIK, Z. SLANINA and S. NAGASE**, “ $Mg@C_{74}$ Isomers: Calculated Relative Concentrations and Comparison with $Ca@C_{74}$,” *Phys. Status Solidi A* **204**, 1905–1910 (2007).
- Z. SLANINA, F. UHLIK, S. LEE, L. ADAMOWICZ and S. NAGASE**, “Calculations on Endohedral C-74 Complexes,” *J. Nanosci. Nanotechnol.* **7**, 1339–1345 (2007).
- Z. SLANINA, F. UHLIK, X. ZHAO, L. ADAMOWICZ and S. NAGASE**, “Relative Stabilities of C-74 Isomers,” *Fullerenes, Nanotubes, Carbon Nanostruct.* **15**, 195–205 (2007).
- R. KINJO, M. ICHINOHE, A. SEKIGUCHI, N. TAKAGI, M. SUMIMOTO and S. NAGASE**, “Reactivity of a Disilyne $RSi\equiv SiR$ ($R = Si^iPr[CH(SiMe_3)_2]_2$) toward π -Bonds: Stereospecific Addition and a New Route to an Isolable 1,2-Disilabenzene,” *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 7766–7767 (2007).
- K. ISHIMURA, P. PULAY and S. NAGASE**, “New Parallel Algorithm of MP2 Energy Gradient Calculations,” *J. Comput. Chem.* **28**, 2034–2042 (2007).
- T. WAKAHARA, M. YAMADA, S. TAKAHASHI, T. NAKAHODO, T. TSUCHIYA, Y. MAEDA, T. AKASAKA, M. KAKO, K. YOZA, E. HORN, N. MIZOROGI and S. NAGASE**, “Two-Dimensional Hopping Motion of Encapsulated La Atoms in Silylated $La_2@C_{80}$,” *Chem. Commun.* 2680–2682 (2007).
- Y. IIDUKA, T. WAKAHARA, K. NAKAJIMA, T. NAKAHODO, T. TSUCHIYA, Y. MAEDA, T. AKASAKA, K. YOZA, M. T. H. LIU, N. MIZOROGI and S. NAGASE**, “Experimental and Theoretical Studies of the Scandium Carbide Endohedral Metallofullerene $Sc_2C_2@C_{82}$ and Its Carbene Derivative,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **46**, 5562–5564 (2007).

N. TAKAGI and S. NAGASE, "Do Lead Analogues of Alkynes Take a Multiply Bonded Structure?" *Organometallics* **26**, 3627–3629 (2007).

Z. SLANINA, F. UHLIK, S. -L. LEE, L. ADAMOWICZ and S. NAGASE, "Computed Structure and Relative Stabilities of Be@C₇₄," *Int. J. Quantum Chem.* **107**, 2494–2498 (2007).

D. WANG, J. LU, L. LAI, M. NI, W. N. MEI, G. LI, S. NAGASE, Y. MAEDA, T. AKASAKA, Z. GAO and Y. ZHOU, "Effects of Hole Doping on Selectivity of Naphthalene towards Single-Wall Carbon Nanotubes," *Comput. Mater. Sci.* **40**, 354–358 (2007).

B. WANG, S. NAGASE, J. ZHAO and G. WANG, "The Stability and Electronic Structure of Single-Walled ZnO Nanotubes by Density Functional Theory," *Nanotechnology* **18**, 345706 (2007).

J. LU, L. LAI, G. LUO, J. ZHOU, R. QIN, D. WANG, L. WANG, W. N. MEI, G. LI, Z. GAO, S. NAGASE, Y. MAEDA, T. AKASAKA and D. YU, "Why Semiconducting Single-Wall Carbon Nanotubes Are Separated from Their Metallic Counterparts?" *Small* **3**, 1566–1576 (2007).

M. SAITO, S. IMAIZUMI, T. TAJIMA, K. ISHIMURA and S. NAGASE, "Synthesis and Structure of Pentaorganostannate Having Five Carbon Substituents," *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 10974–10975 (2007).

Y. MAEDA, M. HASHIMOTO, T. HASEGAWA, M. KANDA, T. TSUCHIYA, T. WAKAHARA, T. AKASAKA, Y. MIYAUCHI, Y. MARUYAMA, J. LU and S. NAGASE, "Extraction of Metallic Nanotubes of Zeolite-Supported Single-Walled Carbon Nanotubes Synthesized from Alcohol," *NANO* **2**, 221–226 (2007).

Z. SLANINA, F. UHLIK, S. LEE, L. ADAMOWICZ and S. NAGASE, "Computations of Production Yields for Ba@C₇₄ and Yb@C₇₄," *Mol. Sim.* **33**, 563–568 (2007).

Z. ZHOU and S. NAGASE, "Coaxial Nanocables of AlN Nanowire Core and Carbon/BN Nanotube Shell," *J. Phys. Chem. C* **111**, 18533–18537 (2007).

E. RIVARD, R. C. FISCHER, R. WOLF, Y. PENG, W. A. MERRILL, N. D. SCHLEY, Z. XHU, L. PU, J. C. FETTINGER, S. J. TEAT, I. NOWIK, R. H. HERBER, N. TAKAGI, S. NAGASE and P. P. POWER, "Isomeric Forms of Heavier Main Group Hydrides: Experimental and Theoretical Studies of the [Sn(Ar)H]₂ (Ar = Terphenyl) System," *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 16197–16208 (2007).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

Z. SLANINA, F. UHLIK and S. NAGASE, "Computational Screening of Metallofullerenes for Nanoscience: X@C₇₄ Series (X = Ca, Sr, Ba)," 2007 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show-NSTI Nanotech 2007, Technical Proceedings, Nano Science and Technology Institute, Cambridge, MA, pp. 489–492 (2007).

B-3) 総説、著書

前田 優、長谷川正、赤坂 健、永瀬 茂,「単層CNTの化学修飾と分散化」ナノカーボンハンドブック, 遠藤守信、飯島澄男監修, エヌ・ティー・エス出版, pp. 253–260 (2007).

土屋敬広、赤坂 健、永瀬 茂,「金属内包フラーレンの化学修飾」ナノカーボンハンドブック, 遠藤守信、飯島澄男監修, エヌ・ティー・エス出版, pp. 608–613 (2007).

Z. SLANINA, K. KOBAYASHI and S. NAGASE, “Isomeric Fullerenes and Endofullerenes: Stability Computations on Promising Nanoscience Agents,” in *Handbook on Theoretical Computational Nanotechnology*, M. Rieth, W. Schommers, Eds., American Scientific Publishers; Los Angeles, **Vol. 8**, pp. 457–505 (2007).

B-4) 招待講演

S. NAGASE and N. TAKAGI, “Heavier Group 14 Element Analogues of Alkynes,” Symposium on Practicing Chemistry with Theoretical Tools, Hawaii (U.S.A.), January 2007.

永瀬 茂, 「金属内包フラーレンの構造」第32回フラーレン・ナノチューブ総合シンポジウム, 名古屋, 2007年2月.

永瀬 茂, 「大きな分子の量子化学計算」第3回分子・物質シミュレーション中核拠点連携研究会, 岡崎, 2007年3月.

S. NAGASE, “MP2 Energy and Gradient Calculations,” Molecular Quantum Mechanics: Analytical Gradients and Beyond, Budapest (Hungary), May 2007.

永瀬 茂, 「高周期典型元素の特性——多重結合の構造と反応」理学研究流動シンポジウム(元素の個性. どう見るか、どうつくるか、どう使うか) 東京, 2007年11月.

S. NAGASE, “MP2 Calculations of Large Molecules,” The 2nd Japan-Czech-Slovakia Joint Symposium for Theoretical/Computational Chemistry, December 2007.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

WATOC (World Association of Theoretically Oriented Chemists) Scientific Board.

APACTCC (Asian Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry) Scientific Board.

分子構造総合討論会運営委員会幹事.

フラーレン・ナノチューブ研究会幹事.

学会の組織委員

Korea-Japan Joint Symposium on Theoretical and Computational Chemistry 組織委員長.

The First Asian Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry 組織委員長.

文部科学省、学術振興会等の役員等

日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員.

独立行政法人科学技術振興機構領域アドバイザー.

日本化学会学術賞・進歩賞選考委員会委員.

戦略的創造研究推進事業 ERATO 型研究中間評価委員.

学会誌編集委員

Silicon Chemistry, Subject Editor (2001–).

J. Comput. Chem., Editorial Advisory Board (2004–).

Mol. Phys., Editorial Board (2006–).

Theochem, Editorial Board (2007–).

B-8) 大学での講義、客員

城西大学大学院, 集中講義「有機物質設計特論」2007年7月19-21日.

筑波大学先端学際領域研究センター併任教授, 2002年11月-.

筑波大学TARA センター, 客員研究員, 2002年1月-.

Xi'an Jiaotong University (China), 客員教授, 2005年10月-.

B-9) 学位授与

溝呂木直美, “Theoretical Study of Structures and Chemical Functionalization of Endohedral Metallofullerenes,” 2007年3月, 博士(理学)

B-10) 外部獲得資金

基盤研究(B), 「ケイ素クラスターと遷移金属・炭素混合クラスターの構造解明と成長機構の理論研究」永瀬 茂 (1995年-1997年).

基盤研究(B), 「金属内包フラーレンの構造、物性、生成過程」永瀬 茂 (1997年-1999年).

特定領域研究(A), 「インターエレメント多重結合の理論研究」永瀬 茂 (1997年-1999年).

特定領域研究(A), 「高周期元素の特性と分子の形を利用した分子設計」永瀬茂 (1999年-2001年).

基盤研究(B), 「ナノスケールでの分子設計と反応の理論と計算システムの構築」永瀬 茂 (2002年-2003年).

特定領域研究(A), 「高周期元素とナノ柔構造の特性を利用した分子構築の理論と計算」永瀬 茂 (2003年-2005年).

特定領域研究(A), 「ナノサイズ分子がもたらす複合的電子系の構造と機能」永瀬 茂 (2006年-2009年).

C) 研究活動の課題と展望

新素材開発において、分子の特性をいかにしてナノスケールの機能として発現させるかは最近の課題である。このために、炭素を中心とする第2周期元素ばかりでなく大きな可能性をもつ高周期元素およびナノ構造の特性を最大限に活用する分子の設計と反応が重要である。サイズの大きい分子はさまざまな形状をとれるので、形状の違いにより電子、光、磁気特性ばかりでなく、空孔の内径を調節することによりゲスト分子との相互作用と取り込み様式も大きく変化させることができる。これらの骨格に異種原子や高周期元素を加えると、変化のバリエーションを飛躍的に増大させることができる。ナノスケールでの分子設計理論と実用的な量子化学計算コンピューターシミュレーション法を確立し、新規な機能性分子を開発する。これらの分子を効率的に合成実現するためには、従来のように小さい分子から順次組み上げていくのではなく、自己集合的に一度に組織化する機構の解明と理論予測はきわめて重要である。また、現在の量子化学的手法は、小さな分子の設計や構造、電子状態、反応を精度よく取り扱えるが、ナノスケールでの取り扱いには飛躍的な進展が望まれている。

信 定 克 幸 (准教授)(2004 年 6 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：分子物理学、理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 電子エネルギーの散逸を伴うナノ構造物質の電子ダイナミクス
- b) 有機分子で保護された金属クラスターの電子物性
- c) 電極反応の理論

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 実在する分子系は通常、有限温度において周りの環境と相互作用していることが多く、必然的に分子系と周りの環境との間では熱的エネルギーの出入り（熱的揺らぎ）や電子のやり取り（電子数の揺らぎ）が起こり得る。我々のグループでは特に電子数の揺らぎを持つ分子、すなわち電子溜めと相互作用している分子系において引き起こされる量子多体系ダイナミクスの理論的解明を目標として研究を進めている。先ずこの研究課題を、多電子ダイナミクスを記述するための方法論の開発と電子エネルギーの量子散逸を取り扱うための理論的手法の開発の問題に大別し、各々の問題点に焦点を絞った研究を進めている。多電子ダイナミクスの研究においては、レーザーパルス光により引き起こされる電子ダイナミクスの詳細な解明を時間依存密度汎関数理論に基づいて行った。最近の成果としては、リング状分子に円偏光レーザーパルスを照射することにより、効率的にリング内に電流を誘起し、同時に磁気モーメントを発生できることを示した。一方、電子エネルギーの量子散逸の研究においては、表面吸着分子系や電極反応を電子レベルで記述するための非平衡定常状態理論の開発とその方法論の適用を行った。最近、表面吸着原子系を記述するための新しい方法論を開発することに成功した。この方法論では表面吸着原子系を有限サイズのクラスターで近似しているが、クラスターの端において適切な境界条件を課すことで半無限系であるはずの表面を正しく記述することが可能となった。
- b) 複数の有機分子で保護（又は修飾）された金属クラスターは、裸の金属クラスターとは異なる化学的・物理的性質（例えば、線形・非線形光学応答、伝導性、磁性、触媒作用、化学反応性など）を示すことから基礎理学・応用科学両方の観点から盛んに研究されている。本研究では、チオラート分子によって保護された様々な金クラスターを対象として、その電子構造と光学的性質の解明を行った。従来チオラート分子は金クラスターの表面を覆うような形で結合すると思われてきたが、我々の研究によると金原子と硫黄原子が1体1で結合した強固な Au-S ネットワークを形成し、このネットワーク構造が金チオラートクラスターの安定化の大きな要因であることを明らかにした。また、金クラスターがチオラート分子と結合することによって、多量体化した金クラスターを形成することができると理論的に示した。これはボトムアップ的手法により金クラスターを集積化することが可能であることを意味しており、材料物性科学の観点からも興味深い研究結果を与えることができた。
- c) 電極反応は、電子状態理論、溶液論、表面・界面の理論等の分子科学の主要な理論が関与する極めて複雑な研究対象である。当然、量子論的に正確に電極反応を取り扱うことは非常に難しい。我々は、理論的方法論開発の第一段階として、有限温度密度汎関数理論に基づく化学ポテンシャル一定の電子状態計算と誘電体モデルによる溶媒和記述の手法を組み合わせた方法を開発し、電極反応の量子化学的解明を行った。

B-1) 学術論文

- T. IWASA and K. NOBUSADA**, “Theoretical Investigation of Optimized Structures of Thiolated Gold Cluster $[\text{Au}_{25}(\text{SCH}_3)_{18}]^+$,” *J. Phys. Chem. C* **111**, 45–49 (2007).
- K. NOBUSADA and K. YABANA**, “Photoinduced Electric Currents in Ring-Shaped Molecules by Circularly Polarized Laser Pulses,” *Phys. Rev. A* **75**, 032518 (7 pages) (2007).
- Y. KUBOTA and K. NOBUSADA**, “Efficient Numerical Method for Calculating Exciton States in Quantum Boxes,” *Phys. Lett. A* **369**, 128–131 (2007).
- T. IWASA and K. NOBUSADA**, “Gold-Thiolate Core-in-Cage Cluster $[\text{Au}_{25}(\text{SCH}_3)_{18}]$ Shows Localized Spins in Charged States,” *Chem. Phys. Lett.* **441**, 268–272 (2007).
- K. IKEDA, Y. KOBAYASHI, Y. NEGISHI, M. SETO, T. IWASA, K. NOBUSADA, T. TSUKUDA and N. KOJIMA**, “Thiolate-Induced Structural Reconstruction of Gold Clusters Probed by ^{197}Au Mössbauer Spectroscopy,” *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 7230–7231 (2007).
- K. NOBUSADA and T. IWASA**, “Oligomeric Gold Clusters with Vertex-Sharing Bi- and Triicosahedral Structures,” *J. Phys. Chem. C* **111**, 14279–14282 (2007).
- T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Open-Boundary Cluster Model for Calculation of Adsorbate-Surface Electronic States,” *Phys. Rev. B* **235401** (12 pages) (2007).
- K. SHIRATORI and K. NOBUSADA**, “Finite-Temperature Density Functional Calculation with Polarizable Continuum Model in Electrochemical Environment,” *Chem. Phys. Lett.* **451**, 158–162 (2007).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

- Y. KUBOTA and K. NOBUSADA**, “An Efficient Numerical Method for Exciton States in Quantum Boxes,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 43 (2007).
- K. SHIRATORI and K. NOBUSADA**, “Electronic Structure Calculations at Constant Chemical Potential toward the Application to Electrochemistry,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 47 (2007).
- K. NOBUSADA and K. YABANA**, “Electric Currents in Ring-Shaped Molecules Induced by Circularly Polarized Laser Pulses,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 54 (2007).

B-4) 招待講演

- K. NOBUSADA**, “Nonlinear electron dynamics induced by femtosecond laser pulses: Electric currents in ring-shaped molecules,” International Symposium on Molecular Science of Ultrafast Electronic Dynamics, Sendai (Japan), May 2007.
- 信定克幸, 「金属 - 分子複合系クラスターの電子物性と散逸系電子ダイナミクス」コンピューターによる材料開発・物質設計を考える会, 東京, 2007年4月.
- 信定克幸, 「特異な構造を持つ金チオラートクラスターの電子物性」日本物理学会, 札幌, 2007年9月.
- 信定克幸, 「ナノメートルサイズ金属クラスターの電子物性とダイナミクス」科学研究費特定領域研究, 東京, 2007年11月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本物理学会領域1 (原子・分子分野)世話人 (2003–2004).
科学技術振興機構地域振興事業評価委員会専門委員 (2005–2006).
文部科学省科学技術・学術審議会専門委員 (2006–).

学会の組織委員

分子構造総合討論会プログラム委員 (2001).
日韓共同シンポジウム実行委員 (2005).
総研大アジア冬の学校実行委員 (2005–2006).
理論化学シンポジウム運営委員会代表 (2006–).

B-8) 大学での講義、客員

筑波大学計算科学研究センター, 共同研究員, 2006年6月–.
総合研究大学院大学物理科学研究科, 「計算化学」2007年7月18日–7月20日.

B-10) 外部獲得資金

奨励研究(A), 「ヘムタンパク質に結合した一酸化炭素分子の振動エネルギー緩和の動力学」信定克幸 (2000年–2002年).
基盤研究(C), 「ナノメートルサイズの分子における多電子ダイナミクスの理論的研究」信定克幸 (2005年–2007年).
特定領域研究, 「エネルギー散逸を伴う電子ダイナミクスの理論と材料物性」信定克幸 (2006年–).
岩崎ファンド海外研究助成, 「DYNAM 2000 REACTIVE AND NON REACTIVE QUANTUM DYNAMICS」信定克幸 (2000年).
第1回理学未来潮流グラント, 「有限少数多体系における特異な現象の発見とその解釈」信定克幸 (2001年–2002年).
松尾学術研究助成金, 「貴金属クラスターの電子・イオンダイナミクスの理論的研究」信定克幸 (2002年–2004年).

C) 研究活動の課題と展望

これまでの分子科学におけるダイナミクスの研究では, 多原子系のダイナミクスが主たる研究テーマであったが, 最近の実験の目覚ましい進歩により, 数フェムト秒からアト秒に至る超高速の多電子ダイナミクスの実時間観測が可能になってきた。しかしながら, 多電子ダイナミクスの基礎理学的理解は全く十分ではなく, ましてや多電子ダイナミクスが今後, 分子科学一般や応用科学へどのように展開していくのかについて明確な答えを出すことは現状では難しい。そこで我々の研究グループでは, 基礎理学的理解を目標として, 理論解析・数値解析両方の観点から, 多電子ダイナミクスの研究を行っている。これまでのところ, 孤立系分子を対象として多電子ダイナミクスの研究を行ってきたが, 最近, 周りの環境と相互作用している分子系, 特に電子エネルギーの量子散逸を含む系の多電子ダイナミクスの理論的研究にも着手した。例えば, 表面吸着分子や溶媒と相互作用している分子, ヘテロな分子を多数含む大きな金属クラスター, 電極反応などの系において, 多電子がどのような振る舞いをするのか, 特に非線形光学応答や電荷移行反応に注目して研究を進めたいと考えている。また, 現在進めている研究を電子ダイナミクスだけに限定せず, スピンダイナミクスや励起子ダイナミクスも含め, 分子系における量子多体系ダイナミクスの実時間解析へと展開する予定である。

A-1) 専門領域：量子化学、理論化学、計算化学

A-2) 研究課題：

a) 量子化学的手法に基づく多参照電子状態理論の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

a) 電子やエネルギーの移動が化学の基本であるなら、我々はそれらの化学プロセスをどのような記述できるだろうか？
当研究グループでは、化学現象の本質が「電子と電子との複雑な多体相互作用の複雑な量子効果」である化学現象や化学反応をターゲットに、その高精度な分子モデリングを可能とするような量子化学的な手法開発を目指している。特に着目するのは、多重化学結合と解離、ポリマー、ナノチューブ、生体反応中心などの共役分子の光化学、金属化合物の電子状態などに表れる「複雑な電子状態」であり、その解明は大変興味が持たれている一方で、理論的な取り扱いにはチャレンジングな問題（多参照問題）である。多参照電子状態を正しく記述するためのキーとなる物理は、原子間スケールで凝縮した電子状態に由来する強い電子相関効果であり、この相関効果の問題の複雑さは分子サイズに対して指数関数的に複雑化し、既存の量子化学計算法ではこの現象を効率よく高精度で計算することができない。当研究では、この複雑な電子状態を扱う強力な新規手法として「正準変換理論（CT 法）」の基礎理論を確立した。CT 法は、Hamiltonian を指数型の多体演算子でユニタリー変換を行い、強い相関と弱い相関との相互作用の構造を有効ハミルトニアン $H = e^{-A} H e^A$ として構築する。特徴的な点として、複雑な強い相関の構造は、対応する密度行列を通して取り扱われるため、飛躍的に計算効率がよい。有効ハミルトニアンに現れる高次の電子相関に関して、三体演算子を低次の多体演算子へと分解する手法を用いて近似的に記述する。発表論文では、従来型の高参照 CI 法の計算精度を、実行速度で 1, 2 桁高速に再現できることを示した。また、共役 π 軌道の非局在的な電子相関を、ab initio 密度行列繰り込み群（DMRG）法の厳密対角化により、多配置 CASSCF 波動関数で記述するための手法開発を行っている。既に、これまで絶対取扱不可能だと思われたサイズの大規模な CASSCF 計算を実現している。配置数では $10^{20\sim30}$ の（天文学的）電子配置数を扱い、同時に軌道最適化を行える。C24 までのポリアセチレンの全 π 価電子軌道の CASSCF 計算を行い、その電子励起状態を記述した。

B-1) 学術論文

S. HIRATA, T. YANAI, R. J. HARRISON, M. KAMIYA and P. -D. FAN, “High-Order Electron-Correlation Methods with Scalar Relativistic and Spin–Orbit Corrections,” *J. Chem. Phys.* **126**, 024104 (14 pages) (2007).

T. YANAI, R. J. HARRISON, T. NAKAJIMA, Y. ISHIKAWA and K. HIRAO, “New Implementation of Molecular Double Point-Group Symmetry in Four-Component Relativistic Gaussian-Type Spinors,” *Int. J. Quantum Chem.* **107**, 1382–1389 (2007).

T. YANAI and G. K.-L. CHAN, “A Canonical Transformation Theory from Extended Normal Ordering,” *J. Chem. Phys.* **127**, 104107 (14 pages) (2007).

B-3) 総説、著書

G. K-L. CHAN and T. YANAI, "Canonical Transformation Theory for Dynamic Correlations in Multi-reference Problems," in *Advances in Chemical Physics*, Vol. 134 "REDUCED-DENSITY-MATRIX MECHANICS: WITH APPLICATION TO MANY-ELECTRON ATOMS AND MOLECULES," D. A. Mazziotti, Ed., Wiley; New York, pp. 343–384 (2007).

B-4) 招待講演

柳井 毅,「高精度量子化学計算の理論開発：マルチ分解能法と多参照正準変換電子相関理論」分子研研究会「分子科学における連成シミュレーションの基礎理論と応用」岡崎(分子研)2007年6月.

T. YANAI, "Canonical Transformation Theory for Dynamic Correlations in Multireference Problems," The 3rd Asian Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry, Beijing (China), September 2007.

T. YANAI, "Quantum chemistry with canonical transformation and renormalization group," The 2nd Japan-Czech-Slovakia Joint Symposium for Theoretical/Computational Chemistry, Fukui Institute, Kyoto, December 2007.

B-7) 学会および社会的活動

その他

「次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発」理論・計算分子科学コミュニティWGメンバー(2007–).

B-8) 大学での講義、客員

総合研究大学院大学物理科学研究科,「機能分子基礎理論」2007年前期.

C) 研究活動の課題と展望

当該研究活動で当面課題とする問題は,多重化学結合と解離,ポリマー,ナノチューブ,生体反応中心などの共役分子の光化学 金属化合物の電子状態などに表れる「複雑な電子状態」であり 理論的な取り扱いはチャレンジングな問題(多参照問題)である。問題の複雑さは,問題のサイズ(分子サイズ)に対して指数関数的に複雑化するので,この問題を解くのはなかなか容易ではない。当研究グループが開発を進める「密度行列繰り込み群」および「正準変換理論」は,いままでにない大規模でプレディクティブな多参照量子化学計算を実現する可能性を秘めている。本年度の成果はその可能性を実証することができたが,一方で理論の実装はまだ実験段階にあり,よりリアルな系の定量的な大規模多参照計算を実践するに至っていない。これまで開発した基礎理論をベースに,ペタスケール大型計算機が間近に利用可能になることを念頭に置きつつ,手法の洗練された実装,アルゴリズム開発を行う予定である。

理論分子科学第二研究部門

平 田 文 男 (教授) (1995 年 10 月 16 日着任)

A-1) 専門領域：理論化学、溶液化学

A-2) 研究課題：

- a) 溶液内分子の電子状態に対する溶媒効果と化学反応の理論
- b) 溶液中の集団的密度揺らぎと非平衡化学過程
- c) 生体高分子の溶媒和構造の安定性に関する研究
- d) 界面における液体の統計力学

A-3) 研究活動の概略と主な成果

当研究グループでは統計力学理論に基づき液体・溶液の構造、ダイナミクス、相転移を含む熱力学挙動、およびその中で化学反応を解明する理論の構築を目指して研究を進めている。特に、最近は様々な界面における液体の構造とそこにおける化学過程に着目しており、電極 - 溶液界面、気液界面、液液界面、炭素細孔界面、生体分子界面における溶液の構造を分子レベルで解明して来た。これらの溶液界面は触媒や酵素に典型的に見られるように化学反応の反応場として重要な役割を演じている。溶液界面は極めて不均一な構造をしており「平均場」近似を基礎とする従来の統計力学が最も苦手とするところであった。しかしながら、最近、我々は液体の統計力学のひとつである 3 次元 RISM 理論が蛋白質内部の狭い空間に閉じ込められた小分子の分布を実験 (X 線や中性子回折) を越える分解能で記述できることを見出した。これは酵素反応やイオンチャネルなど生命現象の素過程で重要な役割を演じる「分子認識」の問題が統計力学の対象になったことを意味する歴史的な発展である。以下に、本年度の主な成果として水分子透過チャネルであるアクアポリンとセルロース分解酵素に関する研究を紹介する。

- a) アクアポリン (水チャネル) の水透過機構の解明：アクアポリンは 4 個の分子チャネルからなる複合チャネルであるが、水分子を透過することにより細胞内の水の濃度を調節する重要な蛋白質である。このチャネルの水分子透過機構 (特に、ゲーティングのメカニズム) を解明するためにはチャネル内部の水分子の分布を求める必要があるが、現在の実験の分解能では蛋白質の構造と水分子の分布の相関を求めることは極めて難しい。我々は 3 次元 RISM 理論を用いて、結晶構造が決定しているアクアポリン (AQPZ) の 4 つの構造に関して、そのチャネル内部の水分子の分布を決定することに初めて成功した。これらの 4 つのうちひとつは水分子を透過している時の構造であり、他の 3 つは透過しない時のそれである。水の分布関数の解析から、チャネルを構成しているひとつのアミノ酸残基 (R189) の配向がチャネルの開閉機能 (ゲーティング) に関わっていることを明らかにした。[*Chem. Phys. Lett.* **449**, 196 (2007) に既報]
- b) セルロース分解酵素の反応中間体を理論的に同定：セルロース (糖鎖高分子) から単糖類を生成するプロセスは太陽エネルギーを有効に利用する上でその鍵となる化学過程であり、それを実現する最も効率の良い方法は酵素反応であると考えられる。この反応は加水分解反応であり、セルロースとともに水分子もひとつの基質であるため、酵素 (蛋白質) 内の水分子の位置が反応機構の解明に本質的意義を有する。しかしながら、実験的に酵素内の水分子の位置を決定することは不可能に近い。その理由はこの水分子が「反応中間体」であり、反応によって消滅してしまうからである。我々は、X 線結晶構造解析から得られたセルロースオリゴマー (6 量体) とセルロース分解酵

素の複合錯体を水に浸し、その周辺および活性部位における水分子の分布を3次元 RISM 理論により求めた。その結果、活性部位を構成する二つのグルタミン酸 (Glu186 と Glu359) のカルボニル酸素および糖鎖のグリコシド酸素からの水素結合距離内に水分子の強いピークを見出した。我々はこの水分子がグリコシド結合を求核的に攻撃する基質であると結論した。[*J. Am. Chem. Soc. (Communication)* に投稿中]

B-1) 学術論文

A. E. KOBRYN and F. HIRATA, “Statistical-Mechanical Theory of Ultrasonic Absorption in Molecular Liquids,” *J. Chem. Phys.* **126**, 044504 (2 pages) (2007).

T. IMAI, R. HIRAOKA, A. KOVALENKO and F. HIRATA, “Locating Missing Water Molecules in Protein Cavities by the Three-Dimensional Reference Interaction Site Model Theory of Molecular Solvation,” *Proteins: Struct., Funct., Bioinf.* **66**, 804–813 (2007).

Y. IKUTA, Y. MARUYAMA, M. MATSUGAMI and F. HIRATA, “Probing Cations Recognized by a Crown Ether with the 3D-RISM Theory,” *Chem. Phys. Lett.* **433**, 403–408 (2007).

A. TANIMURA, A. KOVALENKO and F. HIRATA, “Structure of Electrolyte Solutions Sorbed in Carbon Nanospaces, Studied by the Replica RISM Theory,” *Langmuir* **23**, 1507–1517 (2007).

T. YAMAZAKI, T. IMAI, F. HIRATA and A. KOVALENKO, “Theoretical Study of the Cosolvent Effect on the Partial Molar Volume Change of Staphylococcal Nuclease Associated with Pressure Denaturation,” *J. Phys. Chem. B* **111**, 1206–1212 (2007).

N. YOSHIDA, S. PHONPHANPHANEE and F. HIRATA, “Selective Ion-Binding by Protein Probed with the Statistical Mechanical Integral Equation Theory,” *J. Phys. Chem. B* **111**, 4588–4595 (2007).

Y. IKUTA, Y. MARUYAMA, F. HIRATA and S. TOMODA, “Theoretical Study of Solvent Effect on Diastereo Selectivity in Protonation of Methyl 3-Fluorobutanoate Anion by Ethanol: Application of the 3D-RISM Theory,” *THEOCHEM* **811**, 183–190 (2007).

T. IMAI, S. OHYAMA, A. KOVALENKO and F. HIRATA, “Theoretical Study of the Partial Molar Volume Change Associated with Pressure-Induced Structural Transition of Ubiquitin,” *Protein Sci.* **16**, 1927–1933 (2007).

T. IMAI, H. HARANO, M. KINOSHITA and A. KOVALENKO, “A Theoretical Analysis on Changes in Thermodynamic Quantities upon Protein Folding: Essential Role of Hydration,” *J. Chem. Phys.* **126**, 225102 (9 pages) (2007).

T. IMAI, R. HIRAOKA, T. SETO, A. KOVALENKO and F. HIRATA, “Three-Dimensional Distribution Function Theory for the Prediction of Protein-Ligand Binding Sites and Affinities: Application to the Binding of Noble Gases to Hen Egg-White Lysozyme in Aqueous Solution,” *J. Phys. Chem. B* **111**, 11585 (2007).

T. MIYATA and F. HIRATA, “Combination of Molecular Dynamics Method and 3d-RISM Theory for Conformational Sampling of Large Flexible Molecules in Solution,” *J. Comput. Chem.* 10.1002/jcc. 20844.

S. PHONPHANPHANEE, N. YOSHIDA and F. HIRATA, “A Statistical Mechanics Study on Equilibrium Water Distribution in the Channel of Aquaporin,” *Chem. Phys. Lett.* **449**, 196–201 (2007).

S. -H. CHONG, M. AICHELE, H. MEYER, M. FUCHS and J. BASCHNAGEL, “Structural and Conformational Dynamics of Supercooled Polymer Melts: Insights from First-Principles Theory and Simulations,” *Phys. Rev. E* **76**, 051806 (22 pages) (2007).

T. MIYATA, “Reference Interaction Site Model Study on the Anomeric Equilibrium of D-Glucose in Aqueous Solution,” *Cond. Matt. Phys.* **10**, 433–439 (2007).

N. YOSHIDA, “Analytical Free Energy Gradient for the Molecular Ornstein-Zernike Self-Consistent-Field Method,” *Cond. Matt. Phys.* **10**, 363–372 (2007).

Y. MARUYAMA, M. MATSUGAMI and Y. IKUTA, “Probing Cations Recognized by a Crown Ether with the 3D-RISM Theory. II. 18-Crown-6 Ether,” *Cond. Matt. Phys.* **10**, 315–322 (2007).

B-3) 総説、著書

F. HIRATA, “Condensed Matter Physics (Ukraine),” **volume 10**, number 3 & 4 (2007). (special issues dedicated to the 60th anniversary of Fumio Hirata)

B-4) 招待講演

平田文男, 「グリッド環境を利用したこれからの計算化学」 NAREGI シンポジウム 2007, 東京(一橋記念講堂) 2007年2月.

平田文男, 「RISM: today & Future」 「RISM 理論の新展開」 研究会, 岡崎コンファレンスセンター, 2007年3月.

平田文男, 「分子の言葉で綴る生命現象の理論: 現状と課題」 日本化学会第87春期年会, 第二次先端ウオッチングイブニングセッション「生命分子科学の進展」 関西大学千里山キャンパス, 2007年3月.

F. HIRATA, “Molecular Recognition Realized by the 3D-RISM Theory,” 60th Birthday lecture tour in USA, UC San Diego, Univ. Houston, Texas University Rutgers University, Austin (U.S.A.) April 2007.

平田文男, 「生命現象の素過程としての分子認識」 九州工業大学生命情報工学科バイオサーモプロジェクト, 九州工業大学, 2007年10月.

F. HIRATA, “Molecular Recognition Realized by the Statistical Mechanics Theory,” 9th International Symposium on Polymers for Advanced Technologies (PAT2007), Shanghai (China), October 2007.

F. HIRATA, “A grand challenge application for the next-generation supercomputer in the soft nano-science,” First French-Japanese Workshop “Petascale Applications, Algorithms and Programming(PAAP),” RIKEN (Tokyo), November 2007.

吉田紀生, 「3D-RISM 理論の生体分子への応用 The application of 3D-RISM theory to biomolecule」 科学研究費補助金特定領域研究「次世代量子シミュレータ・量子デザイン手法の開発」 A02班主催ミニワークショップ 大規模・高精度電子状態計算手法に関する研究会 (独)物質・材料研究機構, つくば市, 2007年7月.

B-6) 受賞、表彰

平田文男, 日本化学会学術賞 (2001).

佐藤啓文, 日本化学会進歩賞 (2002).

B-7) 学会及び社会的活動

学協会役員、委員

溶液化学研究会運営委員長 (2004–).

学会誌編集委員

Phys. Chem. Commun., Advisory Board.

Theoretical and Computational Chemistry, 編集委員.

Condensed Matter Physics, Editorial Board.

J. Chem. Phys., Editorial Board (2007–2010).

その他

超高速コンピュータ網形成プロジェクト「ナノサイエンス実証研究」拠点長 (2003–2007).

最先端・高性能スーパーコンピュータの開発利用「次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェアの研究開発」拠点長 (2006–).

B-8) 大学での講義、客員

名古屋大学大学院理学研究科, 集中講義「液体の統計力学：構造とダイナミクス」7月23日–7月25日.

B-10) 外部獲得資金

重点領域研究(公募)「電極の原子配列を考慮した電極-溶液界面の統計力学理論」平田文男 (1997年–1999年).

特定領域研究(公募)「理論的アプローチによる繊維金属を含む生体内化学反応の解明」佐藤啓文 (1999年–2001年).

奨励研究(A)「溶液内分子の核磁気共鳴スペクトルに対する非経験的手法に基づく理論の開発」佐藤啓文 (1999年–2001年).

基盤研究(B)「化学反応に対する溶媒効果の分子論」平田文男 (2000年–2003年).

特定領域研究(計画)「統計力学密度汎関数理論に基づく液液界面構造の解明」Andriy Kovalenko (2001年–2004年).

特定領域研究(計画)「生体内化学過程の統計力学理論」平田文男 (2003年–2007年).

若手研究(B)「過冷却状態における分子性液体の動的不均一性に関する理論的及び計算機を用いた研究」鄭誠虎 (2005年–2007年).

C) 研究活動の課題と展望

我々は過去数年の研究において「分子認識の理論」とも呼ぶべき新しい統計力学理論を構築しつつある。それは溶液内の超分子や蛋白質などによる分子認識(複合体形成)過程を第一原理的に実現する方法論である。しかしながら、現在までの理論では十分に扱うことができない問題がある。それは蛋白質の構造揺らぎと共役した機能発現過程(化学過程)である。酵素反応やイオンチャネルなど蛋白質の機能発現においては基質分子を蛋白内に取り込む過程(分子認識)が重要であるが、このプロセスは単に「鍵と鍵孔」のような機械的なフィッティング過程ではない。例えば、酵素反応の場合、酵素の反応ポケット周辺の構造が変化して、基質を取り込む現象は実験的にも良く知られている。また、イオンチャネルにイオンを取り込む際の「ゲーティング」という機構も同様の構造揺らぎによって実現される。このような蛋白質の構造揺らぎと共役した化学過程を取り扱うために、溶液のダイナミクスと共役した蛋白質の構造揺らぎを記述する理論の発展は今後の重要な課題である。このような理論を発展させる上で、構造揺らぎのスケールに応じて二つの方向が考えられる。ひとつは蛋白質のフォールディングのようにグローバルな構造揺らぎを追跡する場合で、この場合は構造変化の時間的分解能よりはそのグローバルな安定構造を探索することが重要である。この問題に対して我々はすでに3D-RISM理論と拡張アンサンブル法を組み合わせた方法論を提案しており、最近、分子動力学法と組み合わせた新しい方法論を開発した。一方、酵素反応の反応速度を追跡する場合のように、蛋白質の比較的速い構造揺らぎが関与する場合には、溶液のダイナミクスと蛋白質の構造揺らぎとの動的相関を記述する理論が必要である。我々は一般化ランジェヴィアン理論と3D-RISM/RISM理論を結合した新たな理論の開発に着手する予定である。

米 満 賢 治 (准教授) (1996 年 2 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：物性理論

A-2) 研究課題：

- a) 有機塩 (EDO-TTF)₂PF₆ の光誘起電荷新秩序とコヒーレンスのプローブ依存
- b) スピン・パイエルス絶縁体の光誘起ポラロン状態とスピン電荷結合励起
- c) α 型および θ 型有機塩 (BEDT-TTF)₂X の電荷秩序相転移の詳細比較
- d) 金属絶縁体界面を通した電荷輸送特性の絶縁機構による違い

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 擬 1 次元 1/4 フィリング系の有機塩 (EDO-TTF)₂PF₆ は、(0110) 型電荷秩序をもつ絶縁相において光照射すると伝導度が桁違いに上がるため、光誘起絶縁体金属転移とみなされてきた。しかし、光誘起伝導度スペクトルの形状は高温金属相のそれと大きく異なり、謎であった。そこで従来のパイエルス・ホルシュタイン・ハバードモデルを拡張し、 π 電子間の長距離クーロン相互作用とアニオンによる電子格子相互作用を考慮した。これらは、平衡状態の性質をほとんど変えないように繰り込むことが可能だが、光誘起ダイナミクスを本質的に変える。観測されている過渡スペクトルを再現するパラメタでは、(1010) 型の新たな電荷秩序とキャリアーが光照射により生成されていた。スペクトルは高エネルギーではコヒーレントに、低エネルギーではインコヒーレントに振動しており、これも実験を再現する。これは観測するエネルギーに対応して、電子運動のスケールが違うことによる。
- b) 1 次元スピン・パイエルス絶縁体の K-TCNQ は、光照射により二量化が弱まりギャップが減少する様子が理論的によく説明されていたが、光照射直後に現れるギャップ内状態の起源が謎であった。格子緩和を必要としない純粋に電子的な瞬時の変化だとすると、伝導度スペクトルのドルーデ成分がないことと矛盾する。そこで、パイエルス型とホルシュタイン型の電子格子相互作用を考慮し、格子緩和の強さを変えながら伝導度スペクトルを計算した。ギャップ内状態のエネルギーを再現するにはパイエルス型の格子歪みが必要なことをつきとめた。ギャップ内状態は、格子自由度がなければ分離しているスピンと電荷の結合した励起状態であることを、励起エネルギーおよびスピン密度と電荷密度の相対分布の解析評価から示した。
- c) 2 次元 1/4 フィリング系の α 型および θ 型の BEDT-TTF 塩は、ともに長距離クーロン相互作用が効いて、低温で電荷秩序をもつ。しかし θ 型は電子格子相互作用なしでは、低温での結晶構造も水平ストライプ型の電荷秩序も再現されないこと、特に分子回転によるトランスファー積分の変調が効くこと、α 型は電子格子相互作用の影響が小さいことを示してきた。どちらの塩も不連続転移をするが、θ 型はとびが大きく、α 型はとびが小さいことも理論的に再現できた。θ 型では高温で 3 倍周期の電荷相関をもつことと関係している。これらにより電荷秩序の光誘起融解ダイナミクスにおける格子効果を計算するための基礎データを得られた。
- d) 金属と絶縁体を接すると一般に仕事関数が異なるためにショットキー障壁が生じる。通常のバンド絶縁体の場合は、電圧の向きによって電流の絶対値が大きく変わる整流作用が現れ、モット絶縁体の場合は、整流作用が抑制されることを示してきた。しかし、界面付近のポテンシャル変化を求める際に、これまで収束が悪く電流を過小評価していた。これを回避するため、ポワソン方程式を解く際に電子密度とポテンシャルの関係を仮定することにより解析的に解を求め、それをを用いた量子的時間発展計算を行った。バンド絶縁体とモット絶縁体の電流電圧特性を実験結果と比較し、非常に良い一致をみた。

B-1) 学術論文

- Y. TANAKA and K. YONEMITSU**, “Effects of Electron-Lattice Coupling on Charge Order in θ -(ET)₂X,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 053708 (5 pages) (2007).
- S. MIYASHITA and K. YONEMITSU**, “Charge Ordering in θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄: Cooperative Effects of Electron Correlations and Lattice Distortions,” *Phys. Rev. B* **75**, 245112 (6 pages) (2007).
- N. MAESHIMA and K. YONEMITSU**, “Charge-Transfer Excitations in One-Dimensional Dimerized Mott Insulators,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 074713 (5 pages) (2007).
- H. INOUE and K. YONEMITSU**, “Relaxation Process in the Photoinduced Neutral-Ionic Paraelectric–Ferroelectric Phase Transition in Tetrathiafulvalene-*p*-Chloranil,” *Phys. Rev. B* **75**, 235125 (13 pages) (2007).
- K. YONEMITSU and N. MAESHIMA**, “Photoinduced Melting of Charge Order in a Quarter-Filled Electron System Coupled with Different Types of Phonons,” *Phys. Rev. B* **76**, 075105 (6 pages) (2007).
- K. YONEMITSU, N. MAESHIMA and T. HASEGAWA**, “Suppression of Rectification at Metal–Mott-Insulator Interfaces,” *Phys. Rev. B* **76**, 235118 (7 pages) (2007).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

- N. MAESHIMA and K. YONEMITSU**, “Theory of Optical Responses of Photoexcited Halogen-Bridged Metal Complexes in Different Insulating Phases,” *Multifunctional Conducting Molecular Materials*, G. Saito, F. Wudl, R. C. Haddon, K. Tanigaki, T. Enoki, H. E. Katz and M. Maesato, Eds., RSC; Cambridge, 185–188 (2007).
- K. YONEMITSU**, “Mechanism of Ambipolar Field-Effect Transistors on One-Dimensional Organic Mott Insulators,” *Multifunctional Conducting Molecular Materials*, G. Saito, F. Wudl, R. C. Haddon, K. Tanigaki, T. Enoki, H. E. Katz and M. Maesato, Eds., RSC; Cambridge, 276–281 (2007).

B-3) 総説、著書

- 米満賢治, 「光で電子を一斉に動かし物性を変えるしくみの理論」*光アライアンス (Optical Alliance)* **18**, No.7, 29–33 (2007).

B-4) 招待講演

- 米満賢治, 「強相関電子系としての分子性物質の非平衡協力現象」第22回日本原子力研究開発機構・兵庫県立大学合同コロキウム, SPring-8, 2007年2月.
- K. YONEMITSU**, “Theoretical Approaches to Photoinduced Phase Transition Dynamics,” 2nd France-Japan Advanced School on Chemistry and Physics of Molecular Materials, Tokyo (Japan), March 2007.
- K. YONEMITSU and N. MAESHIMA**, “Photoinduced Melting Dynamics in Spin-Peierls and Charge-Ordered Systems,” 4th Japan-France Symposium on Molecular Materials: Electronics, Photonics and Spintronics, Tokyo (Japan), March 2007.
- 米満賢治、前島展也, 「1/4 フィルド電子系の電荷秩序に対する異なるフォノンの役割と光誘起融解ダイナミクス」物質科学セミナー, 東京工業大学, 2007年4月.
- 米満賢治, 「光誘起相転移ダイナミクスの理論: 秩序の融解と過渡スペクトル」分子性導体の機能・構造に関する研究と放射光利用研究会, SPring-8, 2007年6月.

K. YONEMITSU, “Photoinduced Melting of Charge and Lattice Orders Viewed from Theoretical Transient Spectra,” Pre-conference “Photoinduced Phase Transition” Seminar, Wroclaw (Poland), June 2007.

K. YONEMITSU, “Photoinduced Charge Order and Melting Dynamics in Quarter-Filled Organic Conductors,” 9th China-Japan Joint Symposium on Conduction and Photoconduction in Organic Solids and Related Phenomena, Beijing (China), October 2007.

K. YONEMITSU, “Suppressed Rectification and Ambipolar Field-Effect Injections through Metal–Mott-Insulator Interfaces,” Oak Ridge National Laboratory Materials Science and Technology Seminar, Oak Ridge (U.S.A.), November 2007.

K. YONEMITSU, “Photoinduced Charge Order and Melting Dynamics in 1/4-Filled Organic Conductors,” International Meeting of Japan-France Core-to-Core Project, Rennes (France), December 2007.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本物理学会名古屋支部委員 (1996–1997, 1998–2000).

日本物理学会第56期代議員 (2000–2001).

日本物理学会領域7 (分子性固体・有機導体分野)世話人 (2003–2004).

日本物理学会第63期～第64期代議員 (2007–).

学会誌編集委員

日本物理学会誌, 編集委員 (1998–1999).

Journal of the Physical Society of Japan, 編集委員 (2006–).

B-10) 外部獲得資金

奨励研究(A), 「二バンド系における強相関電子相と次元クロスオーバー」米満賢治 (1998年–1999年).

基盤研究(C), 「低次元分子性導体の電荷秩序と絶縁機構, 光誘起非線型ダイナミクス」米満賢治 (2000年–2002年).

基盤研究(C), 「分子性物質の光誘起相転移と非平衡秩序形成」米満賢治 (2003年–2006年).

特定領域研究(計画研究)「極限環境下の分子性導体における集団的な電荷ダイナミクスの理論」米満賢治 (2003年–2007年).

基盤研究(C), 「分子性低次元導体の光誘起相転移動力学の理論」米満賢治 (2007年–2010年).

C) 研究活動の課題と展望

これまで強相関電子系としての分子性物質が非平衡状態において発現する機能やダイナミクスを中心に研究してきた。現実には重要でありながら強相関電子系としては取り扱いが難しいものとして緩和過程がある。系と熱浴の結合でなく、系そのものの性質が緩和速度に影響している可能性が、光誘起ダイナミクスに関して示唆されながら、まだ誰も答えられていない。また、金属絶縁体界面を通じた電荷輸送について、これまで量子的時間発展に基づいた計算を行ってきた。しかし、定常状態を扱うには金属電極や摂動の導入に無限大を考慮する必要がある。これらに共通の課題は、数値計算の可能な有限系での非平衡ダイナミクスと無限系との関係である。これらにアプローチすべく、解析的な方法と数値計算を組み合わせることを考えている。界面を通じた輸送については電流のほか熱流を、非平衡環境を与えるものとして電場のほかに温度勾配をも含め、より広い視点から電子系の非平衡ダイナミクスを研究していく。

計算分子科学研究部門

岡 崎 進 (教授) (2001 年 10 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：計算化学、理論化学、計算機シミュレーション

A-2) 研究課題：

- a) 溶液中における溶質分子振動量子動力学の計算機シミュレーション
- b) 溶液中におけるプロトン移動の量子力学
- c) 水溶液中における両親媒性溶質分子の自己集合体生成

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 分子振動ポピュレーション緩和や振動状態間デコヒーレンスなど、溶液中における溶質の量子力学を取り扱うことのできる計算機シミュレーション手法の開発を進めている。これまですでに、調和振動子浴近似に従った経路積分影響汎関数理論に基づいた方法論や、注目している溶質の量子系に対しては時間依存のシュレディンガー方程式を解きながらも溶媒の自由度に対しては古典的なニュートンの運動方程式を仮定する量子 - 古典混合系近似に従った方法論を展開してきているが、これらにより、溶液中における量子系の非断熱な時間発展を一定の近似の下で解析することが可能となった。今年度は特に、溶質の状態間のエンタングルメントを解析し得る方法論を確立すべく定式化を行い、数値計算プログラムの開発に着手した。
- b) 量子 - 古典混合系近似に基づいて、水溶液中における分子内プロトン移動の量子力学シミュレーションによる検討を進めている。状態間デコヒーレンスの速い系を有効に記述し得るサーフィスホッピングの枠組みの中で、シミュレーションに用いられる運動方程式に関して、前年の透熱表示に引き続き、今年度は断熱表示による書き下し等方法論の確立に努めた。モデル系に対する予備的な計算では、振動励起に端を発する熱的な活性化過程を経るプロセスと、トンネリングによるプロセスとが系の条件に応じて自然に生じるシミュレーションを実現している。これにより、プロトンの移動と溶媒分子の運動との相関など、移動機構についての動的解析が可能となる。今年度は特に、断熱表示での注目している系と溶媒に対する運動方程式を導出し、モデル計算を行った。
- c) ミセルや二重層膜に代表されるような水溶液中における両親媒性溶質分子の集団的な自発的構造形成に対するシミュレーション手法を確立することを目的として、自由エネルギー計算を含めた大規模 MD 計算を行っている。これまでに、特に大規模な MD 計算を効率よく実行することを可能とするため、原子数にして百万個オーダーの計算が可能で高並列汎用 MD 計算プログラムの開発を行ってきた。今年度は特に、両親媒性分子が水溶液中に生成する球状ミセルに対して熱力学的積分法に基づいたシミュレーションを行い、ミセルの疎水核中への分子の取り込みについて検討を行った。また、コレステロールを含む脂質二重層膜に対する MD 計算を行い、NMR 実験との関係においてプロトンの関わる結合の回転の相関関数を求めた。

B-1) 学術論文

Y. OKAMOTO, T. MIKAMI, N. YOSHII and S. OKAZAKI, "A Molecular Analysis of the Vibrational Energy Relaxation Mechanism of the CN^- Ion in Water Based upon Path Integral Influence Functional Theory Combined with a Dipole Expansion of the Solute-Solvent Interaction," *J. Mol. Liq.* **134**, 34-39 (2007).

N. YOSHII and S. OKAZAKI, "Free Energy of Water Permeation into Hydrophobic Core of Sodium Dodecyl Sulfate Micelle by Molecular Dynamics Calculation," *J. Chem. Phys.* **126**, 096101 (3 pages) (2007).

S. KAJIMOTO, N. YOSHII, J. HOBLEY, H. FUKUMURA and S. OKAZAKI, "Electrostatic Potential Gap at the Interface between Triethylamine and Water Phases Studied by Molecular Dynamics Simulation," *Chem. Phys. Lett.* **448**, 70–74 (2007).

N. YOSHII and S. OKAZAKI, "A Molecular Dynamics Study of Structure and Dynamics of Surfactant Molecules in SDS Spherical Micelle," *Cond. Matt. Phys.* **4**, 573–578 (2007).

B-4) 招待講演

N. YOSHII and S. OKAZAKI, "A molecular dynamics study of free energy of micelle formation in water," 62nd Calorimetry Conference held jointly with The Japan Society of Calorimetry and Thermal Analysis (Calcon 2007), Hawaii (U.S.A.), August 2007.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

分子シミュレーション研究会幹事 (1998–).

理論化学研究会世話人会委員 (2002–).

溶液化学研究会運営委員 (2004–).

文部科学省、学術振興会等の役員等

日本学術振興会第 139 委員会委員 (2000–).

総合科学技術会議分野別推進戦略総合 PT 情報通信 PT 研究開発領域検討会委員 (2008–).

学会誌編集委員

分子シミュレーション研究会「アンサンブル」編集委員長 (2004–).

B-8) 大学での講義、客員

国立情報学研究所, 客員教授.

名古屋大学, 客員教授.

C) 研究活動の課題と展望

溶液のような多自由度系において、量子化された系の動力学を計算機シミュレーションの手法に基づいて解析していくためには、少なくとも現時点においては何らかの形で新たな方法論の開発が要求される。これまでに振動緩和や量子液体についての研究を進めてきたが、これらに対しては、方法論の確立へ向けて一層の努力を続けるとともに、すでに確立してきた手法の精度レベルで解析可能な現象や物質系に対して具体的に計算を広げていくことも重要であると考えている。また、電子状態緩和や電子移動反応への展開も興味深い。

一方で、超臨界流体や生体系のように、古典系ではあるが複雑であり、また巨大で時定数の長い系に対しては計算の高速化が重要となる。これには、方法論そのものの提案として実現していく美しい方向に加えて、グリッドコンピューティングなど計算アルゴリズムの改良やさらには現実の計算機資源に対する利用効率の高度化にいたるまで様々なレベルでのステップアップが求められる。このため、複雑な系に対する計算の実現へ向けた現実的で幅広い努力が必要であるとも考えている。

斉 藤 真 司 (教授) (2005 年 10 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 過冷却水のダイナミクス、多孔質媒体中の粒子のガラス転移の理論研究
- b) 生体高分子における構造揺らぎと反応の理論研究
- c) 多次元分光法による凝縮系ダイナミクスの理論研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 液体を急冷すると、融点で結晶化せずに過冷却液体さらにはガラスとなる。水においては、2 種類以上のアモルファス状態が存在し、その密度揺らぎは非常に興味深い。我々は、分子動力学計算を用い過冷却水の構造・密度・エネルギー揺らぎの解析を進めている。また、薄膜や多孔質媒体などの制限空間におけるガラス転移に関する研究も進めている。バルク状態で液体相であっても、固定粒子の増加とともに運動が遅くなりガラス相に変化すること、固定粒子の密度により 2 種類のガラス転移が存在することを明らかにした。さらに、パーコレーション閾値に近い非常に高い固定粒子密度において、流動粒子密度を増やすと自由体積が減少するにも関わらずガラス相から液体相に転移し、さらに流動粒子密度を増やすと再びガラス相になるリエントラント現象があることを明らかにした。
- b) GTP 結合タンパク質 Ras は癌原遺伝子産物として知られたシグナル伝達タンパク質である。GTP と結合した活性型の Ras は Raf などの標的タンパク質に結合し、シグナルを下流に送ることにより細胞増殖が進み、GTP が加水分解され GDP となると Ras は不活性型となる。GTP の加水分解が抑制され Ras が活性型に固定されると、細胞増殖が異常に続き癌となる。これまでの実験研究から、加水分解の前後で Ras が構造変化することが知られている。我々は、GTP 加水分解反応前後の構造や揺らぎの変化が、どのように反応（機能発現）に影響しているか分子動力学法、電子状態計算を用い調べている。その結果、GAP の結合により加水分解反応に関わる水分子の動きが抑制され、反応の妨げとなる揺らぎを抑えていること等が明らかとなってきた。現在、反応機構の解析も進めている。
- c) 凝縮系のダイナミクスを解析法として、多次元分光法の理論解析を進めている。我々は、2 次元赤外分光法により水の分子間運動の理論研究を行っている。その結果、衡振運動の相関が約 110 fs で喪失すること、また、約 180 fs で衡振運動から分子間並進運動へ緩和することを明らかにした。さらに、非調和性の強い水の分子間並進運動が、これら運動の相関の喪失および緩和に大きな影響を及ぼしていることを明らかにした。このように、水中の速い緩和が、高速な衡振運動の存在だけによるものではなく、衡振運動に比べ 3 倍以上も遅い分子間並進運動によって引き起こされることを明らかにした。

B-1) 学術論文

M. KAMIYA, S. SAITO and I. OHMINE, "Proton Transfer and Associated Molecular Rearrangements in Photocycle of Photoactive Yellow Protein; Role of Water Molecular Migration on Proton Transfer Reaction," *J. Phys. Chem. B* **111**, 2948–2956 (2007).

B-4) 招待講演

S. SAITO, "Theoretical Two-Dimensional Spectroscopy of Water," Japan-Korea Symposium, Jeju (Korea), July 2007.

S. SAITO, "Theoretical Two-Dimensional Spectroscopy of Water," Joint Conference of JMLG/EMLG Meeting 2007 and 30th Symposium on Solution Chemistry of Japan, Fukuoka (Japan), November 2007.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

理論化学討論会世話人会委員 (2002-).

分子シミュレーション研究会幹事 (2007-).

日本化学会東海支部幹事 (2007-).

B-8) 大学での講義、客員

名古屋大学理学部, 「物理化学基礎」 2007年前期.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「機能分子基礎理論」 2007年 7月-9月.

東京大学大学院総合文化研究科, 関連基礎科学特別講義I「溶液の分子論的ダイナミクスと分光解析」 2007年 12月10日-12月12日.

東京大学大学院総合文化研究科, 客員助教授, 2005年 4月-2006年 3月, 客員教授, 2006年 4月-.

B-10) 外部獲得資金

特定領域研究(計画研究)「空間・時間不均一ダイナミクス理論の構築」 斉藤真司 (2006年度-2009年度).

基盤研究(B)(2), 「化学反応および相転移ダイナミクスの多次元振動分光法による理論解析」 斉藤真司 (2004年度-2006年度).

基盤研究(C)(2), 「凝縮系の揺らぎおよび非線形分光に関する理論研究」 斉藤真司 (2001年度-2002年度).

基盤研究(C)(2), 「溶液内化学反応と高次非線形分光の理論研究」 斉藤真司 (1999年度-2000年度).

奨励研究(A), 「溶液の高次非線形分光と化学反応ダイナミクスの理論研究」 斉藤真司 (1997年度-1998年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は、液体や過冷却水のダイナミクス、多孔質媒体における粒子のガラス転移、生体高分子における構造揺らぎと反応、さらに、多次元分光法に基づくダイナミクスの理論研究を進めている。

液体や過冷却液体のダイナミクスの解析として、過冷却水の解析を行っている。ポテンシャルエネルギーの変化、密度変化によるエネルギー揺らぎの変化を明らかにし、液体構造変化に由来する遅い揺らぎの解析を進める。

多孔質媒体における粒子のダイナミクスの詳細は、未だに明らかになっていない部分が多い。今後、2種類のガラス転移における揺らぎの違い、リエントラント現象における流動性の回復の分子論的機構などについて解析を進める。

生体高分子における構造揺らぎと反応の解析として、細胞増殖に関わるRasにおけるGTPの加水分解反応の解析をさらに進める。とくに、GTPの加水分解反応がどのような機構で、また、何によって引き起こされるのかを明らかにする。

多次元分光による凝縮系ダイナミクスの解析として、2次元赤外分光法に基づく理論研究を過冷却水や氷へと展開し、温度、構造により緩和過程がどのように変化するかを明らかにする。さらに、溶液系の1次元および多次元分光法の解析を行い、溶質の存在により水の運動がどのような影響を受けるのかなど溶液のダイナミクスの詳細を解析する。

森 田 明 弘 (准教授) (2004 年 1 月 1 日 ~ 2007 年 3 月 31 日)^{*}

A-1) 専門領域：計算化学、理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 界面和周波発生分光の理論とシミュレーション
- b) 分子軌道法に基づく電子分極の分子モデリング

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 可視 - 赤外の和周波発生分光法は、界面構造をプローブする実験手法として近年広く用いられるようになってきた。とくに液体界面を分子レベルで観測する手法として他に類例がなく有力であり、電気化学、高分子化学、大気化学など多くの関連分野への展開が図られている。本グループでは、分子軌道計算に基づく分子モデリングと分子動力学計算に基づいて和周波発生スペクトルを非経験的に計算し、理論的に解析する手法を開発してきた。本年の成果としては、電解質水溶液および酸水溶液界面の構造解析に関して新たな進展を得た。電解質水溶液界面におけるイオンの分布は、誘電体モデルによる鏡像電荷を超えて、イオン種によって多様であることが近年の分子シミュレーションによって予想されているが、実験的に液体表面を観測する手段が乏しいことが検証を困難にしていた。そこで本研究グループでは、界面和周波分光の実験結果を精密に解析し、 Br^- や I^- のようなアニオンでは確かに界面から露出する状態が実験的に観測されていることを実証し、詳細に報告した。また酸水溶液界面に対しても同様の解析を行い、ヒドロニウムイオン H_3O^+ が界面第 1 層で特異的に存在することの確かな証拠を与えることができた。これらは、和周波分光の有効性を拡大するうえでも重要な成果となった。
- b) 電子分極の効果は、凝縮相中での分子間相互作用を記述する上で非常に重要であるとともに、上記の和周波分光を支配する非線形分極を表現するうえでも必要である。本年は、水溶液系の分極および分極率を時々刻々に計算するための分子モデルを開発し、上記の計算に応用した。さらに和周波分光を記述できる分子モデルの一般化を目指して、charge response kernel (CRK) 理論に基づいて、アルキル分子鎖の分子モデリング手法を開発した。

B-1) 学術論文

- T. ISHIYAMA and A. MORITA**, "Molecular Dynamics Study of Gas-Liquid Aqueous Sodium Halide Interfaces I. Flexible and Polarizable Molecular Modeling and Interfacial Properties," *J. Phys. Chem. C* **111**, 721–737 (2007).
- T. ISHIYAMA and A. MORITA**, "Molecular Dynamics Study of Gas-Liquid Aqueous Sodium Halide Interfaces II. Analysis of Vibrational Sum Frequency Generation Spectra," *J. Phys. Chem. C* **111**, 738–748 (2007).
- T. ISHIYAMA and A. MORITA**, "Molecular Dynamics Analysis of Interfacial Structures and Sum Frequency Generation Spectra of Aqueous Hydrogen Halide Solutions," *J. Phys. Chem. A* **111**, 9277–9285 (2007).

B-4) 招待講演

森田明弘, 「エアロゾル表面の分子論と界面物質移動の理論的検討」第 1 回「エアロゾルの核生成 - CCN - 雲微物理 - 気候システム」ワークショップ, 横浜, 2007 年 2 月.

A. MORITA, "Molecular dynamics study of interfacial sum frequency generation spectroscopy," 12th Korea-Japan Joint Symposium on Frontiers of Molecular Science "Leading-Edge and the Future of Photo-Molecular Science," Jeju (Korea), July 2007.

A. MORITA and T. ISHIYAMA, "Computational Analysis of Interfacial Sum Frequency Generation Spectroscopy," 234th ACS National Meeting, Symposium on "Recent Advances in Studies of Molecular Processes at Interfaces," Boston (U.S.A.), August 2007.

森田明弘, 「分子軌道計算に基づくモデリングとMD計算の組み合わせによる界面和周波発生分光の第一原理的シミュレーション手法の開発」分子研研究会「分子科学における連成シミュレーションの基礎理論と応用」岡崎, 2007年8月.

A. MORITA, "Theoretical Aspects of Interfacial Sum Frequency Generation Spectroscopy," 1st Asian Science Forum, Sendai, September 2007.

森田明弘, 「分子シミュレーションと和周波分光で探る溶液界面の電気二重層構造の多様性」第27回物理化学コロキウム, 山形, 2007年9月.

森田明弘, 「界面和周波分光における実験と理論のインタープレイ」科研費特定研究「実在系の分子理論」A02, A03班合同研究会, 東京, 2007年11月.

A. MORITA, "Local Interface Structure of Electrolyte Solutions Probed by Sum Frequency Generation and Molecular Simulation," 2nd Japan-Czech-Slovakia Joint Symposium for Theoretical/Computational Chemistry, Kyoto (Japan), December 2007.

B-6) 受賞、表彰

森田明弘, 平成18年度分子科学奨励森野基金 (2006).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

分子構造総合討論会実行委員 (2003).

第19回分子シミュレーション討論会実行委員 (2005).

第22回化学反応討論会実行委員 (2006).

第13回理論化学シンポジウム代表世話人 (2006).

第1回分子科学討論会実行委員 (2007).

学会誌編集委員

分子シミュレーション研究会誌「アンサンブル」編集委員 (2007-).

科学研究費の研究代表者、班長等

奨励研究(A)-若手研究(B) 代表者 (2001-2002).

基盤研究(C) 代表者 (2003-2005).

特定領域研究「実在系の分子理論」(公募)代表者 (2007).

B-10)外部獲得資金

奨励研究(A)- 若手研究(B),「成層圏エアロゾル表面での不均質大気化学の理論的研究」森田明弘(2001年-2002年).

基盤研究(C),「大気中エアロゾル表面構造と物質移動に関する理論的研究」森田明弘(2003年-2005年).

特定領域研究,「実験と理論の連携による界面和周波発生分光の解析」森田明弘(2007年).

山田科学振興財団派遣援助,「大気中エアロゾル表面構造の理論的研究」森田明弘(2001年).

C) 研究活動の課題と展望

本年度初頭に東北大学に転任となり,本年度は引き続き分子研の兼任として研究活動を行った。界面和周波分光の理論計算は世界的にも初めての試みであり,分子研在職中に上記のアイデアを具体化するうえで,分子研のスタッフや設備等には非常にお世話になったことを感謝したい。しかし今度萌芽的段階を超えて,界面現象の解明に大きく貢献できる実用的な理論的方法論とするためには,まだ多くの仕事が残されている。今後,理論自体を深化させるとともに,大規模計算を活用した幅広い応用を図って,研究の領域を広げてゆきたい。また,後進の指導にも新たに力を注いでゆきたいと考えている。

*) 2007 年 4 月 1 日東北大学大学院理学研究科教授,分子科学研究所教授兼任