

エネルギー密度解析(EDA)の開発とその応用

(早稲田大学理工学部) 中井 浩巳

近年の電子状態理論の発展により、ナノクラスターや生体分子など巨大分子に対しても高精度な量子化学計算が可能となりつつある。しかし、量子化学計算から得られるエネルギーは単一の量であり、エネルギー移動など系内部でのエネルギー変化をみることは困難である。我々が提案した Energy Density Analysis (EDA)は、HF/DFT 計算で得られる全エネルギーを構成原子に分割する簡便な解析方法である。これまでいくつかの現象に適用することにより、EDA の有用性を確かめてきた[1-4]。さらに、我々は EDA の有用性を広げるために、方法論的な発展も検討している。具体的には、

- (1) MM 場との相互作用の分割: EDA により、MM 場存在下における QM 部分のエネルギーを見積る。これにより、イオン結晶における Madelung ポテンシャル存在下のクラスターや SCRF 法などの溶媒効果を考慮した場合の溶質のエネルギーを検討する。
- (2) 相互作用エネルギー分割法との組合せ: Kitaura-Morokuma, RVS, CSOV 法との組合せにより、静電及び交換(ESX)・分極(PL)・電荷移動(CT)の各相互作用エネルギーを構成原子に分割する。
- (3) 結合領域へのエネルギーの分割: これまで原子にのみ分割していたエネルギーを、原子間にも分割するように再定式化し、化学結合の解析に利用する。
- (4) 動力学的手法との組合せ: ab initio molecular dynamics (AIMD)法との組合せにより、原子核の動的な過程を詳細に検討する。
- (5) 電子相関理論への拡張: CI, SAC(CC), MP 法に対する定式化およびプログラム化により、すべての電子状態理論に対する解析を目指す。
- (6) 励起状態理論への拡張: CIS, TDDFT, SAC-CI 法に対する定式化およびプログラム化により、励起に伴うエネルギー移動などを取り扱う。

本講演では、これらの方法論的な発展に加えて、いくつかの応用例を示す予定である。一例としてここでは、Si(100)表面のモデル Si_9H_{12} に CO が吸着する際の相互作用エネルギーを、上記(2)により各サイトに分割した場合の結果を示す(表 1)。

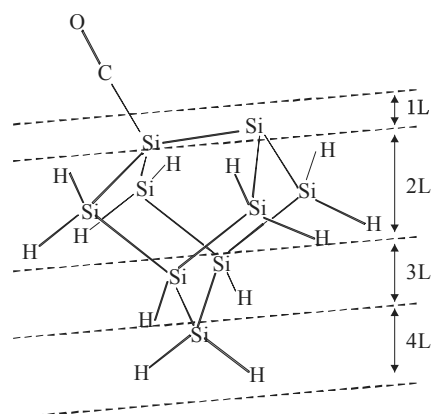


Fig. 1. Geometry of asymmetric adsorption of CO onto a Si_9H_{12} cluster.

Table 1. EDA/RVS results for CO/ Si_9H_{12} system (in kcal/mol).

	ESX	PL		CT		Sum	Full variational	
		S	A	S→A	A→S			
Adsorbate (A)	O	-2.2	-0.2	6.8	1.2	1.7	7.3	7.0
	C	37.8	-24.7	-15.5	-22.7	30.0	4.9	13.8
Surface (S)	1L	41.1	6.4	-9.7	-1.6	-51.4	-15.2	-17.6
	2L	-5.1	1.2	-1.3	7.7	-5.6	-3.2	-11.9
	3L	-2.1	0.5	0.0	1.2	-0.7	-1.1	0.9
	4L	-0.3	0.0	-0.2	0.3	-0.1	-0.3	-0.8
Total		69.3	-16.8	-20.0	-14.0	-26.2	-7.7	-8.5

[1] H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **363**, 73-79 (2002).

[2] H. Nakai, K. Sodeyama, *Chem. Phys. Lett.*, **365**, 203-210 (2002).

[3] Y. Kawamura, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.*, **368**, 673-679 (2003).

[4] H. Nakai, K. Sodeyama, *J. Mol. Struct. (THEOCHEM)*, **637**, 27-35 (2003).

金属クラスタの構造と反応性について

京都府立大学人間環境学部 リントゥルオト正美

1. 緒言 Pt、Pd、Rh を Al_2O_3 に添加した三元触媒(Pt-Pd-Rh/ Al_2O_3)は NO_x 浄化触媒として優れ実用化されているが、触媒の選択性、担持されている金属のクラスターサイズと活性の関連性、それぞれの金属の役割などのメカニズムの詳細は明確にわかっていない。そこで本研究では反応メカニズムや金属のクラスターサイズと活性の関連性、反応メカニズムなどを明らかにすることを目的とし、比較的小さな Pt、Pd、Rh クラスタ(サイズ $n=1-13$)の構造と安定性を調べ、続いて最も安定な構造への NO の吸着安定性について調べた。

2. 実験 DFT(B3LYP)法を用い、Pt、Pd、Rh には Hay-Wadt の ECP を用いた。各クラスターサイズで考えられる全ての isomer を仮定し、いろいろなスピン状態について構造最適化を行い、その安定性を比較した。また、NO 吸着については各クラスターにおける最安定構造への吸着を検討した。

3. 結果と考察 各クラスターサイズ($n=1-13$)において最安定であった構造を Figure 1 に示す。Pt、Pd、Rh すべてのクラスターにおいて $n=3$ までは平面構造であったが、 $n=4$ では立体的な構造が安定となった。Pt、Pd の $n=5$ では3つの立体構造が安定でエネルギー - 差は 2~3 kcal/mol であった。また、Pt クラスタの $n=6$ では左側の構造が bipyramidal 構造よりも約 7kcal/mol 安定となった。Pd において、 $n=1$ 以外の全てのクラスタ - サイズで triplet が安定であったのに対し、Pt においては $n=4$ では triplet が、 $n=5-7$ では高スピン状態である septet が、また、 $n=13$ では singlet が安定となった。

Pt、Pd 原子への NO 分子の吸着について調べたところ、それぞれ吸着安定化エネルギーは 50.3、30.2 kcal/mol となった。NO 分子は酸素側からではなく、窒素側から吸着し、さらに M-N-O は直線状ではなく屈曲した bent 型となっている。吸着により、金属から NO 分子へと電子が移動する back-donation がおこなわれていることがわかった。クラスターから NO 分子への電子移動について調べるために各クラスターサイズのイオン化ポテンシャルと吸着安定性について検討中である。 $n=2$ では Pt では on-top で Pt-N-O が直線状になる吸着構造が最安定とな

るのに対し、Pd では 2-fold site が最安定となった。また、吸着エネルギー - は Pt₂、Pd₂ に対して、各々 60.3、26.4kcal/mol であった。さらに他のクラスターサイズについて、その吸着の金属依存性やサイズ依存性について報告する予定である。

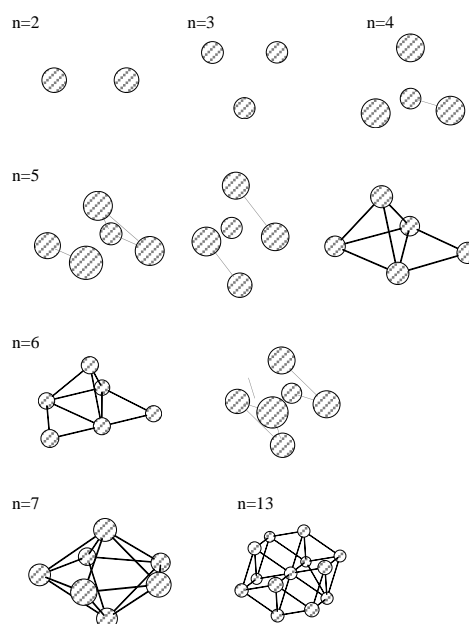


図 1. 各クラスターサイズにおける最安定構造

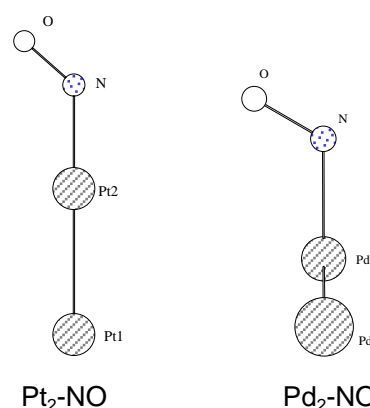


図 2. Pt₂、Pd₂ クラスタにおける NO 吸着構造

An extended hybrid density functional with accurate electronic and thermodynamic properties of molecular systems and improved intermolecular interactions in van der Waals complexes

Xin Xu ^{a,b} and William A. Goddard III ^b

^a *State Key Laboratory for Physical Chemistry of Solid Surfaces; Center for Theoretical Chemistry; Department of Chemistry, Xiamen University, Xiamen 361005, China.*

^b *Materials and Process Simulation Center, Beckman Institute (139-74), California Institute of Technology, Pasadena, California 91125*

The development of accurate functionals has made Density Functional Theory (DFT) the method of choice for first principles predictions of fundamental processes in materials ranging from metal alloys to semiconductors, to ceramics, to new catalysts. Despite this progress, there remain serious limitations in DFT theory. Thus the B3LYP method achieves a high accuracy (0.13 eV) for thermochemistry (heats of formation of the 148 molecules in the G2 reference set), but it predicts that the noble gas dimers are *unstable*. The PW1PW hybrid method leads to less accuracy (0.23 eV for G2) and far too strong bonding in noble gas dimers (~7 times the correct answer for He₂), and indeed leads to very strong bonding even when the functional for electron correlation (which is responsible for London dispersion forces) is omitted. Similar results are obtained for other functionals of this class (mPW, PBE), suggesting that these exchange functionals include some correlation effects, making it difficult to combine them with true correlation functionals.

The particular application motivating us to reexamine the functionals in DFT is the possibility of genome-wide structure-based drug design. The genomics revolution is providing an opportunity for computation and theory to help develop new generations of drugs (agonists and antagonists) that are both very active and very specific (binding maybe to just one protein out of all the proteins of life so as to minimize toxic side effects). However, for theory and computation to play this role, *it is essential that the non-covalent interactions of ligands to proteins be accurately predicted*. Thus it is *essential to accurately describe: London dispersion forces* (van der Waals attraction) *along with electrostatic and hydrogen bond interactions*. The current generations of DFT methods do not provide this accuracy.

We derive the form for an exact exchange energy density for a density decaying with Gaussian-like behavior at long range. Based on this, we develop the X3LYP extended functional for density functional theory to significantly improve the accuracy for hydrogen-bonded and van der Waals complexes while also improving the accuracy in heats of formation, ionization potentials, electron affinities, and total atomic energies (over the most popular and accurate method, B3LYP). X3LYP also leads to a good description of dipole moments, polarizabilities, and accurate s to d excitation energies for transition metal atoms and ions. We suggest that X3LYP will be useful for predicting ligand binding in proteins and DNA.

ゲート絶縁膜信頼性解析シミュレーション

牛尾二郎、渡邊喜久雄*、アブデルガファ・櫛田恵子*、丸泉琢也

日立製作所基礎研究所

*日立製作所中央研究所

背景：マイクロプロセッサの基本構造であるCMOS (complementary metal-oxide semiconductor) トランジスタは高性能化のための微細化がすすみ、ゲート絶縁膜

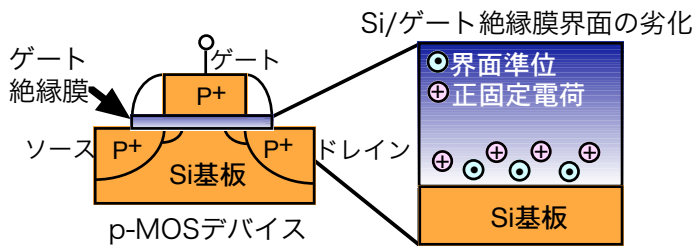


図1 p-MOSデバイス構造とSi/ゲート絶縁膜界面の劣化

の厚さは現在2 nmをきっている (図1)。それに伴いこれまで問題にならなかった現象がデバイスの特性および信頼性を左右するようになりつつある。絶縁膜材料として使われてきた二酸化シリコン (SiO₂) が極薄膜

化され、SiO₂バルクの性質よりシリコン (Si) との界面に特有のSiO₂構造変形や化学反応の影響が支配的になったためである。高温、ゲート負バイアス印加の条件でSi/SiO₂界面で界面準位と正固定電荷が発生し特性劣化につながるデバイス信頼性の問題 (NBT劣化: negative-bias temperature instability) について、劣化機構を実験とシミュレーションにより解析した。NBT劣化は界面のホットキャリア耐性向上のためSiO₂膜にNを導入すると激しくなることがわかっている。そのためまずN導入界面構造を特定し、その構造をもとにNを含まない場合と含む場合の劣化が異なる理由を検討して劣化機構の解明を目指した。

結果： (1) N導入Si/SiO₂界面構造：XPSによるN1sコアレベル測定、およびN原子の第2近接原子の影響を考慮したN1sコアレベルの計算からN原子近傍の構造を特定した。SiO₂膜に導入されたNはSi/SiO₂界面に偏析しN原子の3個の最近接原子はOとSiの2種類の原子からなることがわかった。またNが界面に偏析する原因を明らかにするため界面歪みエネルギーおよびN導入反応エネルギーを計算し、従来考えられていたN導入による界面歪みの緩和ではなく、N導入ガスのSiO₂とSiに対する反応性の違いが主要因であると結論した。

(2) 水起因および水素起因NBT劣化：NBT劣化に水あるいは水素の存在が必須であることから、水起因と水素起因2種類の機構の反応エネルギーを計算した。水起因劣化は水素起因より反応エネルギーが大きく、かつ界面がNを含む場合の値は含まない場合より大きいことから、水起因でより激しいNBT劣化が起きN導入によってさらに激しく劣化する事実を説明できる。水素起因反応について水素移動と正固定電荷発生の関係およびN導入の効果を評価して、プロトン発生ではなくホール捕獲反応でNBT劣化が始まる機構を提案した。

多次元分光法による凝縮系ダイナミクスの理論解析

(名大院理) 齊藤 真司

溶液内の化学反応は溶媒の揺らぎの影響を受け、生物学的過程ではタンパク質の揺らぎが機能発現に不可欠であるものも多い。このような時間的・空間的揺らぎは凝縮系反応ダイナミクスだけでなく、相転移過程や過冷却液体のダイナミクスの本質であり、超臨界状態のような高温・高圧状態においても、その物性・反応過程に非常に大きな影響をおよぼしている。このように揺らぎの理解は凝縮系の反応ダイナミクスの解明に不可欠であり、揺らぎ・運動の詳細な情報を獲得するための方法論および解析法を確立する必要がある。我々はそのような方法の1つとして多次元分光法に着目し、液体のダイナミクスや反応に重要な運動や揺らぎの解明をめざし研究を進めている。

多次元 NMR 法が1次元 NMR 法に比べ詳細な構造の情報を提供するように、多次元分光法は位相空間ダイナミクスの情報をもつ多時間相関で表され、1次元の分光法では得られない構造・ダイナミクスに関する情報を与える。すでに明らかにしたように、低振動数領域のラマン分光法は液体の構造変化に敏感であり、我々はラマン遷移を用いた多次元振動分光法の1つである2次元ラマン分光法[1]を用いて液体のダイナミクスの解析を行っている。2次元ラマン分光法では、時刻 0 、 t_1 、 t_1+t_2 の電場との相互作用により生ずる分極を測定する分光法で、その応答関数は t_1 と t_2 の2つの時間変数で表される(図1)。

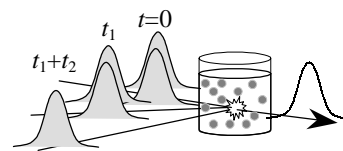


図1 2次元ラマン分光法の概略

図2, 3に分子動力学計算により求めた CS_2 液体および水の2次元ラマン分光法の結果を示す。これらの結果は調和振動子近似に基づくシグナル[2]と定性的に一致しているが、 CS_2 液体の $zzzzzz$ 分極成分などに見られる t_2 軸近傍の符号の変化や尾根など調和近似を用いた結果では考慮されていない液体の非調和ダイナミクスの影響を明らかにした。[3,4]この特徴は最近の実験結果にも見られる。[5]さらに、シグナルの運動成分を解析し、回転運動間の(異なる時間の)動的なカップリングが t_2 軸近傍の振る舞いに特に重要な寄与をしていることも明らかにした。[3,4]また、低温のアモルファス状態のシグナルとの比較から、液体状態では液体の構造変化による周波数変調の影響により $t_1=t_2$ に現れるエコーシグナルが弱められていることを明らかにし、2次元ラマン分光が液体の basin 内および basin 間の構造変化に敏感であることを明らかにした。[4]

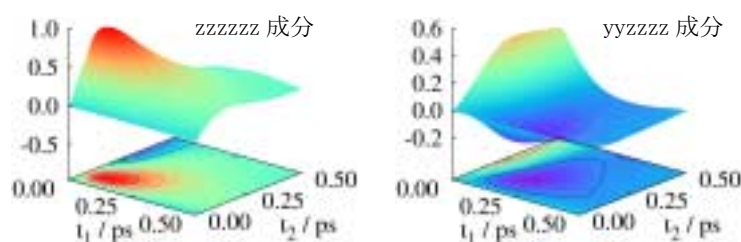


図2 CS_2 液体の2次元ラマンシグナル

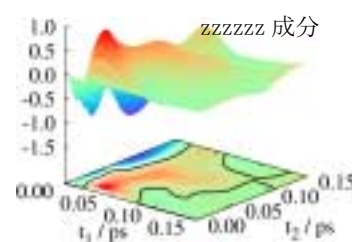


図3 水の2次元ラマンシグナル

[1] Y. Tanimura and S. Mukamel, J. Chem. Phys. **99**, 9496 (1993).

[2] S. Saito and I. Ohmine, J. Chem. Phys. **108**, 240 (1998).

[3] S. Saito and I. Ohmine, Phys. Rev. Lett. **88**, 207401 (2002).

[4] S. Saito and I. Ohmine, J. Chem. Phys. **119**, 9073 (2003).

[5] L. Kaufman, J. Heo, L. Ziegler, and G. R. Fleming, Phys. Rev. Lett. **88**, 207402 (2002).

SAC-CI on Gaussian03

(東京都立大学理学部) 波田雅彦

0. 緒言

2003年、多くの研究者から待望されていた SAC-CI 法の計算プログラムが Gaussian03 を通して公開された。この公開は 1978 年に Nakatsuji によってその理論が発表されてから四半世紀の通過点における重要な出来事のひとつであろう。SAC-CI 法の計算プログラムは Nakatsuji 自身によって 1985 年頃までにほぼ完成形となり(SAC85)、その後、多くの協力者からなる開発プロジェクトによって種々の改良が加えられ現在のプログラムに到達した。

本発表では、(1)現在の SAC-CI 法自身の機能、及び Gaussian03 上に移植された SAC-CI の機能、(2)開発の経緯、について発表者の知る範囲で述べた後、(3)SAC-CI 法を使った最近の研究、について報告する予定である。

. SAC-CI on Gaussian03 の機能

右図は SAC-CI の主要な機能を示している。general-R では 6 電子までの励起演算子を考慮することが可能となっており、多電子プロセスの計算において、信頼性が格段に向上した。スピン多重度も 7 重項まで拡張された。エネルギー勾配法を導入し、Gaussian のルーチンと結合することで、基底・励起分子の構造最適化ができるようになった。

Ground and Excited Wavefunctions

SAC -- singlet closed-shell state (ground state)

SAC-CI ... SD-R / General-R

— singlet excited state

— triplet ground and excited states

— ionized states, electron-attached states
(doublet ground and excited states)

— quartet to septet ground / excited states

Energy Gradient

geometry optimization for any above states
chemical reactions of excited molecules

.最近の研究例

我々による幾つかの最近の研究成果を報告する。高スピン分子の励起状態やイオン化状態の計算が可能となり、図1のような高スピン金属クラスターの解析が可能となっている。また、信頼性の高い SAC-CI のスピン密度を使い、図2のようなヘム錯体の常磁性 ^{13}C -NMR スペクトルを再現し、その解明に手がかりを与えた。

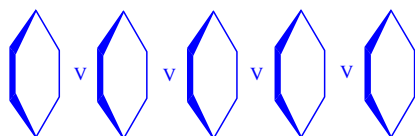


図1. $\text{V}_4(\text{C}_6\text{H}_6)_5$ クラスター

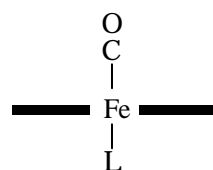


図2. ヘム錯体と ^{13}C -NMR スペクトル

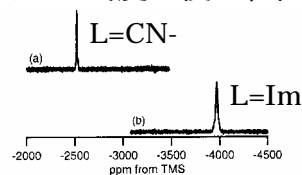


Figure 1. ^{13}C -NMR spectra of iron-bound ^{13}C of iron(III) protoporphyrinIX dimethyl ester in CD_2Cl_2 at 296 K. (a) Bis-cyanide complex. (b) Cyanide-imidazole complex.

Molecular Structures and Excited States of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ ($\text{Cp} = \eta^5\text{-C}_5\text{H}_5$; $\text{M} = \text{Rh, Ir}$) and $[\text{Cl}_2\text{Rh}(\text{CO})_2]^-$: SAC-CI Study*

Zhenming Hu

(Department of Chemistry, Dalhousie University, Canada)

Abstract

Since the discovery that the d^8 transition-metal dicarbonyls such as $\text{CpM}(\text{CO})_2$ and $\text{Cp}^*\text{M}(\text{CO})_2$ ($\text{Cp} = \eta^5\text{-C}_5\text{H}_5$, $\text{Cp}^* = \eta^5\text{-C}_5(\text{CH}_3)_5$, $\text{M} = \text{Rh, Ir}$) have the unique ability to activate the normally unreactive C-H bonds of alkanes upon light excitation, numerous experimental efforts have been made to understand their structures, spectra, and the details of the photoreaction mechanisms. Although considerable progress has been made over the past decade, the identity of the primitive photoproducts and their reactivities toward C-H/Si-H bond activations and ligand substitution are still actively debated.

In this work, we studied the molecular structures and excited states of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ ($\text{Cp} = \eta^5\text{-C}_5\text{H}_5$, $\text{M} = \text{Rh, Ir}$) and $[\text{Cl}_2\text{Rh}(\text{CO})_2]^-$ complexes by using the B3LYP and the symmetry-adapted cluster (SAC)/SAC-configuration interaction (SAC-CI) theoretical methods. The results show that all the dicarbonyl complexes have singlet ground electronic states with large singlet-triplet separations. Thermal dissociations of CO from the parent dicarbonyls are energetically unfavorable. CO thermal dissociation is an activation process for $[\text{Cl}_2\text{Rh}(\text{CO})_2]^-$ while it is a repulsive potential for $\text{CpM}(\text{CO})_2$. The natures of the main excited states of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ and $[\text{Cl}_2\text{Rh}(\text{CO})_2]^-$ are found to be quite different. For $[\text{Cl}_2\text{Rh}(\text{CO})_2]^-$, all the strong transitions are identified to be metal to ligand CO charge transfer (MLCT) excitations. A significant feature of the excited states of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ is that both MLCT excitation and a ligand Cp to metal and CO charge transfer excitation are strongly mixed in the higher energy states with the latter having the largest oscillator strength.

Current results are significant in that they present the theoretical evidence for a competitive charge transfer mechanism for $\text{CpRh}(\text{CO})_2$ and $\text{CpIr}(\text{CO})_2$. The wavelength dependence of the quantum efficiencies for the photoreactions of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ reported in the literatures can be explained by the existence of two different types of excited states. The origin of the low quantum efficiencies for the C-H/Si-H bond activations of $\text{CpM}(\text{CO})_2$ can be attributed to the smaller proportion of the MLCT excitation in the higher energy states.

*Celebrating Prof. Hiroshi Nakatsuji's 60th birthday

分子複合化による電子状態と電子的機能

熊本大院自然科学 杉本 学

1. はじめに

単純な機能をもつモジュールの組み合わせによって、個々の機能を複合化する、あるいは新しい機能を生み出すことができる。典型的な例は、複数の異種分子を結合し、電子移動やエネルギー移動という“情報量の流れ”を発生するものである。このような分子モジュールの複合化は、分子エレクトロニクス、機能性分子の開発研究における常套手段である。

既知の分子を building block とし、機能を設計する合成研究に対して、理論は有用な情報を提示できるであろうか？最近の電子論の進歩と計算機性能の向上によって、ある程度の分子機能については「計算すれば予測できる」状況にある。従って、数値計算を上手に駆使すれば、理論サイドからの提示が可能である。しかし、この状況に満足せず、分子構造論における静電力理論のような、計算に過度に依存しない理論・概念を構築できないであろうか？分子構造と物性の相関を解明する化学の基本問題に関わるという意味で、これは「化学原理の深化」に直結する問題であり、チャレンジする価値のある研究課題であるように思われる。

既知の分子を building block とする発想は、「分子を複合化しても個々のモジュールの性質が保持される」との前提に立っている。この考えは一見妥当に思われる。しかし、電子の非局在性という量子論的観点に立つと、その妥当性は必ずしも自明ではない。複合分子の電子的機能は、本来不可分であるように思われる。複合化後も個々のモジュールの性質がほぼ保持されるとすれば、その原因がどこかに潜んでいるはずである。

本講演では、分子の複合化と電子状態、電子機能の相関に関する理論的課題について議論したい。

2. 分子複合化に関する検討課題

[1] 構造モジュールと機能モジュールの区別

我々が実際に計算を行なって検討した複合分子の実例を示す。フェロセン(Fc) - アントラキノン(Aq) 複合錯体の励起状態をTDDFT法によって計算した。実験的には、FcとAqをエチニレン(-C≡C-)で結合した分子が合成されている。この錯体では、可視領域にFcからAqへの電荷移動(CT)型励起による吸収バンドが現れる。我々は、励起スペクトルにおける架橋部位の役割を調べる目的で、-C≡C-を-CH=CH-, -CH₂-CH₂-のように置換して計算を行なっ

た。その結果、メチレン鎖に置換する、あるいは架橋部位を取り除いた場合、CT型励起状態はエネルギー的にはほぼ同じ位置に計算されるが、その遷移の振動子強度はほぼゼロになることが分かった。これは、“励起エネルギー”という物性では架橋部位の影響が現れないのに対して、“吸収強度”という物性では架橋部位が本質的な役割を演じることを意味している。注目する物理量によって部分構造(架橋部位)の役割が異なることから、機能に応じてモジュールの定義が異なるとの認識に基づいて、複合化効果を解析する必要があるように思われる。

[2] 複合化における結合部位の役割

ジアリルエテンを介してアントラセン(D)とメチルピリジニウムイオン(A)を結合した複合分子では、ジアリルエテン部位の光環化によってD-A間の電子移動を制御することができる。これは、架橋部位の構造変化によって、複合化された2つのモジュール間の相互作用が変調を受けることを意味する。一方、ポルフィリン-キノン複合分子では、2つのモジュールを共有結合、水素結合のどちらで結合しても、同程度の速度で電子移動が起こる。これらの例から、機能発現における結合部位の電子的な役割を体系化する研究が必要であると思われる。

[3] 電子的応答と構造的応答

複合分子の一種である混合原子価錯体の電子状態は、RobinとDayの分類により3つに区別される。

- (1) 金属間の電子的相互作用がなく、電荷移動が観測されない。(クラスI)
- (2) 金属間に弱い電子的相互作用があり、電荷移動が観測される。(クラスII)
- (3) 金属間の電子的相互作用が強く、金属原子が同じ酸化状態をとる。(クラスIII)

(1)(2)では電子が各金属原子(単核錯体)に局在化しており、(3)では複数の金属原子(単核錯体)に非局在化していることに相当する。この分類は、振電相互作用を考慮したモデルにより初めて説明される。従って、複合分子の性質を理解するには、電子的相互作用(電子的応答)と構造変化(構造的応答)の競合の様子を明らかにする必要があるように思われる。特に構造的応答については体系的な理解が必要である。

量子的化学原理の深化と実現
(Quantum Principles in Chemistry: Deepening and Realization)

中辻 博
京都大学大学院工学研究科合成・生物化学専攻

化学現象は幾つかの原理の発現の結果と考えることができる。なかでも量子力学的な原理は、化学の構造論・反応論・物性論を支配している原理として重要である。この原理をよく理解し深化するとともに、その具現化という立場から化学研究を推進することは、極めて有効な方法のひとつであり、創造性豊かな化学研究を切り拓く鍵であると言える。本学術創成研究はこの精神をバックボーンとして平成14年からスタートしたもので、私たちの研究室では18年度に亘って次のテーマで研究を行う。

- 1．量子化学基礎理論の精密化と再構築
- 2．ファインなスペクトロスコピー
- 3．巨大分子系の電子状態理論の構築
- 4．生体反応系の電子論

ここでは、これらのテーマを概観した上で、とくに第一のテーマを取り上げ、最近の進歩についてお話したい。