

ワークショップ
「複雑物質系の分子理論の発展」
名古屋大学東山キャンパス ES総合館・ESホール
令和6年3月14日

“複雑物質系の分子反応理論を目指して” “Toward the Theory of Molecular Reactions in Complex Material Systems”



長岡正隆
Masataka Nagaoka



名古屋大学 情報学部/大学院情報学研究科
自然情報学科 複雑システム系/複雑系科学専攻
(名大情報文化学部/大学院人間情報学研究科
平成10年7月採用)



今日の内容



- 第一章 はじめに
- 第二章 “福井研”を目指して！ 物理から化学へ！
- 第三章 続け、ノーベル賞！
- 第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち！？
それまでしてきたことが
“新しく”始めることに繋がる！
- 第五章 展開 複雑性に向かって
- 第六章 おわりに ～“フクイ研精神”を継承できているか？～
- 第七章 謝辞

JOURNEY
『DEPARTURE』
CDアルバム

※著作権の関係上
画像を非表示と
しております



今日の内容



- 第一章 はじめに
- 第二章 “福井研”を目指して！ 物理から化学へ！
- 第三章 続け、ノーベル賞！
- 第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち！？
それまでしてきたことが
“新しく”始めることに繋がる！
- 第五章 展開 複雑性に向かって
- 第六章 おわりに ～“フクイ研精神”を継承できているか？～
- 第七章 謝辞

JOURNEY
『DEPARTURE』
CDアルバム

※著作権の関係上
画像を非表示と
しております



第一章 はじめに

:01



@Suzaka_High_School



NHK にんげんどキュメント
「天高く龍を作れ
～長野 須坂高校文化祭～」
(2006.9.8 放映)

※著作権の関係上
画像を非表示としております

朝日新聞
DIGITAL

“設計図”は残さず“心”つなぐ 高校生が半年かけて作った巨大竜を燃やす夜

清水大輔2023年7月1日 8時00分



“生徒が半年以上かけて**巨大な竜のオブジェ**を制作し、文化祭に向けてグラウンドに建立する。後夜祭でそれを**解体し、燃やす**。長野県立**須坂高校**（須坂市）で半世紀近く、…受け継がれる伝統行事だ。…

近くに**臥竜山**という山があり、校章がリンドウ（竜胆）の一つ「ミヤマリンドウ」であ

ることなどから、同校では竜をシンボルとした「**りんどう祭**」（文化祭）で生徒がオブジェを作る。この伝統は1967年に竜の首から上を作ったのが始まりである。

半世紀前、物理教師は言った

分厚い木材を骨格とし、年によって高さ10メートルを超える。しかし、設計図の引き継ぎはないという。50年前、最初に中心となって骨格を設計した、建築士の資格を持つ**物理教師**の言葉が今も語り継がれているという。「**設計図は（残さず）燃やせ**」。

今年の竜制作でリーダーは言う。「そこが面白いところであり、いいところ。**つなげていくのは（設計図という）紙ではなく、気持ちなんです**」。”

略歴

紀元前BC

77(S52)0322須坂高等学校卒業

82(S57)0316京大工石化卒業

84(S59)0314同院修士 修了

87(S62)0311同院博士 修了

88(S63)0410JSPS*研究員(基礎化研)

91(H03)0407基礎化研 副主任研究員

93(H05)0605米白サマーツアー

97(H09)0901同上 主任研究員

98(H10)0100同上 退所 (福井先生 逝去)

98(H10)07名古屋大学 大学院 名大異動

10JST: 科学技術振興機構

10名古屋大学

10Lab Ncube誕生 !

02(H14)03国際会議 CRN³(化学反応現象に特徴的非平衡非正常性の説明)(基盤C)

02(H14)09教授(人間情報学)

03(H15)04教授(情報科学)

04(H16)0421世紀COE「計算科学フロンティア」

略歴

06(H18)10JST*戦略的創造研究推進事業: CREST「凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発」

07(H19)04小患

08(H20)12「すぐできる分子シミュレーションビギナーズ マニュアル」出版

12(H24)05MSCRS2012 (JST国際)

13(H25)10JST戦略的創造研究推進事業: CREST「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」

14(H26)04StudyCamp2014

15(H27)12PACIFICHEM2015

16(H28)04MSCRS2016 (JSPS日伯+名大)

17(H29)04教授(情報学部・情報学研究科)

18(H30)09還暦

20(R02)12PACIFICHEM2020

23(R05)03StudyCamp2022

世界史年表・地図 島井高孝 編、三上秀 編、林健太郎 編、堀米園三 編、吉川弘文館 (2024)

世界史年表・地図

すぐできる分子シミュレーションビギナーズ マニュアル

講談社サイエンスティフィク (2008)

SC 2014

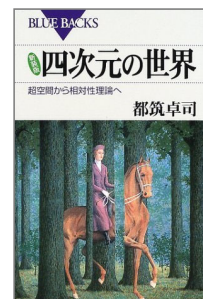
TOKYO 2020

2020



第二章 “福井研”を目指して！ 物理から化学へ！

京都大学入学（1978）



【新装版】四次元の世界」都筑卓司 講談社（2002）



湯川秀樹 日本人初の
ノーベル物理学賞を受賞
（1949）。



<https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/about/facilities/campus/clocktower>



「旅人—湯川秀樹伝」
（角川文庫）（1960）

CLOSE ENCOUNTERS
OF THE THIRD KIND

『未知との遭遇』
映画ポスター

**STAR
WARS**

エピソード4/新たなる希望

テレビアニメ
『銀河鉄道666』

※著作権の関係上、一部画像を非表示しております

京大入学（1978, BC21）

B1

Evening News 1978.7.27



試験管ベビー誕生（7月、英）

<https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/about/facilities/campus/clocktower>



**STAR
WARS**

エピソード4/新たなる希望

テレビアニメ
『銀河鉄道666』

NHK 連続テレビ小説
『ブギウギ』

キャンディーズ
解散コンサート

キャンディーズ解散（4月、後楽園）
（普通の女の子に戻った！）

NHK2023朝ドラ「ブギウギ」10月2日スタート、ヒロインは「キャンディーズ」の伊藤蘭さんの娘さん、趣里さん。

※著作権の関係上、一部画像を非表示しております

京大入学（1978, BC21）

B1

Evening News 1978.7.27



試験管ベビー誕生（7月、英）

<https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/about/facilities/campus/clocktower>



「京大交響楽団」部室前（東山近衛交差点北）
（部室は 1996年10月31日に火事で焼失）

京都市電が9月限りで全線廃止！

**STAR
WARS**

エピソード4/新たなる希望

TVアニメ『銀河鉄道666』

※著作権の関係上、
一部画像を非表示しております

福井謙一先生、日本人初！ ノーベル化学賞受賞（1981, BC17）



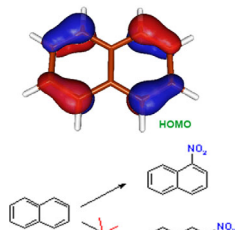
<https://www.kyoto-u.ac.jp/contentarea/ja/issue/kurenai/documents/25.pdf>



『007は二度死ぬ』
映画ポスター

※著作権の関係上、
画像を非表示としております

シリーズ映画第5作(1967)



https://people.chem.ucsb.edu/kahn/kalju/chem109C/FMO_Theory.html

“ 1981年、10月19日午後9時50分、電話のベルが鳴る。私と娘が、佳境に入ったショーン・コネリーの「007」に釘づけになっているのを横目に見ながら、夫が何気なく立って廊下にある電話器を取り上げる。…ふと夫の方を覗くと、少し赤みを帯びた表情で、眼が怒ったように見え、珍しく首筋に血管が浮いている。「そんなことははっきり言えませんか」「知らんですよ」などと押し問答の気配で少し変だと思いつつ、また視線をテレビに戻す。電話はまだ押し問答が続き、少し夫の声が高くなる。何かかと思いつつも「007」のアクションに気を取られていると、突然テレビの画面に、ニュース速報となって次の文字が現れた。「京大教授福井謙一氏ノーベル賞受賞」
(福井先生奥様文)



教授室でバンザーイ! (811020) B4



ANN NEWS

テロップ:「昭和のノーベル賞 日本人初の化学賞 福井謙一氏」



<https://flyteam.jp/photo/854929>



※著作権の関係上、一部画像を不鮮明または非表示としております

その年の 福井研究室の忘年会 ('81, BC17) B4 福井先生63歳



福井研究室忘年会(元田中「天寅」にて)
1981年12月26日(土)

ノーベル賞を受賞された先生方が愛した味



福井先生最後の卒論指導生('82春, BC16) B4

卒業論文:『一次元有限鎖モデルにおけるAnderson局在』



卒論発表会後 石油化学教室入口前
(昭和57年3月11日撮影)

49

一次元有限鎖モデルにおけるAnderson局在

著者: 山邊先生, 藤本先生, 田中先生

50

山邊先生

藤本先生

田中先生

ポケットコンピュータ
SHARP PC-1500

合成金属

87

Electron Localization in a Finite One-Dimensional Chain

KAZUOHI TANAKA, MAKATAKA NAGAOKA, AND TOSIYUKI YAMABE

Department of Hydrocarbon Chemistry, Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto, 606 Japan

Abstract

The localization characteristics of the electronic wave functions in a finite one-dimensional chain with the disorder of the off-diagonal elements of the Hamiltonian have been investigated. It has been shown that the appearance of the Anderson localization is strongly affected by the disorder in the off-diagonal elements of the Hamiltonian. The localization characteristics of the electronic wave functions in a finite one-dimensional chain with the disorder of the off-diagonal elements of the Hamiltonian have been investigated. It has been shown that the appearance of the Anderson localization is strongly affected by the disorder in the off-diagonal elements of the Hamiltonian.

『合成金属』(化学同人)



福井先生最後の卒論指導生('82春, BC16) ^{B4}

卒業論文：『一次元有限鎖モデルにおけるAnderson局在』

■非対角乱れでは全電子密度は変わらない！

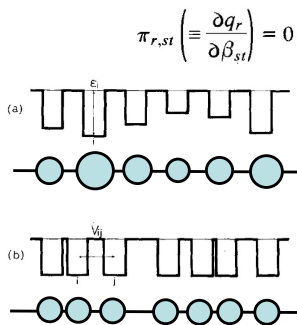
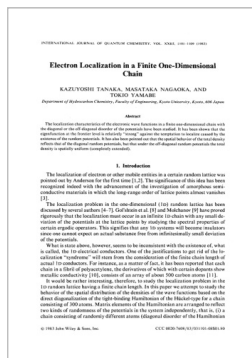


Fig 1. ポテンシャルと一次元鎖の概念図 (a)対角乱れと(c)非対角乱れ

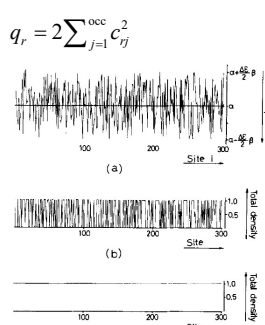


Fig 2. (a)ポテンシャルと全電子密度(b)対角乱れ(c)非対角乱れ

$$\pi_{r,st} = \frac{\partial q_r}{\partial \beta_{st}}, \quad \pi_{st,r} = \frac{\partial p_{st}}{\partial \alpha_r}$$

・ C.A. Coulson, H.C. Longuet-Higgins, *Proc. R. Soc. Londn*, **A192**, 16 (1947)



C.A. Coulson (1910-1974)
Oxford大('45-'47)
King's College London ('47-'??)

H.C. Longuet-Higgins (1923-2004)
Cambridge大('54-'67)
Edinburgh大('67-'74)

福井研最後の追コン! ('82春, BC16) ^{B4}

現在の「東山荘」は、2008年に新築されたようだ。
えう、情報!!



福井研最後の追コン! (820320) ^{B4}

福井研究室としての最後の一枚



略歴, Brief History



紀元前BC

- 77(S52)0322 須坂高等学校卒業
- 82(S57)0316 京大工石化卒業
- 84(S59)0314 同院修士 修了
- 87(S62)0311 同院博士 修了 **ICSM'86**
- 88(S63)0410 JSPS*研究員(基礎化研)
- 91(H03)0407 基礎化研 副主任研究員
- 93(H05)0605 米白サマーツアー
- 97(H09)0901 同上 主任研究員
- 98(H10)0100 同上 退所 (福井先生 逝去)

- 98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
- 10 JST* 科学技術振興機構 特定研究開発推進事業: **ACT-JST**「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクスの研究」
- 02(H14)03 国際会議 **CRN³**(化学反応現象に特徴的の非平衡非定常性の解明)(基盤C)
- 02(H14)09 教授(人間情報学)
- 03(H15)04 教授(情報科学)
- 04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

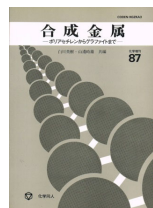
- 06(H18)10 JST*戦略的創造研究推進事業: **CREST**「凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発」
- 07(H19)04 小患
- 08(H20)12 「すぐできる分子シミュレーションビギナーズマニュアル」出版
- 12(H24)05 **MSCRS2012** (JST国際)
- 13(H25)10 JST戦略的創造研究推進事業: **CREST**「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」
- 14(H26)04 **StudyCamp2014**
- 15(H27)12 **PACIFICHEM2015**
- 16(H28)04 **MSCRS2016** (JSPS日伯+名大)
- 17(H29)04 教授(情報学部・情報学研究科)
- 18(H30)09 還暦
- 20(R02)12 **PACIFICHEM2020**
- 23(R05)03 **StudyCamp2022**





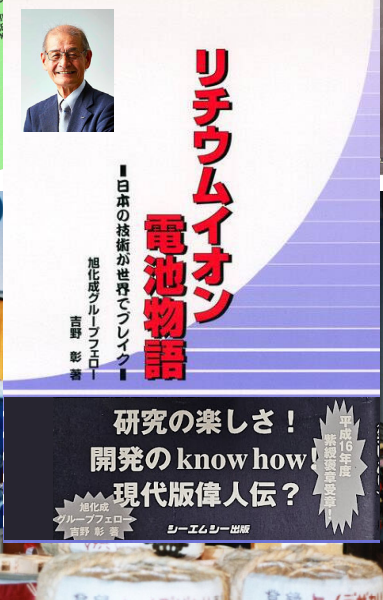
ICSM'86 (860601-06, BC12) D3

～“1986合成金属の科学と技術に関する国際会議”～



レセプション:
ホリディン京都

バンケット:
京都ホテル



「リチウムイオン電池物語 日本の技術が世界をリード」 吉野 彰 著 2004 シーエムシー出版



ICSM'86 (860601-06) D3

ウルトラセブン:
第14話
“ウルトラ警備隊
西へ(前編)”
(1968)

『ウルトラセブン』
Blu-ray



国立京都国際会館
KYOTO INTERNATIONAL
CONFERENCE HALL



テレビドラマ『ウルトラセブン』
第14話 “ウルトラ警備隊 西へ(前編)”

六甲防衛センターでのウルトラセブンと
キングジョーの戦闘シーン

※著作権の都合上、一部画像を非表示しております



ICSM'86 (860601-06) D3

ウルトラセブン:
第14話
“ウルトラ警備隊
西へ(前編)”
(1968)

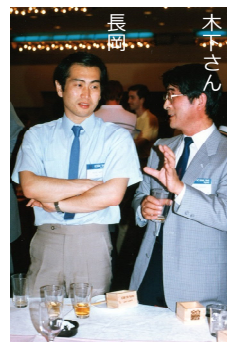
ウルトラセブン
Blu-ray



国立京都国際会館
KYOTO INTERNATIONAL
CONFERENCE HALL



超伝導 BCS理論



山邊研海水浴(伊根)(860828-30)



誰の
バッグ?



しばた荘
客間風景

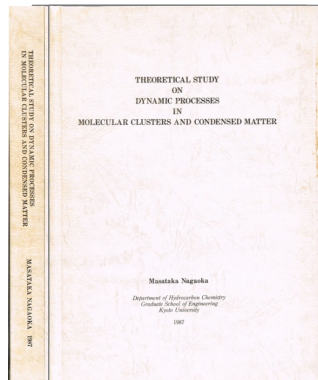
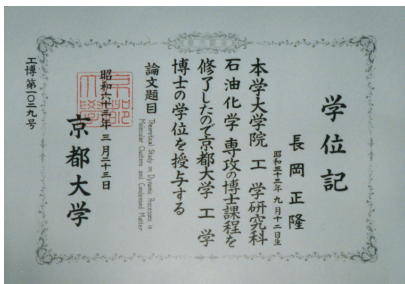




学位(工学博士)授与 ('88, BC10)



第21代京都大学総長 西島安則先生から学位記を手渡される。



研究題目： Theoretical Study on Dynamic Processes in Molecular Clusters and Condensed Matter

1988年3月、京都大学大学院工学研究科博士課程を修了、工学博士を授与される。



G.G.Hall教授 (副査のお一人)



略歴

紀元前BC

77(S52)0322 須坂高等学校卒業
82(S57)0316 京大工石化卒業
84(S59)0314 同院修士 修了
87(S62)0311 同院博士 修了 IFC
88(S63)0410 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)0407 基礎化研 副主任研究員
93(H05)0605 米白サマーツアー
97(H09)0901 同上 主任研究員
98(H10)0100 同上 退所 (福井先生 逝去)



今日の内容



第一章 はじめに

第二章 “福井研”を目指して！ 物理から化学へ！

第三章 続け、ノーベル賞！

第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち！？

それまでしてきたことが
“新しく”始めることに繋がる！

第五章 展開 複雑性に向かって

第六章 おわりに ～“フクイ研精神”を継承できているか？～

第七章 謝辞

JOURNEY
『DEPARTURE』
CDアルバム

※著作権の関係上
画像を非表示と
しております



第三章 続け、“ノーベル賞”！

:01

基礎化学研究所(現福井謙一記念研究センター)('88, BC10)



1988年4月1日、福井謙一先生の基礎化学研究所所長就任(6/1)に備えて、研究員として着任。



初顔合せ(三階食堂)(880601We, BC10)

館住所: 〒606 京都市左京区高野西園町3-4-4 TEL: 075-711-7008(代表)		
月 日	曜	行事その他の予定
5.10~	火	福井美奈子さん(74歳)の採用(月、火、木)
5.19	金	東京事務所開所
5.17~	火	長瀬実穂理事、朝倉事務局長着任
5.27	金	建物受渡し
5.27	金	福井先生の荷物搬入(京都工芸繊維大学より)
6. 1	水	職員顔合せ、館の説明等 若井美奈子さん(74歳)の採用
6. 3	金	10:00 写真撮影(日本経済新聞社) 10:30 記者会見(日本経済新聞社) 12:00 シニアランチ(全職員、約3階食堂) 2:00 福井先生の荷物搬入(京都工芸繊維大学より)
6. 4	土	11:00 福井先生、山邊先生、京都市訪問(挨拶)
6.14~ 8.15	火	Prof. and Mrs. J. M. Thomas着任 (Director and Assistant Professor, the Royal Institution of Great Britain) (留会: 館内留守 TEL: 771-7113)
6.14	火	2:00 基礎化学研究所訪問 4:00 Prof. Thomas 京大にてセミナー(分子工学、基礎化学関係)
6.17	金	12:00 理事会(終 東京パレスホテル)
6.22	水	Dr. Anita Enflo来日(京大招へい外国人学者) (留会: 京都市国際学生の家 TEL: 771-3445)
6.23~ 7. 1	木	山邊先生来館出張(1週間) 館、Anita En, New Mexico, U.S.A. 参加

鉛筆一本の文房具さえない真新しい建物に「よい、スタート!」といった感じで入館して、福井先生のお荷物の搬入などを手伝えました。

鉛筆一本の文房具さえない真新しい建物に「よーい、スタート!」といった感じで入館して、福井先生のお荷物の搬入などを手伝いました。



開所初日の記念撮影('88, BC10, 30) (敬称省略)



1988年6月1日、三階パントリー(食堂)での会食の後、説明会、記念撮影を経て、福井先生をお迎えした初日の大きな行事を済ませました。

研究所とは… 研究所では…

「緑と文化の京都」(KBS京都)より
福井謙一先生 インタビュー

※こちらの画像は著作権の都合上、非表示しております

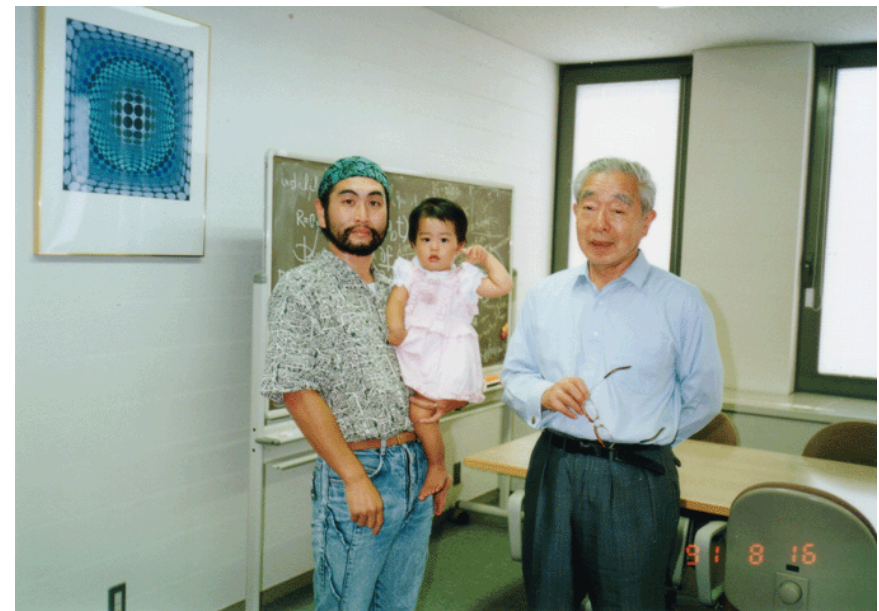
研究室102にて (1991)



奥山 直人博士
特任准教授(阪大)
衝撃科学
共同研究講座
((株)ダイセルとの
共同研究講座)

*For copyright reasons, the images are not displayed.

所長室にて (1991)



34

研究動機 # 1 絶対反応速度論

(反応論の標準理論)

The theory of rate process (International chemical series)
by Samuel Glasstone and others.
New York: McGraw-Hill, 1941.



“第八章 溶液反応”の中の言葉・・・

“・・・溶液中の化学反応の絶対反応速度論による取り扱いは、原理的には**気体反応**の場合と同じである。・・・しかし液相中の分子の分配関数に関しては多少の不確かさがあり、したがって、**溶液反応は気体反応におけるよりもっと基本的でない立場から取り扱う方が一層便利である。**”

(長谷川・平井・後藤 共訳)

気体反応:

$$k = \frac{k_B T}{h} \cdot K^\ddagger = \frac{k_B T}{h} \cdot \frac{F_\ddagger}{F_A F_B \cdots} e^{-E_0/RT}$$

分配関数の比

溶液反応(もっと基本的ではない立場): 活動度係数の比

$$k = \frac{k_B T}{h} \cdot K^\ddagger = \frac{k_B T}{h} \cdot \frac{c_M^\ddagger}{c_A c_B \cdots} = \frac{k_B T}{h} \cdot K_0^\ddagger \frac{\alpha_A \alpha_B \cdots}{\alpha_M^\ddagger}$$

真の平衡定数

<問題意識>

溶液反応も**基本的な立場**で扱うべきである!

→液相における分配関数を用いた絶対反応速度論!

表面反応
酵素反応
も含む!

研究動機 # 2 温度 T と時間 t

福井理論

1. フロンティア軌道理論
2. 極限的反応座標理論

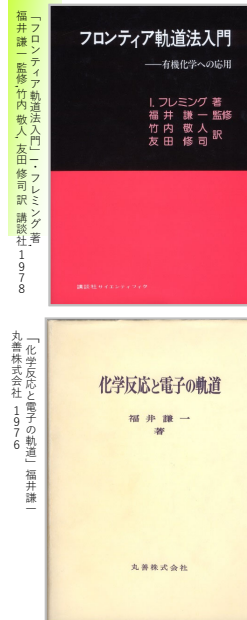
“・・・**フロンティア軌道理論**は溶液反応にも多くの場合有効であるが、時として反応分子や溶媒分子群のダイナミックな動きのために補正されなければならない。フロンティア軌道理論において、軌道は**静止した核配置に対して電子状態理論により定義される**からである。また、**極限的反応座標理論**も反応系が**無限に緩やかな速度で変化してゆく筋道** (“反応の一つの中心”(福井の言))に関する理論である。(月刊「化学」福井謙一先生追悼号より)”

“・・・溶媒効果(普通、活性化エントロピー項にきてくると考えられている)は、軟(ソフト)および硬(ハード)酸あるいは塩基の理論の説明の一部としてもよく知られている。・・・これからわかるように、フロンティア軌道の相互作用に基づいた議論は有用であるが、ここに述べた極めて重大な限界があることを忘れずに応用してほしい。(「フロンティア軌道法入門」より)”

<私の問題意識>

両理論には、ともに**二つのティー**(温度 T と時間 t)の概念が直接入っていない。

→ T と t を入れた理論を作りたい!

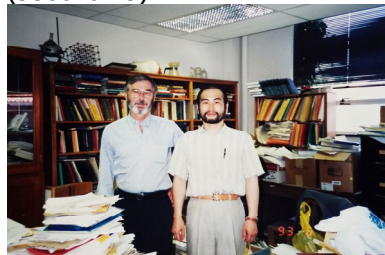




Rochester Newhampshire 米白サマーツアー：ACTC08 & ゴードンコンファレンス (’93夏, BC5)



W.A. Goddard III 研 (CALTECH) 訪問
(930610-13)



J.T. Hynes 研 (Colorado 大 @B) 訪問
(930613-16)



55年体制崩壊、細川政権誕生へ(総選挙930718)



Rochester Newhampshire 米白サマーツアー：ACTC08 & ゴードンコンファレンス (’93夏, BC5)



P. Wolynes 研 (Illinois 大 UC) 訪問
930620 (930616-20)



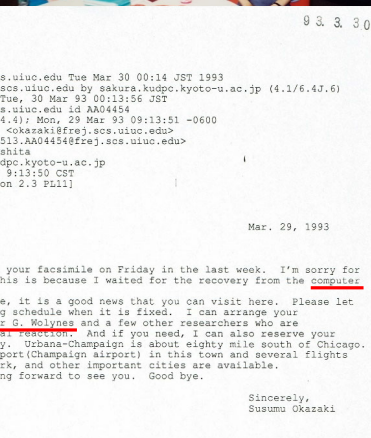
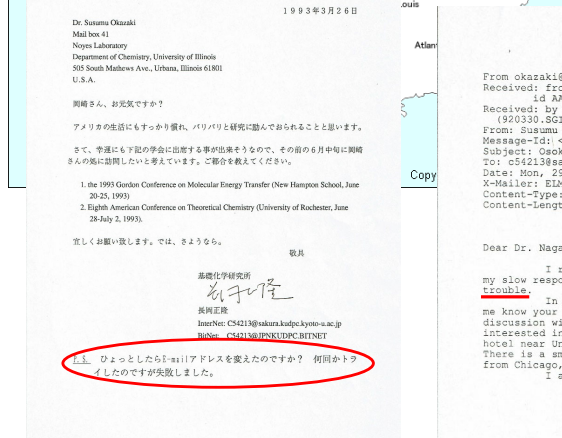
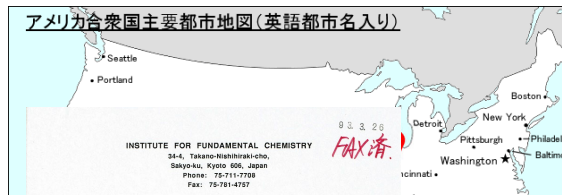
N. Makri 研 (Illinois 大 UC) 訪問 930618



TACC2023(N. Makri 教授) 230905



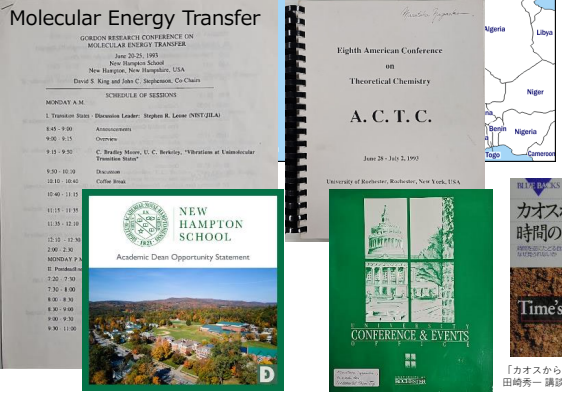
Rochester Newhampshire 米白サマーツアー：ACTC08 & ゴードンコンファレンス (’93夏, BC5)



Rochester Newhampshire 米白サマーツアー：ACTC08 & ゴードンコンファレンス (’93夏, BC5)



I. Pregogine 研 (ULB) 訪問
(930705-11)



NEC会長に会見、SX-4導入へ (950831, BC3, 37)

財団法人基礎化学研究所 バンプレットより

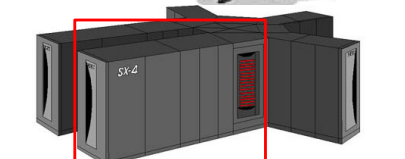


開所当時のマシン
CONVEX C1-XP



関本忠弘
NEC会長(当時)
(IFC理事)

<https://jp.nec.com/profile/corp/history/pdf/history-120.pdf>



https://www.fmslib.com/benchmarks/bench_nec4.html



©RIKEN

元(独)理化学研究所 次世代スーパーコンピュータ
開発実施本部 プロジェクトリーダー兼副本部長



略歴

紀元前BC

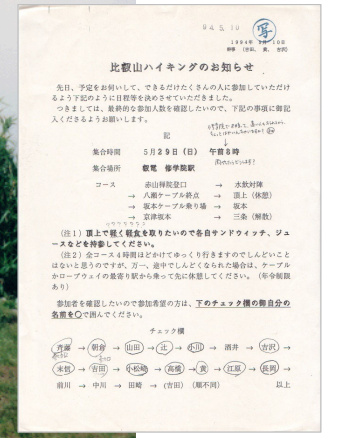
- 77(S52)0322 須坂高等学校卒業
- 82(S57)0316 京大工石化卒業
- 84(S59)0314 同院修士 修了
- 87(S62)0311 同院博士 修了 IFC
- 88(S63)0410 JSPS*研究員(基礎化研)
- 91(H03)0407 基礎化研 副主任研究員
- 93(H05)0605 米白サマーツアー
- 97(H09)0901 同上 主任研究員
- 98(H10)0100 同上 退所 (福井先生 逝去)

「比叡山ハイキング」-ロープウェイ駅にて-
伝説! (940529, BC4, in 36)



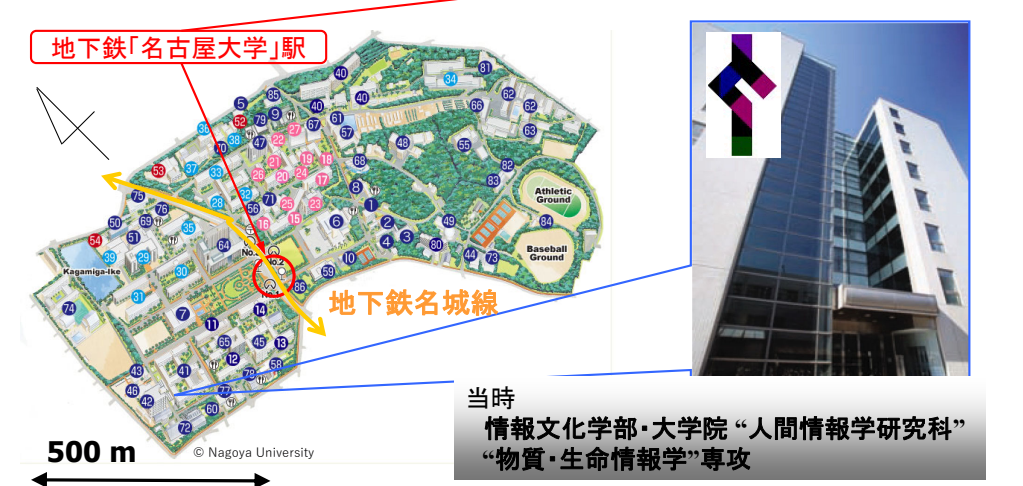
福井先生は、比叡山の阿闍梨に頂いた
という“杖”をいつも携帯していました。

- 山邊先生
- 齋藤常務理事
- メツエイ教授
- 福井先生
- 小松崎さん
- 朝倉事務長
- 末信君
- 黄さん
- 江原さん
- 古澤さん
- 高橋さん
- 長岡



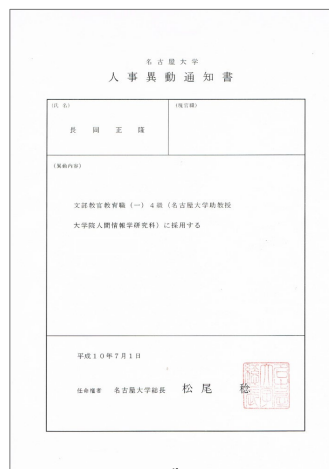
名古屋大学へ('980701, BC0)

秋

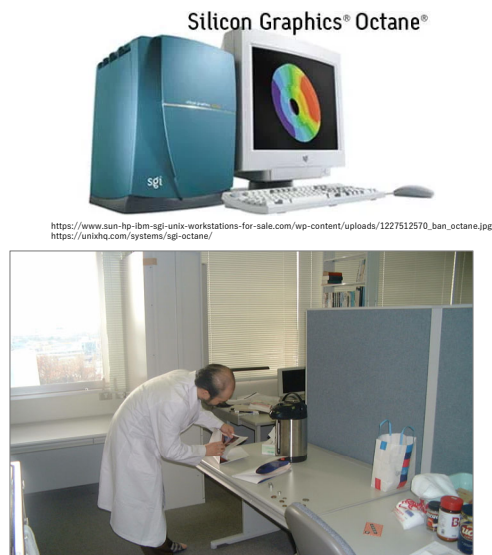


当時
情報文化学部・大学院“人間情報学研究科”
“物質・生命情報学”専攻

名古屋大学 大学院 人間情報学研究科 着任！ (’980701, AD0)



あまのぼ
“天入り”！？



今日の内容

- 第一章 はじめに
- 第二章 “福井研”を目指して！ 理論物理から理論化学へ！
- 第三章 続け、ノーベル賞！
- 第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち！？
- それまでしてきたことが
“新しく”始めることに繋がる！
- 第五章 展開 複雑性に向かって
- 第六章 おわりに ～“フクイ研精神”を継承できているか？～
- 第七章 謝辞

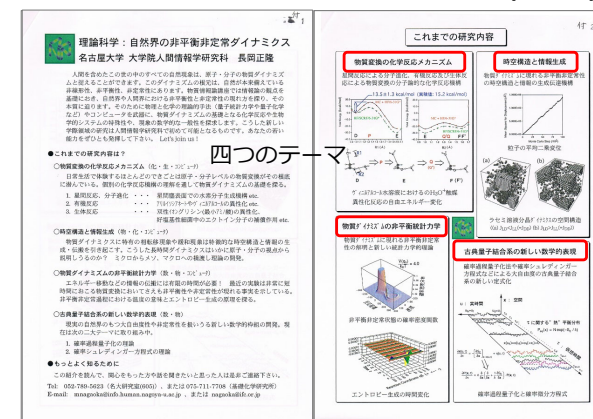
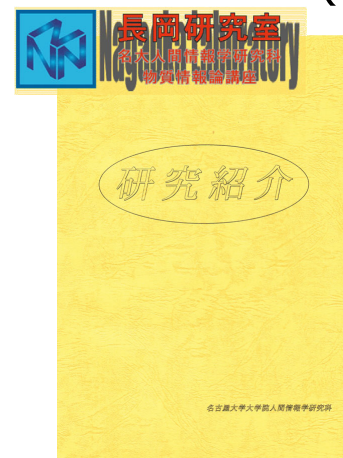
JOURNEY
『DEPARTURE』
CDアルバム

※著作権の関係上
画像を非表示と
しております

第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち!?

名古屋大学 大学院 人間情報学研究科 着任！ (’980701, AD0)

(1998)



(1998)

- 物質変換の化学反応メカニズム
- 時空構造と情報生成
- 物質ダイナミズムの非平衡統計力学
- 古典量子結合系の新しい数学的表現

(2024)

- 運動から非平衡系へ
- 孤立反応から凝集系化学反応へ
- 素反応から複合化学反応へ
- 分子から生命現象へ
- 並行コンピューティングからマルチスケール情報処理へ
- 実験と理論計算のインタープレイによる産業応用



自由エネルギー勾配法 (1998)

～溶液中における分子の形や反応を調べる方法～



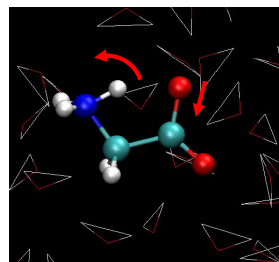
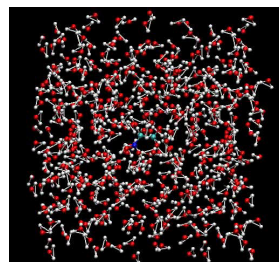
奥山博士

■溶液中の分子がどんな形をしているかを調べる方法

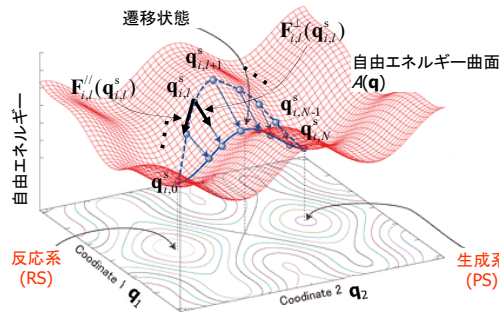
溶液中の平均的な力

$$\mathbf{F}_{i,l}^{\text{FE}}(\mathbf{q}_{i,l}^s) = -\frac{\partial A(\mathbf{q}_{i,l}^s)}{\partial (\mathbf{q}_{i,l}^s)} = -\left\langle \frac{\partial V_{\text{SB}}(\mathbf{q}_{i,l}^s)}{\partial (\mathbf{q}_{i,l}^s)} \right\rangle_i \approx 0,$$

■自由エネルギー $A(\mathbf{q}_{i,l}^s) = -k_B T \ln Z(\mathbf{q}_{i,l}^s)$ $l=0, \dots, N$



例 水溶液中のグリシンの異性化



QIR 10/rvk/gd/PQ) #1\ /IqW#11# xdgwp #Fkhp /
435 /# 535 #4 << ; ,#

Q Wdnhqnd /# N ldp xud /# N r | dqr /# W dvgd # # Q /#
Wkhr /# khp /# fwi /# 63 /# 48 +5344 ,#



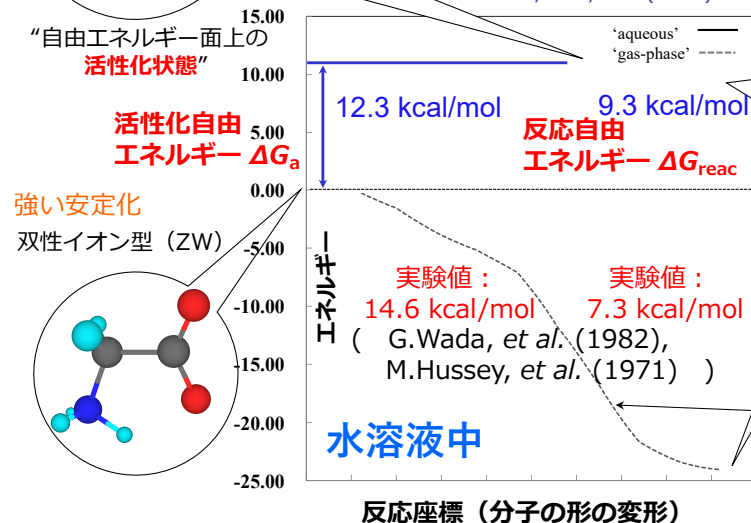
自由エネルギー勾配法により初めて求めることができた

反応自由エネルギーと活性化自由エネルギー

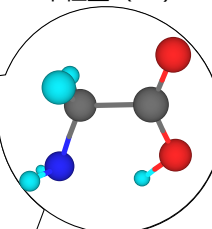


奥山博士

- N.O.-Yoshida, MN & TY, *J. Chem. Phys.*, **113**, 3519 (2000)
- N.Takenaka, Y.Kitamura, Y.Koyano, T.Asada & MN, *Theor. Chem. Acc.*, **130**, 215 (2011)

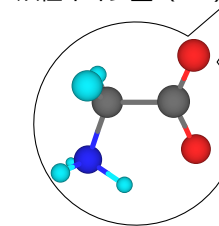


中性型 (NF)



それまでの計算で得られていたエネルギー曲線 (実験と矛盾!)

強い安定化
双性イオン型 (ZW)

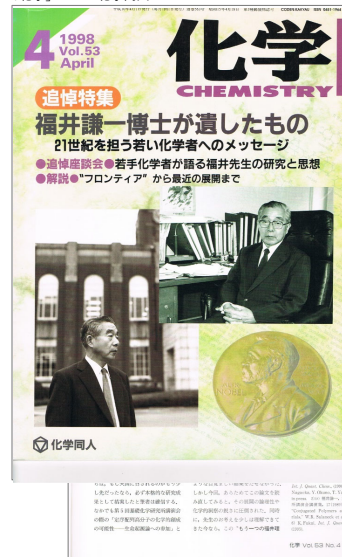


反応座標 (分子の形の変形)

『化学』特集号 – 福井謙一先生が遺したもの –

(’98, BC0, in 39)

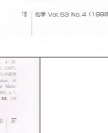
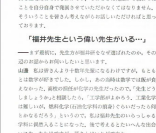
「化学」Vol.53 化学同人 1998



若手化学者
師を語る
福井謙一先生が遺したものの



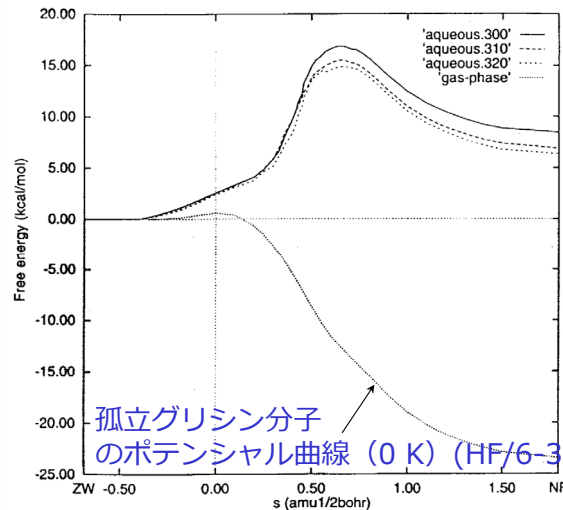
座談会 (980130) が開かれた
“聖徳院御殿荘”



活性化エネルギーの温度依存性

自由エネルギー計算から温度依存性を知ることができる！
(QM計算からでは求まらない情報!)

グリシン水溶液



孤立グリシン分子
のポテンシャル曲線 (0 K) (HF/6-31+G*)

MN, N.Yoshida, T.Yamabe, *JPC A*, **102**, 8202 (1998).

私たちは自由エネルギー勾配法を提案した。

Iuhh#IqhuJ | #Udg hqwP hwkrg#4<<;



原著論文:本質的な考え方と理論的基礎

Transition-State Optimization on Free Energy Surface: Toward Solution Chemical Reaction Ergodography

NAOTO OKUYAMA-YOSHIDA,¹* MASATAKA NAGAOKA,¹ TOKIO YAMABE²

¹ Institute for Fundamental Chemistry, 34-4, Takano-Nishihara-cho, Sakyo-ku, Kyoto 606, Japan
² Division of Molecular Engineering, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606, Japan

Received 10 June 1997; revised 17 April 1998; accepted 21 April 1998

ABSTRACT: To obtain a transition state (TS) in solution chemical reaction, a new TS optimization method has been proposed on a multidimensional free energy surface (FES). Analogue to the method for the Born-Oppenheimer potential energy surface (PES) in gas molecular orbital calculation, the present method utilizes force and Hessian on the FES, which can be calculated by molecular dynamics method and the free energy perturbation theory. Furthermore, on the basis of the method, we have proposed the definition of the intrinsic reaction coordinate (IRC) on the FES. According to not only the definition of the computational demand but also the comparison of the numerical accuracy, we conclude that our method should be more efficient than such other methods that utilize only the free energy. Finally, it is discussed that the TS optimization and the IRC on the FES should become very important tools to develop a new research field called solution chemical reaction ergodography. © 1998 John Wiley & Sons, Inc. *J Comput Chem* 19: 95–103, 1998

Keywords: transition-state optimization; free energy surface; intrinsic reaction coordinate; solution chemical reaction ergodography

*Present address: Research Center, Daiichi Chemical Industries, Ltd., 1235, Shirozaki, Aburahi, Hyogo 671-02 Japan.

Correspondence to: M. Nagaoaka
Program grant sponsor: Grant-in-Aid for Science Research from the Ministry of Education, Science and Culture in Japan
Program grant sponsor: Research for the Future Program of the Japan Society for the Promotion of Sciences
Project grant number: 97R-FTF00026

International Journal of Quantum Chemistry, Vol. 70, 95–103 (1998)
© 1998 John Wiley & Sons, Inc.

CCC 0202-7008/98/010095-09

TRANSITION-STATE OPTIMIZATION

presented in Section 2.2. Further, in Section 2.3, the method is applied to define the intrinsic reaction coordinate (IRC) on the FES. According to not only the definition of the computational demand but also the comparison of the numerical accuracy, we conclude that our method should be more efficient than such other methods that utilize only the free energy. Finally, it is discussed that the TS optimization and the IRC on the FES should become very important tools to develop a new research field called solution chemical reaction ergodography.

2.1. DERIVATIVES ON FES

To obtain numerically the free energy change itself, the MC method has been very efficient, because it does not need to evaluate the force but only the potential energy [9, 32]. However, to obtain the force on FES by the MC method, one must numerically differentiate the free energy with respect to the solute coordinates. It means that such calculations demand as many values of the free energy change as the solute degrees of freedom. It is true that one could employ the FEPT [9, 11, 29, 30] to obtain the numerical first derivatives on the FES should be calculated, and further, the evaluation of $N^3 \times N^3$ terms is necessary, where N^3 and N^3 denote the number of atoms in the solute and solvent molecules, respectively. On the other hand, for the numerical method, the Hessian is expressed

$$\mathbf{H}^{\text{FE}}(\mathbf{q}) = -\frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = -\left(\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2}\right) \quad (2.1a)$$

QUANTUM CHEMISTRY

Q IR 0\rvkIdp/ Q /N\dp deh/MT F /# 3/# 80436#4<<; #

OKUYAMA-YOSHIDA, NAGAOKA, AND YAMABE

9th International Congress of Quantum Chemistry
June 1-14, 1997
Tatara Conference Center
Osaka-Campus, Osaka
IYUQCC
Tatara University

FES, there are two methods (i) the analytic method and (ii) the numerical method. For the analytic method, the Hessian can be expressed as follows [18d]:

$$\mathbf{H}^{\text{FE}} = \frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = \left(\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2}\right) - \beta \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right) \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right)^T + \beta \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right) \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right)^T \quad (2.2)$$

where the superscript T denotes the transposition. While the second and third terms in the right-hand side of Eq. (2.2) can be usually calculated by MD simulations, the first term evaluation needs an additional procedure where the second derivatives on the FES should be calculated, and further, the evaluation of $N^3 \times N^3$ terms is necessary, where N^3 and N^3 denote the number of atoms in the solute and solvent molecules, respectively. On the other hand, for the numerical method, the Hessian is expressed

$$\mathbf{H}^{\text{FE}} = -\frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = -\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2} \quad (2.3)$$

In Eq. (2.3), the differentiation with respect to \mathbf{q} must be carried out numerically by the FEPT [9, 11, 29, 30]. According to the FEPT, the force deviation $\Delta \mathbf{F}^{\text{FE}}$ for changing from \mathbf{q} to $\mathbf{q} + \Delta \mathbf{q}$ is obtained

If \mathbf{q} is predicted enough
8. Set \mathbf{q}_i as step 2.

Iuhh#IqhuJ | #Udg hqwP hwkrg#4<<;



Transition-State Optimization on Free Energy Surface: Toward Solution Chemical Reaction Ergodography

NAOTO OKUYAMA-YOSHIDA,¹* MASATAKA NAGAOKA,¹ TOKIO YAMABE²

¹ Institute for Fundamental Chemistry, 34-4, Takano-Nishihara-cho, Sakyo-ku, Kyoto 606, Japan
² Division of Molecular Engineering, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606, Japan

Received 10 June 1997; revised 17 April 1998; accepted 21 April 1998

ABSTRACT: To obtain a transition state (TS) in solution chemical reaction, a new TS optimization method has been proposed on a multidimensional free energy surface (FES). Analogue to the method for the Born-Oppenheimer potential energy surface (PES) in gas molecular orbital calculation, the present method utilizes force and Hessian on the FES, which can be calculated by molecular dynamics method and the free energy perturbation theory. Furthermore, on the basis of the method, we have proposed the definition of the intrinsic reaction coordinate (IRC) on the FES. According to not only the definition of the computational demand but also the comparison of the numerical accuracy, we conclude that our method should be more efficient than such other methods that utilize only the free energy. Finally, it is discussed that the TS optimization and the IRC on the FES should become very important tools to develop a new research field called solution chemical reaction ergodography. © 1998 John Wiley & Sons, Inc. *J Comput Chem* 19: 95–103, 1998

Keywords: transition-state optimization; free energy surface; intrinsic reaction coordinate; solution chemical reaction ergodography

*Present address: Research Center, Daiichi Chemical Industries, Ltd., 1235, Shirozaki, Aburahi, Hyogo 671-02 Japan.

Correspondence to: M. Nagaoaka
Program grant sponsor: Grant-in-Aid for Science Research from the Ministry of Education, Science and Culture in Japan
Program grant sponsor: Research for the Future Program of the Japan Society for the Promotion of Sciences
Project grant number: 97R-FTF00026

International Journal of Quantum Chemistry, Vol. 70, 95–103 (1998)
© 1998 John Wiley & Sons, Inc.

TRANSITION-STATE OPTIMIZATION

presented in Section 2.2. Further, in Section 2.3, the method is applied to define the intrinsic reaction coordinate (IRC) on the FES, and we have also discussed the efficiency of the method and solution chemical reaction ergodography by the IRC on the FES in Section 3. Finally, the main results are summarized in Section 4.

2. Theory

According to the analogy of the FES to the Born-Oppenheimer PES obtained by an initial MO calculation, if we know derivatives on the FES, i.e., the force and Hessian, the ACM on the FES [31] could be applied to the optimization problems on the FES. From the viewpoint of the efficiency of calculation, because the ACM on the FES [31] has been superior to the function-only method (PFM) [32] that requires only the evaluation of the potential energy function and not its derivatives, for the present method of the derivatives on the FES, as discussed in this section, especially, paying attention to the efficiency of calculation.

2.1. DERIVATIVES ON FES

To obtain numerically the free energy change itself, the MC method has been very efficient, because it does not need to evaluate the force but only the potential energy [9, 32]. However, to obtain the force on FES by the MC method, one must numerically differentiate the free energy with respect to the solute coordinates. It means that such calculations demand as many values of the free energy change as the solute degrees of freedom. It is true that one could employ the FEPT [9, 11, 29, 30] to obtain the numerical first derivatives on the FES should be calculated, and further, the evaluation of $N^3 \times N^3$ terms is necessary, where N^3 and N^3 denote the number of atoms in the solute and solvent molecules, respectively. On the other hand, for the numerical method, the Hessian is expressed

$$\mathbf{H}^{\text{FE}}(\mathbf{q}) = -\frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = -\left(\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2}\right) \quad (2.1a)$$

INTERNATIONAL JOURNAL OF QUANTUM CHEMISTRY

CCC 0202-7008/98/010095-09

OKUYAMA-YOSHIDA, NAGAOKA, AND YAMABE

where $\mathbf{F}^{\text{FE}}(\mathbf{q})$ is a force vector on the FES, \mathbf{q} denotes a vector of the solute coordinates, $G(\mathbf{q})$ is a free energy function, V_{FE} is the sum of both the potential energy of the reactant and the interaction energy between the reactant and solvent molecules, and the brackets denote the time average that is equal to the equilibrium ensemble average, for example,

$$\langle \dots \rangle = \frac{\int d\mathbf{q}^s e^{-\beta V_{\text{FE}}(\mathbf{q})} \dots}{\int d\mathbf{q}^s e^{-\beta V_{\text{FE}}(\mathbf{q})}} \quad (2.1b)$$

where \mathbf{q}^s denotes a vector of the solvent coordinates, β denotes $1/k_B T$, and V is the whole system potential. Therefore, in the MD method, we can evaluate the force on the FES by Eq. (2.1a) without such additional efforts as the numerical differentiation.

On the contrary to calculate the Hessian on the FES, the Hessian can be expressed as follows [18d]:

$$\mathbf{H}^{\text{FE}} = \frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = \left(\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2}\right) - \beta \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right) \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right)^T + \beta \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right) \left(\frac{\partial V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}}\right)^T \quad (2.2)$$

where the superscript T denotes the transposition. While the second and third terms in the right-hand side of Eq. (2.2) can be usually calculated by MD simulations, the first term evaluation needs an additional procedure where the second derivatives on the FES should be calculated, and further, the evaluation of $N^3 \times N^3$ terms is necessary, where N^3 and N^3 denote the number of atoms in the solute and solvent molecules, respectively. On the other hand, for the numerical method, the Hessian is expressed

$$\mathbf{H}^{\text{FE}} = -\frac{\partial^2 G(\mathbf{q})}{\partial \mathbf{q}^2} = -\frac{\partial^2 V_{\text{FE}}}{\partial \mathbf{q}^2} \quad (2.3)$$

In Eq. (2.3), the differentiation with respect to \mathbf{q} must be carried out numerically by the FEPT [9, 11, 29, 30]. According to the FEPT, the force deviation $\Delta \mathbf{F}^{\text{FE}}$ for changing from \mathbf{q} to $\mathbf{q} + \Delta \mathbf{q}$ is obtained

If \mathbf{q} is predicted enough
8. Set \mathbf{q}_i as step 2.

Badajozグループは有効FEG法を開発しました！

—FEG法 via 平均溶媒静電ポテンシャル(ASEP)/MD法—



JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS

VOLUME 118, NUMBER 1

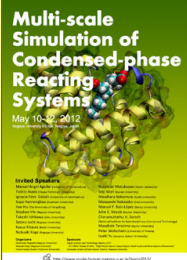
1 JANUARY 2003

Geometry optimization of molecules in solution: Joint use of the mean field approximation and the free-energy gradient method

I. Fdez. Galván, M. L. Sánchez, M. E. Martín, F. J. Olivares del Valle, and M. A. Aguilar
Departamento Química-Física, Universidad de Extremadura, Avda de Elvas s/n, 06071 Badajoz, Spain

(Received 17 June 2002; accepted 7 October 2002)

The average solvent electrostatic potential/molecular dynamics (ASEP/MD) and the free-energy gradient methods are applied together with the multidimensional geometry optimization of



F.J. Olivares del Valle and M.A. Aguilar, et al., *J. Chem. Phys.* **118**, 255 (2003)

San Pauloグループはもう一つ別の有効FEG法を開発しました！

—水中におけるピリジンの¹⁵N磁気遮蔽に対する溶媒誘起電子分極の影響—

Theor Chem Acc (2012) 131:1220

DOI 10.1007/s00214-012-1220-0

REGULAR ARTICLE

A simple analysis of the influence of the solvent-induced electronic polarization on the ¹⁵N magnetic shielding of pyridine in water

http://www.chemica.ufpb.br/sbt201
9-en/page9.html

Rodrigo M. Gester · Herbert C. Georg · Tertius L. Fonseca · Patricio F. Provasi · Sylvio Canuto

Received: 13 February 2012
© Springer-Verlag 2012

April 2012/Published online: 4 May 2012

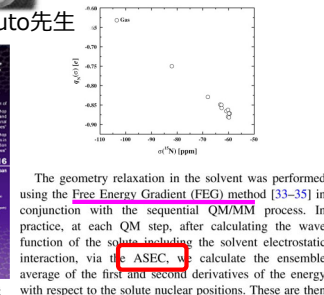
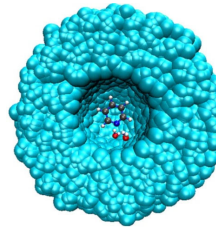
Abstract Electronic polarization induced by the interaction of a reference molecule with a liquid environment is expected to affect the magnetic shielding constants. Understanding the influence of the solvent-induced electronic polarization on the ¹⁵N magnetic shielding of pyridine in water as a model system to briefly investigate this aspect. Thus, Monte Carlo simulations and quantum mechanics calculations based on the B3LYP/6-311++G (d,p) are used to analyze different aspects of the solvent effects on the ¹⁵N magnetic shielding constant of pyridine in water. This includes in special the geometry relaxation and the electronic polarization of the solute by the solvent. The polarization effect is found to be very important, but, as expected for pyridine, the geometry

relaxation contribution is a average electrostatic model. The shielding constant is calculated in agreement with the experimental data. The explicit inclusion of hydrogens embedded in the electrostatic model of the solvent molecules gives the value of

Keywords NMR · Chemistry · Quantum Mechanics · QM/MM · Electronic polarization

1 Introduction

Nuclear magnetic resonance (NMR) is one of the most



R.M.Gester, H.C.Georg, T.L.Fonseca, P.F.Provasi, S.Canuto, *TCA*, **131**, 1220 (2012)

YangのグループもFEG法を開発しました！



— FEG法 via
QM/MM 最小自由エネルギー経路 (QM/MM-MFEP) 法 —

JCTC
Journal of Chemical Theory and Computation

QM/MM Minimum Free-Energy Path: Methodology and Application to Triosephosphate Isomerase
Hao Hu, Zhenyu Lu, and Wei Yang*
Department of Chemistry, Duke University, Durham, North Carolina 27708
Received July 21, 2006

Abstract: Structural and energetic changes are two important characteristic properties of a chemical reaction process. In the condensed phase, studying these two properties is very challenging because of the great computational cost associated with the quantum mechanical calculations and phase space sampling. Although the combined quantum mechanics/molecular mechanics (QM/MM) approach significantly reduces the amount of the quantum mechanical calculations and facilitates the simulation of solution-phase and enzyme-catalyzed reactions, the required quantum mechanical calculations remain quite expensive and extensive sampling can be achieved routinely only with semirelativistic quantum mechanical methods. QM/MM simulation restricted to narrow regions of the potential transition state, or the minimum energy path, is often performed with the QM/MM-free energy path, which is based on local conformations difficult to obtain in practice. To overcome the problem and to further enhance the sampling of the reaction coordinate, we propose a new method to determine the QM/MM free energy function for intramolecular proton transfer reaction of glycine in aqueous solution and in the free energy of the system as a function of the reaction coordinate. The free energy gradient method, which is based on molecular dynamics simulations at fixed free-energy gradients in hand, we further perform the search for the reaction path on the reaction coordinate. This method thus efficiently solution and enzyme reactions, with structural information and the dynamic information, we develop the reaction path potential (DP) for the minimum free-energy path. The path is comprehensive and accurate treatment and in enzymes with ab initio QM/MM methods, first step of the reaction of the enzyme with previous studies.

FEG Method

私達の論文

(51) Hirao, H.; Nagae, Y.; Nagao, M. Transition-state optimization by the free energy gradient method: Application to aqueous-phase Menschutkin reaction between ammonia and methyl chloride. *Chem. Phys. Lett.* **2001**, *344*, 350–356.

(52) Okuyama-Yoshida, N.; Nagao, M.; Yamabe, T. Potential energy function for intramolecular proton transfer reaction of glycine in aqueous solution. *J. Phys. Chem. A* **1998**, *102*, 285–292.

(53) Okuyama-Yoshida, N.; Kataoka, K.; Nagao, M.; Yamabe, T. Structure optimization via free energy gradient method: Application to glycine zwitterion in aqueous solution. *J. Chem. Phys.* **2000**, *113*, 3519–3524.

(54) Nagao, M.; Okuyama-Yoshida, N.; Yamabe, T. Origin of the transition state on the free energy surface: Intramolecular proton transfer reaction of glycine in aqueous solution. *J. Phys. Chem. A* **1998**, *102*, 8202–8208.

(55) Okuyama-Yoshida, N.; Nagao, M.; Yamabe, T. Transition-state optimization on free energy surface: Toward solution chemical reaction ergography. *Int. J. Quantum Chem.* **1998**, *70*, 95–103.

H. Hu, Z. Lu and W. Yang, *J. Chem. Theory and Comput.* **3**, 390 (2007)

FEG法は“メタダイナミクス法”の開発に影響を与えたに違いない！？

Escaping free-energy minima

Alessandro Laio and Michele Parrinello*

Centro Svizzero di Calcolo Scientifico, Via Cantonale, CH-6928 Manno, Switzerland; and Department of Chemistry, Eidgenössische Hönggerberg HCI, CH-8093 Zurich, Switzerland

Communicated by David Chandler, University of California, Berkeley, CA, July 18, 2002 (received for review May 8, 2002)

We introduce a powerful method for exploring the properties of the multidimensional free energy surfaces (FES) of complex many-body systems by means of coarse-grained non-Markovian dynamics in the space defined by a few collective coordinates. A characteristic feature of these dynamics is the presence of a history-dependent potential term that, in time, fills the minima in the FES, allowing the efficient exploration and accurate determination of the FES as a function of the collective coordinates. We demonstrate the usefulness of this approach in the case of the dissociation of a NaCl molecule in water and in the study of the conformational change of a dialanine in solution.

microscopic dynamics, to define coarse-grained dynamics in the space of the s s. In our case the definition of these dynamics is rather arbitrary and designed only to explore the FES efficiently. The dynamics is defined from the discretized evolution equation

FEG法は十分に普及した!!

The scaled forces $\tilde{F}_i = F_i / \Delta s_i$, where Δs_i is the estimated size of the FES well in the direction s_i , is the modulus of the n -th dimension of the potential. The FES is much smoother than the underlying PES and it is topologically simpler, with a greatly reduced number of local minima. The history-dependent bias prevents the system from visiting regions it has already explored. This term is crucial for the efficiency of the method: for example, Langevin dynamics in the space of the collective coordinates would provide scant information on the underlying

potential methods (5, 6, 9, 18) allow an accurate FES in many dimensions. The drawback of these methods is that they are efficient only if a good approximation is known *a priori*, whereas this is not required in our

range of the method is its ability to provide information on the free energy of a system in a very simple manner. For example, the overall topology of a FES can be determined by very few coarse-grained dynamics steps by using large Gaussians. Subsequently, our qualitative knowledge of the FES can be improved by using smaller Gaussians, eventually reducing the dimensionality of the problem by exploiting the topological information obtained with the large Gaussians. M.P. thanks Yannis Kevrekidis for a very helpful discussion on the coarse-grained method and David Chandler for his understanding of the statistical mechanics. Thanks Joost Van de Vande for many pre-

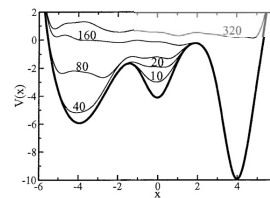


Fig. 1. Time evolution of the sum of a one-dimensional potential $V(x)$ and the accumulating Gaussian terms of Eq. 2. The dynamic evolution (thin line) is labeled by the number of dynamical iterations (Eq. 1). The starting potential (thick line) has three minima and the dynamics is initiated in the second minimum.

1. Carter, E. A., Cicotti, G., Hynes, J. T., & Krapal, R. (1989) *Chem. Phys. Lett.* **156**, 472–477.
2. Huber, T., Torda, A. E., & van Groenou, W. F. (1994) *J. Comput. Chem.* **15**, 805–808.
3. Grambow, H. (1995) *Phys. Rev. E* **52**, 2005–2006.
4. Spier, M., & Cicotti, G. (1998) *J. Chem. Phys.* **109**, 7377–7384.
5. Voter, A. F. (1997) *J. Chem. Phys.* **106**, 4665–4677.
6. Voter, A. F. (1997) *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3908–3911.
7. Steiner, M. M., Gendron, P. A., & Wilkins, J. W. (1998) *Phys. Rev. B* **57**, 10236–10239.
8. Gong, X. G., & Wilkins, J. W. (1999) *Phys. Rev. B* **59**, 54–57.
9. Van de Vande, J., & Rothlisberger, U. (2000) *J. Chem. Phys.* **113**, 4863–4868.
10. Okuyama-Yoshida, N., Kataoka, K., Nagao, M., & Yamabe, T. (2000) *J. Chem. Phys.* **113**, 3519–3524.
11. Wang, P., & Landau, L. P. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2050–2053.
12. Van de Vande, J., & Rothlisberger, U. (2002) *J. Phys. Chem. B* **106**, 203–208.
13. Rabman, J. A., & Tully, J. C. (2002) *J. Chem. Phys.* **116**, 8750–8760.

Laio and Parrinello

PNAS | October 1, 2002 | vol. 99 | no. 20 | 12565

A. Laio and M. Parrinello, *PNAS*, **99**, 12562 (2002)

略歴



紀元AD

06(H18)1008 JST*戦略的創造研究推進事業: CREST「凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発」

07(H19)0409 小患

08(H20)1210 「すぐできる分子シミュレーションビギナーズマニュアル」出版

12(H24)0515 MSCRS2012 (JST国際)

13(H25)1016 JST戦略的創造研究推進事業: CREST「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」

14(H26)0417 StudyCamp2014

15(H27)1218 PACIFICHEM2015

16(H28)0419 MSCRS2016 (JSPS日伯+名大)

17(H29)0420 教授(情報学部・情報学研究科)

18(H30)0921 還暦

20(R02)1223 PACIFICHEM2020

23(R05)0325 StudyCamp2022

98(H10)0700 名古屋大学 大学院 名大異動 人間情報学研究科 助教授

*JST: 10 JST*計算科学技術活用型 特定研究開発推進事業: ACT-JST「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス研究」 “非線形非平衡非定常”誕生!!

02(H14)0304 国際会議 CRN³(化学反応現象に特徴的な非平衡非定常性の解明)(基盤C)

02(H14)09 教授(人間情報学)

03(H15)0405 教授(情報科学)

04(H16)0406 21世紀COE「計算科学フロンティア」

ACT-JST「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクスの研究」採択 ('981117, AD0)

凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクスの研究

長岡 正隆
(名古屋大学 大学院人間情報学研究科 助教授)

量子化学や分子動力学法などの計算科学的手法と食塩分散技術に基づき、非平衡性、非平衡性、非平衡性を加味した凝集系化学反応の新しい標準理論を確立する。更に環境問題などに現れる現象でも実証的応用を行う。

図 凝集系に現れる非線形・非平衡・非定常性とその特徴

計算科学技術活用型特定研究開発推進事業 研究開発推進事業採択について

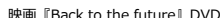
計算科学技術活用型特定研究開発推進事業 研究開発推進事業採択について

大きな出来事!

応募を助めてくれた
笹井理生先生
(当時 名大院人間情報学研究科教授)

**T「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス
の研究」採択（'981117, AD0）**

このプロジェクトが、もし採択されていなければ歴史が変わって・・

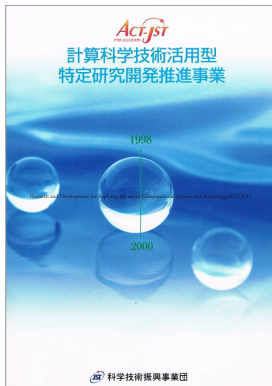


『バック・トゥー・ザ・フューチャー』
(R.Zemeckis, 1985)

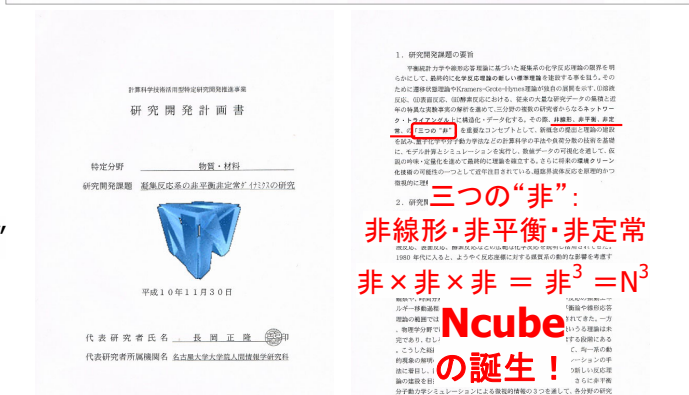
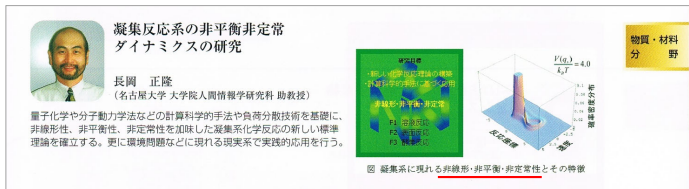
※著作権の関係上、一部画像を非表示
または不鮮明としております



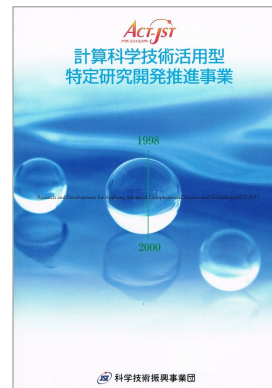
**T「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス
の研究」採択（'981117, AD0）**



科学技術振興“事業団”

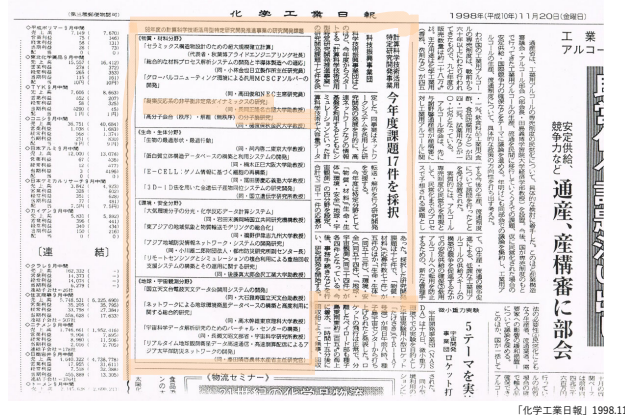
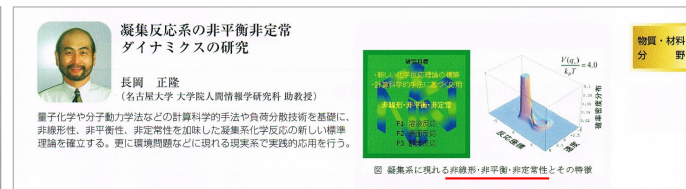


**T「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス
の研究」採択（'981117, AD0）**



科学技術振興“事業団”

研究期間： 3年間
研究費：～150,000千円



**T「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス
の研究」採択（'981117, AD0）**



PCクラスター (DEC (COMPAQ))

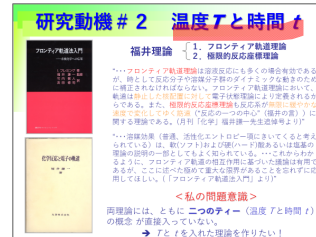


Origin200 (SiliconGraphics)

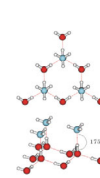
「1999年 忘年会」 栄にて ('99, AD1)



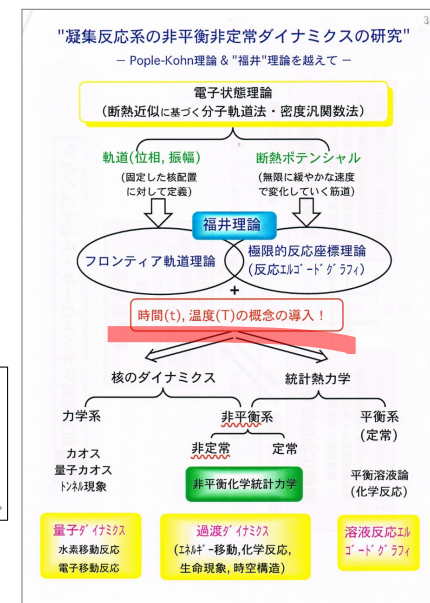
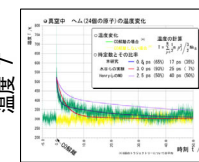
ACT-JST「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス の研究」採択 ('981117, AD0)



T と t の研究を理論的・情報学的観点から
取り組んでくれた
岡本君 (当時M2、現HPCシステムズ)

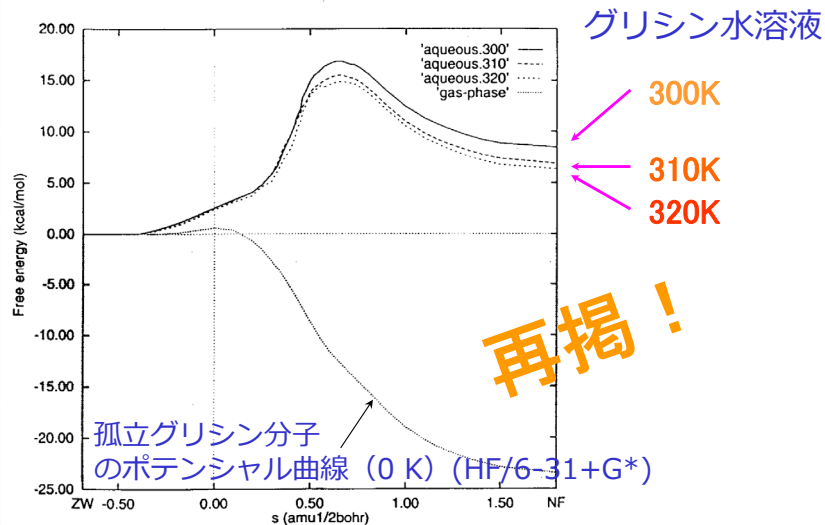


T と t の研究を実践してくれた岡崎君
(当時PD、現弘前大講師) と原君
(当時M2、現産総研主任研究員)



活性化エネルギーの温度依存性

自由エネルギー計算から温度依存性を知ることができる！
(QM計算からでは求まらない情報！)



MN, N.Yoshida, T.Yamabe, JPC A, 102, 8202 (1998).

略歴



紀元AD

- 77(S52)03 須坂高等学校卒業
- 82(S57)03 京大工石化卒業
- 84(S59)03 同院修士 修了
- 87(S62)03 同院博士 修了
- 88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
- 91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
- 93(H05)06 米白サマーツアー
- 97(H09)09 同上 主任研究員
- 98(H10)0100 同上 退所 (福井先生 逝去)
- 98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
- 人間情報学研究科 助教授
- JST*計算科学技術活用型
- 特定研究開発推進事業:
- ACT-JST「凝集反応系の非平衡非定常ダイナミクス」の研究」
- 「非線形非平衡非定常」誕生!!
- 02(H14)0304 国際会議 CRN³(化学反応現象に特徴的な非平衡非定常性の解明)(基盤C)
- 02(H14)09 教授(人間情報学)
- 03(H15)04 教授(情報科学)
- 04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

- 06(H18)1008 JST*戦略的創造研究推進事業: CREST「凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発」
- 07(H19)0409 小患
- 08(H20)1210「すぐできる分子シミュレーションビギナーズマニュアル」出版
- 12(H24)0515 MSCRS2012 (JST国際)
- 13(H25)1016 JST戦略的創造研究推進事業: CREST「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」
- 14(H26)0417 StudyCamp2014
- 15(H27)12 PACIFICHEM2015
- 16(H28)0419 MSCRS2016 (JSPS日伯+名大)
- 17(H29)0420 教授(情報学部・情報学研究科)
- 18(H30)0921 還暦
- 20(R02)1223 PACIFICHEM2020
- 23(R05)0325 StudyCamp2022



略歴



77(S52)03 須坂高等学校卒業
82(S57)03 京大工石化卒業
84(S59)03 同院修士 修了
87(S62)03 同院博士 修了
88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
93(H05)06 米白サマーツアー
97(H09)09 同上 主任研究員
98(H10)01 同上 退所(福井先生 逝去)
98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
人間情報学研究科 助教授
JST*計算科学技術活用型
特定研究開発推進事業:
*JST: 10
科学技術振興機構
Lab Ncube誕生!
02(H14)03 国際会議 CRN³(化学反応現象
に特徴的非平衡非定常性
の解明)(基盤C)
02(H14)09 教授(人間情報学)
03(H15)04 教授(情報科学)
04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

06(H18)10 JST*戦略的創造研究推進事業:
CREST「凝集反応系マルチスケール
シミュレーションの研究開発」
07(H19)04 小患
08(H20)12 「すぐできる分子シミュ
レーションビギナーズ
マニュアル」出版
12(H24)05 MSCRS2012
(JST国際)
13(H25)10 JST戦略的創造研究推進
事業:CREST「マクロ化学
現象シミュレーションに向
けた計算分子技術の構築」
14(H26)04 StudyCamp2014
15(H27)12 PACIFICHEM2015
16(H28)04 MSCRS2016
(JSPS日伯+名大)
17(H29)04 教授(情報学部・情報学
研究科)
18(H30)09 還暦
20(R02)12 PACIFICHEM2020
23(R05)03 StudyCamp2022



略歴



77(S52)03 須坂高等学校卒業
82(S57)03 京大工石化卒業
84(S59)03 同院修士 修了
87(S62)03 同院博士 修了
88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
93(H05)06 米白サマーツアー
97(H09)09 同上 主任研究員
98(H10)01 同上 退所(福井先生 逝去)
98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
人間情報学研究科 助教授
JST*計算科学技術活用型
特定研究開発推進事業:
*JST: 10
科学技術振興機構
Lab Ncube誕生!
02(H14)03 国際会議 CRN³(化学反応現象
に特徴的非平衡非定常性
の解明)(基盤C)
02(H14)09 教授(人間情報学)
03(H15)04 教授(情報科学)
04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

06(H18)10 JST戦略的創造研究推進
事業:CREST「マクロ化学
現象シミュレーションに向
けた計算分子技術の構築」
13(H25)10 StudyCamp2014
14(H26)04 PACIFICHEM2015
15(H27)12 MSCRS2016
(JSPS日伯+名大)
16(H28)04 教授(情報学部・情報学
研究科)
17(H29)04 還暦
18(H30)09 PACIFICHEM2020
20(R02)12 StudyCamp2022
23(R05)03



略歴



77(S52)03 須坂高等学校卒業
82(S57)03 京大工石化卒業
84(S59)03 同院修士 修了
87(S62)03 同院博士 修了
88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
93(H05)06 米白サマーツアー
97(H09)09 同上 主任研究員
98(H10)01 同上 退所(福井先生 逝去)
98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
人間情報学研究科 助教授
JST*計算科学技術活用型
特定研究開発推進事業:
*JST: 10
科学技術振興機構
Lab Ncube誕生!
02(H14)03 国際会議 CRN³(化学反応現象
に特徴的非平衡非定常性
の解明)(基盤C)
02(H14)09 教授(人間情報学)
03(H15)04 教授(情報科学)
04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

06(H18)10 JST*戦略的創造研究推進事業:
CREST「凝集反応系マルチスケール
シミュレーションの研究開発」
07(H19)04 小患
08(H20)12 「すぐできる分子シミュ
レーションビギナーズ
マニュアル」出版
12(H24)05 MSCRS2012
(JST国際)
13(H25)10 JST戦略的創造研究推進
事業:CREST「マクロ化学
現象シミュレーションに向
けた計算分子技術の構築」
14(H26)04 StudyCamp2014
15(H27)12 PACIFICHEM2015
16(H28)04 MSCRS2016
(JSPS日伯+名大)
17(H29)04 教授(情報学部・情報学
研究科)
18(H30)09 還暦
20(R02)12 PACIFICHEM2020
23(R05)03 StudyCamp2022

CREST「凝集反応系マルチスケール シミュレーションの研究開発」('06, AD08) —大規模原子情報の疎視化・再構成技法・疎視化理論の開発—

科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業
Core Research for Evolutional Science and Technology

研究総括



矢川元基教授
(東大名誉教授
元東洋大学教授)

領域アドバイザー



渡辺 貞先生
(当時理研次世代スー
パーコンピュータ開発
実施本部プロジェクト
リーダー)
他9名



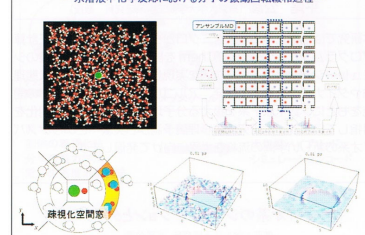
研究期間: 5年間半
研究費: ~300,000千円

凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発
—大規模原子情報の疎視化・再構成技法・疎視化理論の開発—

長岡 正隆 (名古屋大学大学院情報科学研究科 教授)

溶液、表面、生体高分子の非経験的分子動力学 (MD) シミュレーションで得た原子情報を疎視化・再構成する凝集反応系マルチスケールシミュレーションを実現します。具体的には、1) 疎視化技法と疎視化発展方程式、2) 最大エントロピー原理による非定常状態の再構成技法、3) 分子軌道法とMD法とを繋ぐQM/MMインターフェースを研究開発し、最終的には個別事例に適用して、凝集反応系マルチスケールシミュレーション実用化基盤を確立します。

非平衡非定常分布の再構成技法とアンサンブルMD法
—水溶液中化学反応における分子の振動回転緩和過程—



岡本拓也博士
(HPCシステムズ)



高柳昌芳博士
(現滋賀大准教授)



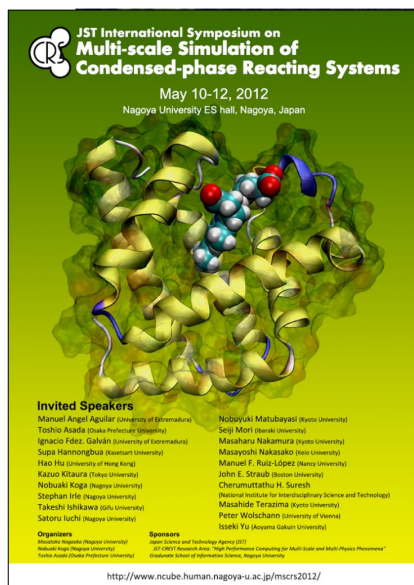
山本典史博士
(現千葉工大教授)



優乙石博士
(現前橋工科大学准教授)

JST国際シンポジウム MSCRS2012 「凝縮相反応系のマルチスケールシミュレーション」

(12, AD17)



今日の内容

- 第一章 はじめに
- 第二章 “福井研”を目指して！ 理論物理から理論化学へ！
- 第三章 続け、ノーベル賞！
- 第四章 長岡研究室、始動！ 旅立ち！？
- それまでしてきたことが
“新しく”始めることに繋がる！
- 第五章 展開 複雑性に向かって
- 第六章 おわりに ～“フクイ研精神”を継承できているか？～
- 第七章 謝辞

JOURNEY
『DEPARTURE』
CDアルバム

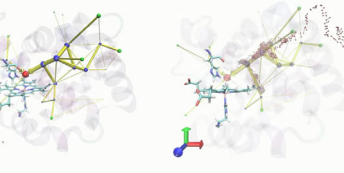
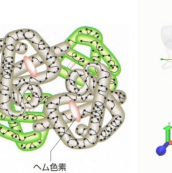
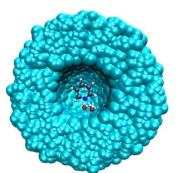
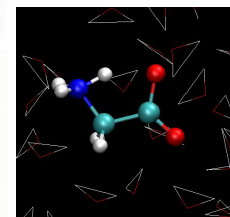
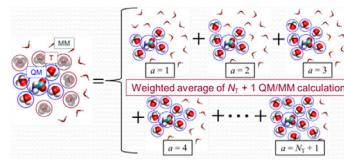
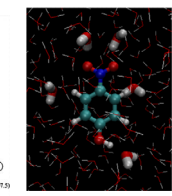
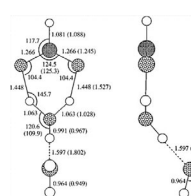
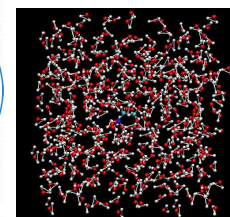
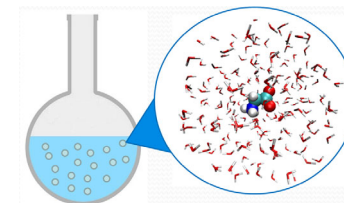
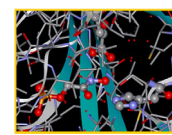
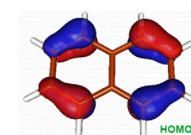
※著作権の関係上
画像を非表示と
しております

82

:01

第五章 展開！ 複雑系に向かって

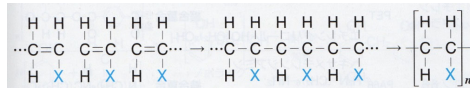
これまで主に研究されてきたのは、
単一分子、素反応です！



世界は複雑な“モノ”にあふれている！

-私たちの生活は、複雑な組成の化合物に囲まれている-

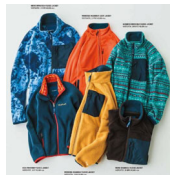
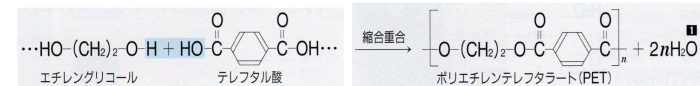
■合成樹脂(プラスチック)(熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂など)



ポリエチレン



■合成繊維(縮重合、付加重合などによる) 例、ナイロン66



ユニクロ ヒートテックのCM
ポリエチレンテレフタレート(PET)etc.

ユニクロ ヒートテックのCM

※著作権の関係上、一部画像を非表示しております



整然とした、反応式だが、実は、高分子化合物は複雑な構造をしている！

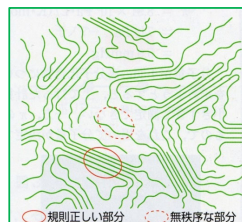
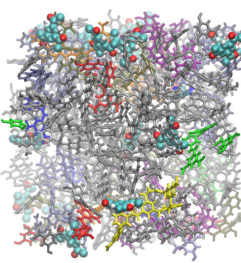
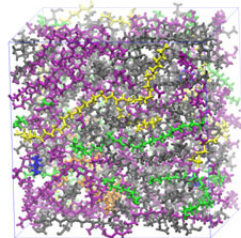
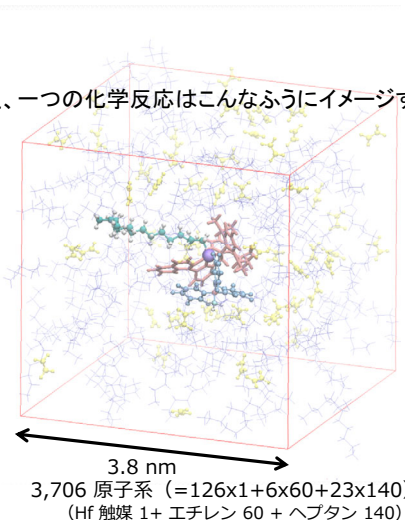


図 固体の高分子化合物の構造
(「化学II新訂版」、p. 143)

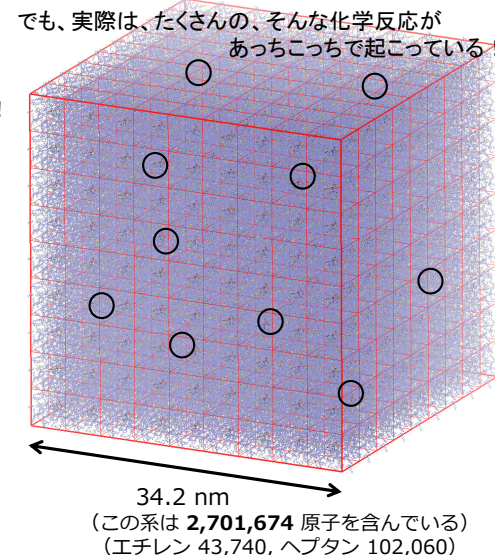


“化学反応”のイメージ！？ 複合反応系は確率変数の体系である！

普通、一つの化学反応はこんなふうにイメージする！

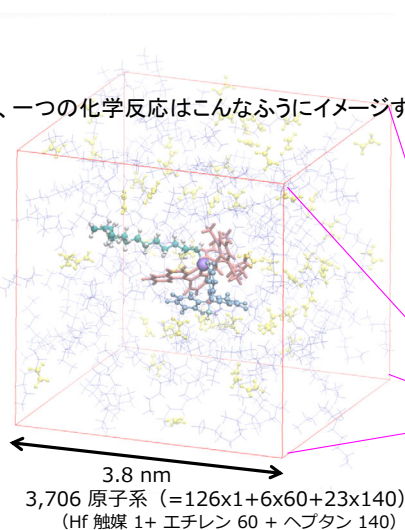


でも、実際は、たくさんの、そんな化学反応があっちこっちで起こっている！

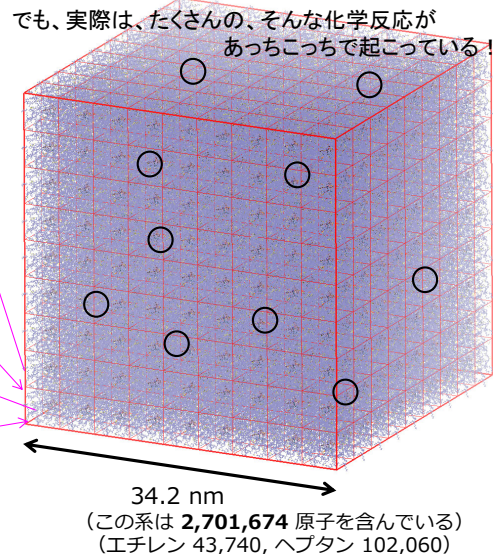


“化学反応”のイメージ！？ 複合反応系は確率変数の体系である！

普通、一つの化学反応はこんなふうにイメージする！



でも、実際は、たくさんの、そんな化学反応があっちこっちで起こっている！



Red Moon 法 -混合MC/MD反応法-



希少事象促進機構を備えた 混合モンテカルロ(MC)/分子動力学(MD)反応法：
“A hybrid MC/MD reaction method with Rare event-driving Methodology of necessity”
MN, Y.Suzuki, T.Okamoto, N.Takenaka, Chem. Phys. Lett., 583, 80 (2013)

Red Moon 法

… 新しいシミュレーション法

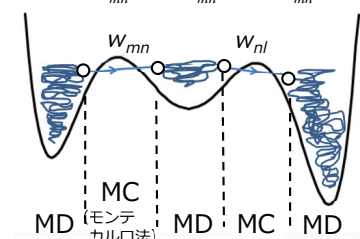
・混合MC/MD反応法

・遷移率 ((Metropolis)法) :

$$w_{mn} = \min \{1, \exp[-\beta \Delta U_{mn}]\}$$

・反応エネルギー差:

$$\Delta U_{mn} = \Delta U_{mn}^{\text{MM}} + \Delta U_{mn}^0$$

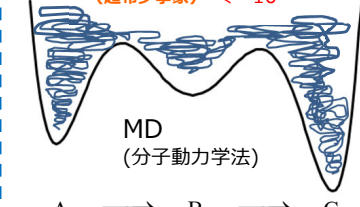


これまでのシミュレーション法

ニュートンの運動方程式:

$$\begin{cases} \frac{dr^N_s}{dt} = \frac{\partial H}{\partial p^N_s} \\ \frac{dp^N_s}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial r^N_s} \end{cases} \quad \begin{cases} \frac{dr^N_M}{dt} = \frac{\partial H}{\partial p^N_M} \\ \frac{dp^N_M}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial r^N_M} \end{cases}$$

化学反応 (超希少事象) <~10⁻¹⁰



なかなか起こらない！

活性分子 1個 vs. 不活性分子 100億個

• MN, Y.Suzuki, T.Okamoto, N.Takenaka, *Chem. Phys. Lett.*, **583**, 80 (2013)

23(R05)0325 StudyCamp2022

CREST「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」('13, AD16)

科学技術振興機構(JST):戦略的創造研究推進事業
Core Research for Evolutional Science and Technology

研究総括



山本尚教授
(大名名誉教授
現中部大学)

<https://www.jst.go.jp/crest/mt/supervisor/>



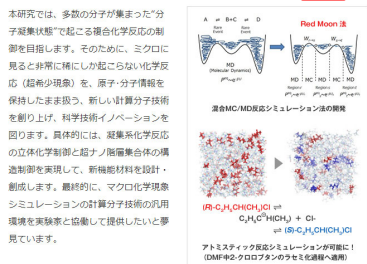
高柳昌芳博士
(現滋賀大准教授)



S.Xing博士



概要 Outline



特色 Feature

- 未反応分子数vs.活性分子数の割合から考えると超希少現象である化学反応現象を現代のコンピュータ環境でシミュレート可能にする新しい計算分子技術(今日現行、オンライン1)を開発して開発する。
- 凝集状態に関する従来の計算分子技術を用いて、対象物質系の素反応群リストを網羅的に挙げる。複合化学反応系として、同時反応させて自然にあらわな生成物の異質性や成分の経路変化を追う。
- 精密合成技術と相補的な分子技術として、分子凝集状態のミクロとマクロとを繋ぐ計算分子技術を構築して、新力デコーラのタミストロプログラムの完成を目指す。



鈴木雄一博士



S.Saha博士
(現TDB大助教授)



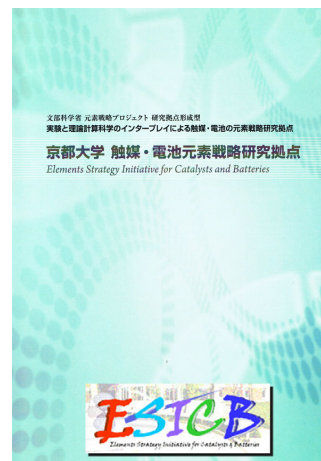
北村勇吉博士
(現静岡大助教授)



C.Bistafa博士
(現大阪大)

MEXT「元素戦略」&「ポスト「京」」参加 (Since '12, AD15)

文部科学省 (MEXT)
Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology



竹中規男博士
(現東大特任講師)



A.Bouibes博士
(現INSA Toulouse
准教授)

元素戦略

ポスト「京」



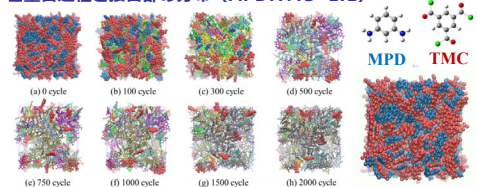
稲垣泰一博士
(現慶応大助教授)



藤江拓哉君

CREST「分子技術」 “マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築” 界面縮重合反応ー芳香族ポリアミド合成繊維ー

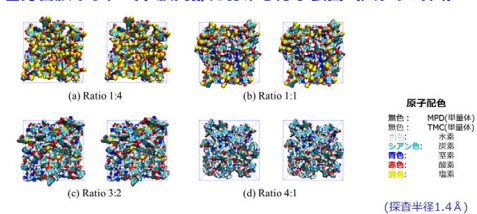
■重合過程と接合部の分布 (MPD:TMC=1:1)



最終状態(20000分)のポリマー長と数

MPD(甲)単位	1000	2000	3000	4000	5000	6000	7000	8000	9000	10000
TMC(甲)単位	1000	2000	3000	4000	5000	6000	7000	8000	9000	10000

■芳香族ポリアミド膜内部における分子表面 (ステレオ図)



比率1:1, 3:2の膜では、非常に多くの高分子集合体からなる密な部分が形成されている。密な高分子ネットワークが形成。少ない集合体ボア。(実験と一致)

Y. Suzuki, Y. Koyano, M. Nagaoka, J. Phys. Chem. B, 119, 6776 (2015).

■高分子架橋度(DPC)と原子組成比

表. 計算値と実験値との比較

	Present ^a				Experiment ^b	
	Ratio 1:4	Ratio 1:1	Ratio 3:2	Ratio 4:1	XPS	RBS
DPC	94.3 ± 0.1	96.9 ± 0.1	99.0 ± 0.0	100.0 ± 0.0	91.7 ± 3.9	96.2 ± 0.2
%C	67.8 ± 0.1	71.6 ± 0.1	73.6 ± 0.1	74.9 ± 0.0	71.0 ± 1.6	71.0 ± 0.2
%O	25.7 ± 0.1	18.6 ± 0.1	14.2 ± 0.1	9.4 ± 0.0	26.2 ± 1.7	17.4 ± 0.4
%N	6.5 ± 0.1	9.9 ± 0.1	12.2 ± 0.0	15.6 ± 0.0	2.8 ± 1.7	11.5 ± 0.6

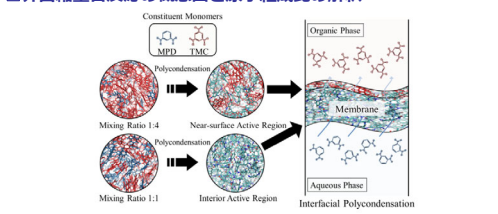
^aRatio=1(MPD):1(TMC), 5個のサンプルの平均値。
^bそれぞれ、X線光電子分光法(XPS)と、ラザフォード後方散乱法(RBS)による結果。

□ 比率1:4の結果はX線光電子分光法(XPS)による実験値に近い傾向を示していることが分かった。

□ 一方、比率1:1の結果は、組成比及び高分子架橋度ともに、ラザフォード後方散乱法(RBS)による実験値と良い一致を示した。

(Red Moon 法) マクロ化学現象シミュレーション手法としての意義と価値

■界面縮重合反応の概念図と原子組成比の解釈



FT-30膜は、コーティング層と一部の活性層とからなる近表面活性領域(表面から~36 nmまで)と膜構造の大半を占める活性層からなる内部活性領域(36nm以上から~92nmまで)とで構成されている。

ESTCB

二次電池における固体電解液相間の 構造解明と高容量化に向けて

■EC-PCミステリの解明

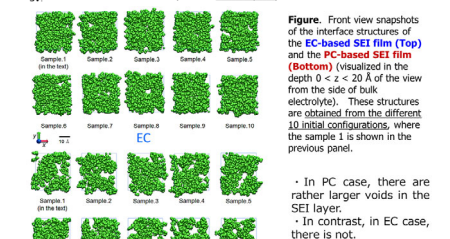
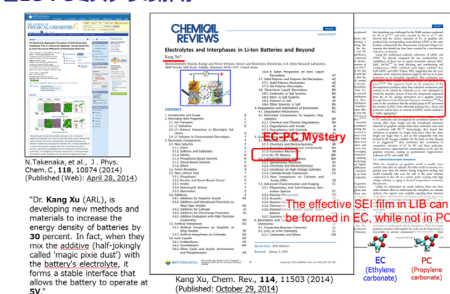


Figure. Front view snapshots of the interface structures of the EC-based SEI film (Top) and the PC-based SEI film (Bottom) (visualized in the depth 0 < z < 20 Å of the view from the side of bulk electrolyte). These structures are obtained from the different 10 initial configurations, where the sample 1 is shown in the previous panel.

■Naイオン電池のSEI膜形成における添加剤効果

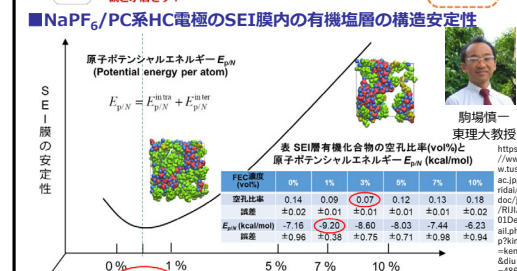
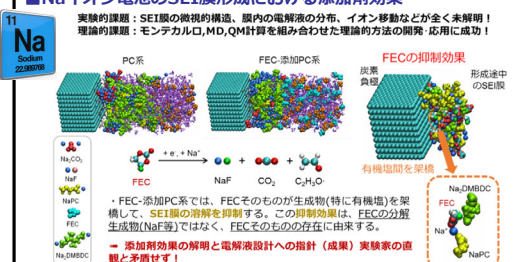


表 SEI層有機化合物の空孔比率(vol%)と原子ポテンシャルエネルギーE_{pot}(kcal/mol)

添加剤	比率	0.14	0.09	0.07	0.12	0.13	0.18	0.15	0.16	0.17
空孔比率	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02
E _{pot} (kcal/mol)	空孔比率	-7.16	-9.20	-8.60	-8.03	-7.44	-6.23	-6.23	-6.23	-6.23
空孔比率	空孔比率	0.96	0.38	0.75	0.71	0.98	0.94	0.94	0.94	0.94

「情報学の研究者たちの喜怒哀楽」

(企)有田隆也先生等

メニュー ☆ 情報学の研究者たちの... + 作成

すべてのツール 編集 変換 電子サイン テキストまたはツールを検索

2024/02/08 10:03 情報学の研究者たちの喜怒哀楽 (長岡正隆 (物質情報学 (分子シミュレーション・データ科学)) 複雑系科学専攻 教授) | 情報玉手箱

名古屋大学 情報学部 大学院情報科学研究科

情報玉手箱

<https://tamatebako.i.nagoya-u.ac.jp/5780/>

情報学の研究者たちの喜怒哀楽 (長岡正隆 (物質情報学 (分子シミュレーション・データ科学)) 複雑系科学専攻 教授)

😊

—「喜」喜びを感じる (あるいは最も喜びを感じた) のはいつですか？

自分では決して思いつかない発想『貴方のRed Moon法を“Liイオン電池”で使えないか』という大胆な課題 (問題の外の“問題”！?) を、異なった専門分野の外部識者から与えられ、無謀にも取り組んで行くうちに、何とか「EC-PCミステリ」の解明に繋がる成果を挙げることができた！と実感したとき

😊

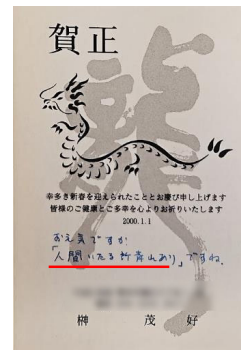
—「楽」楽しさを感じる (あるいは最も楽しさを感じた) のはいつですか？

Ncube合宿「スタディキャンプ」では、現役生や卒業生が、驚きの工夫と斬新な感覚で、新展開をプレゼンしてくれます。コンパではその苦労を笑顔で熱く語り合っています！それを傍観しているとき (コロナ禍ではない夏の夏の一コマ)

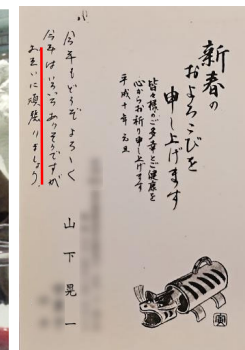
モスクワシンポジウム “Chemical Theory for Complex Systems” ('14, AD17)

Satellite Meeting of MCMC-2014:
Japan-Russia Joint Symposium
“Chemical Theory for Complex Systems”
Sept. 19, 2014, St. Petersburg, Russia

「人間至る所青山あり」



「お互いに頑張りましょう」



モスクワシンポジウム “Chemical Theory for Complex Systems” ('14, AD17)

Satellite Meeting of MCMC-2014:
Japan-Russia Joint Symposium
“Chemical Theory for Complex Systems”
Sept. 19, 2014, St. Petersburg, Russia

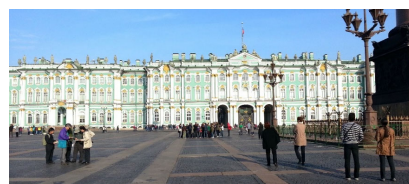
Molecular Complexity in Modern Chemistry (MCMC-2014)
Moscow 2014, September 12-19

Russia-Japan Joint Session of “Chemical Theory for Complex Systems”
“A Hybrid MC/MD Reaction Method with Rare Event-driving Mechanism: Atomistic Realization of 2-Chlorobutane Racemization Process in DMS Solution”

Masataka Nagaoka

Graduate School of Information Science, Nagoya University, JAPAN; Core Research for Evolutional Science and Technology (CREST), Japan Science and Technology Agency (JST), JAPAN; ESICB, Kyoto University, JAPAN

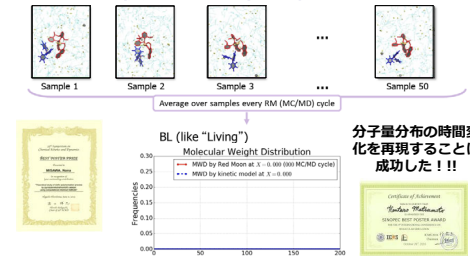
N. Takenaka, Y. Suzuki, H. Sakai, MN, *J. Phys. Chem. C*, **118**, 10875 (2014).
MN, Y. Suzuki, T. Okamoto, N. Takenaka, *Chem. Phys. Lett.*, **583**, 80 (2013).
N. Takenaka, Y. Kitamura, Y. Koyano, MN, *J. Chem. Phys.*, **137**, 024501 (2012).
N. Takenaka, Y. Kitamura, Y. Koyano, MN, *Chem. Phys. Lett.*, **524**, 56 (2012).
N. Takenaka, Y. Kitamura, Y. Koyano, T. Asada, MN, *Theor. Chem. Acc.*, **130**, 215 (2011).



CREST「分子技術」
“マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築”
Ncube Nagasaki Laboratory

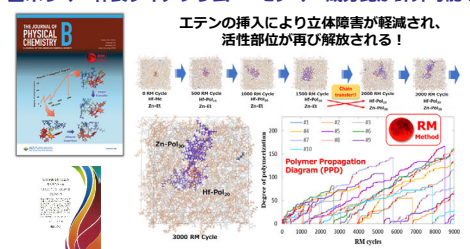
触媒重合とラジカル重合 - ポリオレフィン樹脂 -

■分子量分布 (質量平均分子量) の時間変化



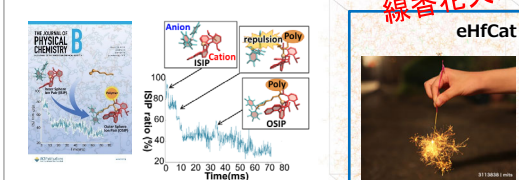
M. Matsumoto, M. Takayanagi, Y. Suzuki, N. Koga, MN, *J. Comp. Chem.*, **40**, 421 (2019).

■ポリマー伸長ダイアグラム ... モノマー成分比が計算可能!



S. Kanesato, K. Yasoshima, N. Misawa, K. Matsumoto, Y. Suzuki, N. Koga, MN, *J. Phys. Chem. B*, **127**, 7735 (2023).

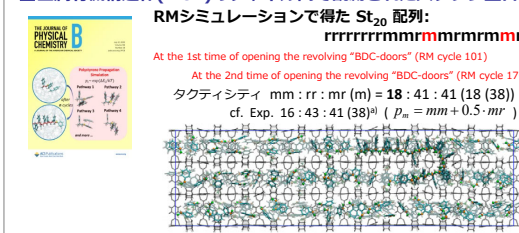
■重合反応機構 二つの異なる時間スケール



1-オクテン/エテン系に共重合反応と連鎖移動重合をシミュレートする計算化学的手法を確立した。

N. Misawa, K. Matsumoto, Y. Suzuki, S. Saha, N. Koga, MN, *J. Phys. Chem. B*, **127**, 1209 (2023).

■金属有機構造体(MOF)のチャネル間で観測されたスチレン重合



Z. Rao, M. Takayanagi, MN, *J. Phys. Chem. B*, **126**, 5343 (2022).



略歴

紀元AD

77(S52)03 須坂高等学校卒業
82(S57)03 京大工石化卒業
84(S59)03 同院修士 修了
87(S62)03 同院博士 修了
88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
93(H05)06 米白サマーツアー
97(H09)09 同上 主任研究員
98(H10)0100 同上 退所(福井先生 逝去)
98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
人間情報学研究科 助教授
JST*計算科学技術活用型
特定研究開発推進事業:
*JST: 10
科学技術振興機構
Lab Ncube誕生!
02(H14)0304 国際会議 CRN³(化学反応現象
に特徴的的非平衡非定常性
の解明)(基盤C)
02(H14)09 教授(人間情報学)
03(H15)04 教授(情報科学)
04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

紀元AD

06(H18)1008 JST*戦略的創造研究推進事業:
CREST「凝集反応系マルチスケールシミュレーションの研究開発」
07(H19)0409 小患
08(H20)1210 「すぐできる分子シミュレーションビギナーズマニュアル」出版
12(H24)0515 MSCRS2012 (JST国際)
13(H25)1016 JST戦略的創造研究推進事業:CREST「マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築」
14(H26)0417 StudyCamp2014
15(H27)12 PACIFICHEM2015
16(H28)0419 MSCRS2016 (JSPS日伯+名大)
17(H29)0420 教授(情報学部・情報学研究科)
18(H30)0921 還暦
20(R02)1222 PACIFICHEM2020
23(R05)0325 StudyCamp2022



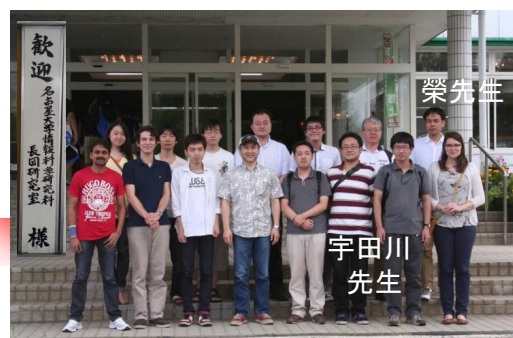
StudyCamp2014 (Gujo-Kogen Highland)
(郡上高原)(Aug.25-27, 2014)

1st StudyCamp

を開催！ これは "OntakeMeeting2014"
(Mar. 31-Apr. 1, 2014)



"StudyCamp" 開始！ ('14, AD17)



郡上そば打ち体験！



茶色い
うどん？
そばが茹で上
がるのを待つ
ている！



@StudyCamp
(140826)

SC2015 (Gero-Onsen, Gifu)

(下呂温泉)(Aug.24-25)

篠田・畑中先生

SC2016 (Gujo-Hachiman, Gifu)

(郡上八幡)(Sept.4-5) 高橋・村岡先生

SC2017 (Suwa, Nagano)

(諏訪)(Aug.23-25)

Ruiz-López・中田・阿部・村岡先生



THE ONBASHERA FESTIVAL
御柱祭



※著作権の関係上、一部画像を非表示しております

SC2018 (Ohmi Hachiman, Shiga)

(近江八幡)(Aug.22-23) 優・渡辺先生

Himakajima WS (MSCRS2019)

(日間賀島)(Mar.21-22, 2019)

平田・岡本・Straub・田中・太田・小池先生

SC2019 (Hida Takayama, Gifu)

(飛騨高山)(Sep.1-2, 2019)

Straub・Lintuluoto・北尾先生



SC2018 (Ohmi Hachiman, Shiga)

(近江八幡)(Aug.22-23) 優・渡辺先生

Himakajima WS (MSCRS2019)

(日間賀島)(Mar.21-22, 2019)

平田・岡本・Straub・田中・太田・小池先生

SC2019 (Hida Takayama, Gifu)

(飛騨高山)(Sep.1-2, 2019)

Straub・Lintuluoto・北尾先生



**Ncube Competition
Best Presentation Award**

SC2020 (COVID-19のため中止)

...

SC2022 (Ohmi Hachiman, Shiga)

(近江八幡)(March 6-7, 2023)

Straub・Bondar・江原・松林・栢沼・大谷・笠原先生

休暇村
OHMI HACHIMAN
https://www.qkamura.or.jp/ohmi/



八幡山ロープウェイ
水郷地帯が広がるのどかな風景の中に、雄大にそびえる八幡山。標高271mの山頂まではロープウェイで約4分。頂上には、この山に城を築いた豊臣秀次公を祀る村雲御所瑞龍寺があります。
(休暇村から車で約20分)

https://id.basisc.com/detail/images/hotel/mar2023a/168/407617198.jpg?w=337&h=451&id=6405c8ba3c6420914846&id=6405c8ba3c6420914846&id=6405c8ba3c6420914846

https://travel.rakuten.co.jp/HOTEL/76886/CUSTOM/GW7688616021014427.html



略歴

紀元AD

77(S52)03 須坂高等学校卒業
82(S57)03 京大工石化卒業
84(S59)03 同院修士 修了
87(S62)03 同院博士 修了
88(S63)04 JSPS*研究員(基礎化研)
91(H03)04 基礎化研 副主任研究員
93(H05)06 米白サマーツアー
97(H09)09 同上 主任研究員
98(H10)0100 同上 退所(福井先生 逝去)
98(H10)07 名古屋大学 大学院 名大異動
人間情報学研究科 助教授
JST*計算科学技術活用型
特定研究開発推進事業:
ACT-JST「凝集反応系の非平
衡非定常ダイナミクスの研究」
"非線形非平衡非定常" 誕生!!
02(H14)0304 国際会議 CRN³(化学反応現象
に特徴的の非平衡非定常性
の解明)(基盤C)
02(H14)09 教授(人間情報学)
03(H15)04 教授(情報科学)
04(H16)04 21世紀COE「計算科学フロンティア」

紀元AD

06(H18)1008 JST*戦略的創造研究推進事業:
CREST「凝集反応系マルチスケ
ルシミュレーションの研究開発」
07(H19)0409 小患
08(H20)1210
12(H24)0515
13(H25)1016
14(H26)0417
15(H27)12 PACIFICHEM2015
16(H28)0419 MSCRS2016
(JSPS日伯+名大)
17(H29)04
18(H30)09
20(R02)12
23(R05)0325 StudyCamp2022



JSPS-FAPESP国際シンポジウム MSCRS2016 「凝縮相反応系のマルチスケールシミュレーション」

https://web.honbu.jmu.nagoya-u.ac.jp/fmd/02construction/tatemono/14_no-kouryou/01.jpg

(2016年10月10-13日, AD18)



野依記念学術交流館

JAPAN SOCIETY FOR THE PROMOTION OF SCIENCE
日本学術振興会

FAPESP
SÃO PAULO RESEARCH FOUNDATION

名古屋大学
NAGOYA UNIVERSITY

INFORMATION
SCIENCE
NAGOYA UNIVERSITY



北栄輔 副研究科長の乾杯



JSPS-FAPESP国際シンポジウム MSCRS2016 「凝縮相反応系のマルチスケールシミュレーション」

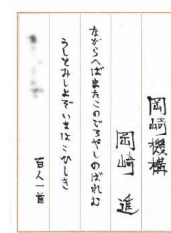
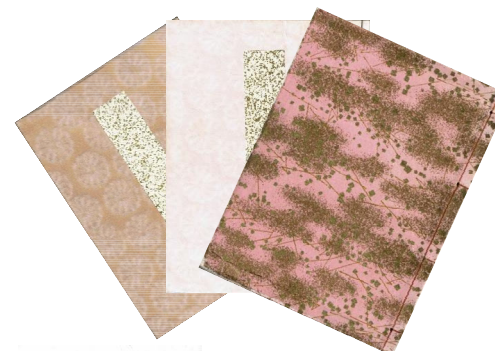
(2016年10月10-13日, AD18)



尾張コンプレックスセミナー&芳名録

"コンプレックス" ... 複雑系、錯体、様々な人達が集う場所

・異動後すぐ開始した、尾張コンプレックスセミナーは、79回を数える!!



左掲示
78th OWARI COMPLEX SEMINAR
第78回 尾張コンプレックスセミナー
下記のとおりセミナーを開催します。参加は自由です。
多数ご参加ください。

講 師 ジョン ストラoup 先生 (ボストン大学)
SPEAKER Prof. John E. Stroup (Boston University)
題 目 膜中におけるドメイン形成とタンパク質分岐を決定する
メカニズムの探求
T I T L E Probing the rules governing domain formation and protein
partitioning in membranes
日 時 平成30年11月14日(水) 15:00 ~ (約1時間)
D A T E Wednesday 14th Nov., 2018 15:00 ~ (About one hour)
場 所 尾張学館1号館 第1講義室
P L A C E Lecture Room 1 (1F)
Graduate School of Information
基 礎 先 長岡 正徳 (名古屋大学大学院情報学研究科)
内 務 5023
C O R R E S P O N D E N C E Masataka Nagao, Graduate School of Information,
Nagoya University
E-mail: 5023

吉澤先生との共著論文 (1998)

“Lithium Diffusion in Li_xCoO_2 Electrode Materials (Li_xCoO_2 電極材料におけるリチウム拡散)”



Re: 070534

Dear Professor Noyori:

Thank you very much for the letter of March 27, 1998 from Professor Akira Miyamoto, concerning a paper "Lithium Diffusion in Li_xCoO_2 Electrode Materials" by G. Noyori, M. Nagakawa, K. Yoshizawa, and T. Yamabe. Since one of the authors is not Japanese, we asked reviewers to write comments in English when we submitted this manuscript to the Chemical Society of Japan in the last November, but they sent comments in Japanese. By the same reason, we would like to answer reviewers' comments in English.

We have considered and incorporated reviewer B's comments. I enclose two copies of our revised manuscript with a separate note dealing the changes we have made. The changes are also indicated with a line-number in one of the copies attached. I believe that the revised manuscript has been significantly improved along the line which the reviewers suggested. The revised version includes Fumihito Maki as a new author because he has greatly contributed to completing and the revising work of the paper. The paper state including title (Rev. MSW07.5.1a). We are very happy that this paper will appear in the Bulletin of the Chemical Society of Japan.

Your kind management is greatly appreciated in advance.

Best regards,

Masataka Nagakawa
Dr. Masataka Nagakawa
On behalf of Prof. Takaya Okamoto

Department of Molecular Engineering, Kyoto University
Sakyo-ku, Kyoto 606-8501, Japan
Fax: +81-75-751-7279

© 1998 The Chemical Society of Japan

Bull. Chem. Soc. Jpn., 71, 2239–2251 (1998) 2239

Lithium Diffusion in Li_xCoO_2 Electrode Materials

Gerhard Noyori, Masataka Nagakawa, Norio Takenaka, Fumihito Maki, and Takuya Okamoto*

Institute for Fundamental Chemistry, 367-1, Takara-Nishikubo-cho, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501

(Department of Molecular Engineering, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501)

(Received December 1, 1997)

The minimum energy migration path and the minimum barrier height of lithium diffusion are discussed for the layer compound LiCoO_2 . The Universal Force Field (UFF) is adopted for an all-atom molecular dynamics simulation with additional impulse dynamics refined, performed in a microcanonical ensemble, point out that the lithium migration between the CoO_2 octahedral layers takes place by ion hopping from one octahedron to another octahedron via an interstitial interstitial site. The barrier height of lithium migration is estimated to be 28 kJ mol⁻¹ (0.30 eV) for an original layer distance of 2.5 Å, a potential energy profile is developed from molecular mechanics calculations. The observation that the migration of the weak interaction between Li^+ and neighboring O^{2-} ions is the most important contribution to the barrier height is consistent with the fact that the activation energy of lithium diffusion is very sensitive to the layer distance, within the experimentally observed values.

In the last two decades, an uncountable number of various insertion compounds have been investigated with respect to their use as possible electrode materials in rechargeable lithium ion batteries.^{1–4} Such kinds of ion batteries are interesting for backup use in computer memories, for example. In particular, transition metal oxides^{5,6} and chalcogenides^{7–10} consisting of layer structures or three-dimensional frameworks with tunnel systems insert remarkable amounts of lithium.

Up to now, for consumer application the most promising cathode material for solid state lithium ion batteries is LiCoO_2 ,^{11,12} since this compound shows a high theoretical energy density of 700 Wh kg⁻¹.¹³ The use of LiCoO_2 in commercial lithium ion batteries¹⁴ has initiated intense research efforts in this field.^{15–17} Recently, beside the original lithium ion battery^{18–20} including a LiCoO_2 cathode and an anisotropic carbon anode, many so-called "locking chair" cells in which both electrodes are lithium intercalation compounds are under development. One important example of these new types of cells consists of nonstoichiometric TiO_2 (analogous to the anode and LiCoO_2 or $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ as the cathode).²¹

LiCoO_2 , intercalated with the Li-NaF_2 structure type, is a typical layer compound formed by stacking sheets consisting of CoO_2 octahedra. The octahedra in one layer share six edges each, resulting in a cooctahedral of CoO_2 within one octahedral layer. The stacking sequence of the CoO_2 layers is ABCABC, leading to a trigonal unit cell with space group $R\bar{3}m$. Therefore, LiCoO_2 can also be regarded as a filled derivative of the CaCl_2 structure type. The empty octahedral sites between the CoO_2 layers are statistically

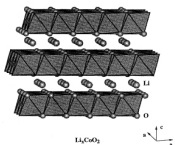


Fig. 1. Crystal structure of the layer compound LiCoO_2 . The CoO_2 layers are stacked in an ABCABC sequence. The lithium ions are located in the octahedral sites between the CoO_2 layers.

* Present address: Institute for Aerospace Science and Technology, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd., 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

© 1998 The Chemical Society of Japan

山邊先生の博士論文 (1967)

1964



「多官能基性単位間結合によるゲル化に関する研究」

(高分子の)

“私(山邊先生)自身は、昭和33年4月、福井先生の研究室に卒業研究生として配属され、量子化学を勉強させてもらうつもりでいたが、どういわけか私だけは当面福井先生に直接指導を受けることになり、(量子化学)とは全く関係のない「特殊なイソシアレート環 (イソシアレト環) 結合様式でおこなう高分子のゲル化現象に関する理論的研究」であり、福井先生がすでに速度論的に進めておられたものを統計力学的に展開するようにとのことであった。” (“(洛陽19) (2010)より)

1960
JOURNAL OF POLYMER SCIENCE
VOL. XLY, PAGES 305-312 (1960)

A Theory of Gel Formation with Terfunctional Intersubunit Junction

KENICHI FUKUI and TOKIO YAMABE, Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto, Japan

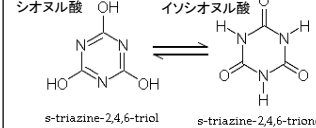
INTRODUCTION

The way in which high polymeric substances are formed from monomeric units may be classified according to the number of functional groups involved in the formation of an intersubunit junction. Each case may be referred to as polymerization by bi-, tri-, quadri-, ..., multifunctional intersubunit junctions, respectively. The simplest case, polymerization by bifunctional intersubunit junctions, is most familiar, and almost all of the known polymerizations or polycondensations, for instance, vinyl polymerization, or the formation of polyesters, and polyamides, belong to this group. Recently, polymerizations of a novel type, in which three functional groups of three different monomeric units unite together to form an intersubunit junction have come to our attention.^{1,2} This type of polymerization may be called polymerization by trifunctional intersubunit junction. The examples are illustrated as follows, where the intersubunit junctions are the isocyanurate ring and s-triazine ring, respectively. Many other reactions of the same type may also be considered.



The theory of polymeric gel formation due to bifunctional intersubunit junction has been established by Flory³ and Stockmayer,⁴ and many other re-

1963
JOURNAL OF POLYMER SCIENCE
VOL. XLV, PAGES 305-312 (1963)



多官能基性単位間結合によるゲル化現象に関する研究

(高分子の)

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

山邊先生と山邊先生との共同研究によるゲル化現象に関する研究

“マクロ化学現象シミュレーションに向けた計算分子技術の構築”

～複合化学反応・立体特異性・集合体構造～



Chemical Physics Letters 353 (2011) 80–86

Contents lists available at ScienceDirect
Chemical Physics Letters
journal homepage: www.elsevier.com/locate/cpl

A hybrid MC/MD reaction method with rare event-driving mechanism:
Atomistic realization of 2-chlorobutane racemization process in DMF solution

Masataka Nagakawa^{a,b,c,*}, Yuichi Suzuki^a, Takaya Okamoto^a, Norio Takenaka^{a,b}

^a Graduate School of Information Science, Nagoya University, Gokisocho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601, Japan

^b Faculty of Science, Nagoya University, Gokisocho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601, Japan

^c Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501, Japan

* Corresponding author. E-mail address: masataka@chem.nagoya-u.ac.jp (M. Nagakawa).

Received 15 July 2010

Available online 15 August 2010

Abstract

We demonstrate a hybrid MC/MD reaction method with rare event-driving mechanism in a practical atomistic simulation of large-scale chemical reaction systems. Application of the method to 2-chlorobutane racemization in N,N-dimethylformamide (DMF) solution starting in the optical pure state (100% ee) was found to successfully provide such an atomistic state with $\sim 10^{-6}$ s, the expected energy of 10⁴–10⁵ kcal/mol of the reaction system in chemical equilibrium. This hybrid MC/MD reaction method is promising for studies of various processes in chemical reaction systems and their interconversion in cells.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

Keywords

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical Physics Letters 353 (2011) 80–86

Contents lists available at ScienceDirect

Chemical Physics Letters

journal homepage: www.elsevier.com/locate/cpl

Abstract

We demonstrate a hybrid MC/MD reaction method with rare event-driving mechanism in a practical atomistic simulation of large-scale chemical reaction systems. Application of the method to 2-chlorobutane racemization in N,N-dimethylformamide (DMF) solution starting in the optical pure state (100% ee) was found to successfully provide such an atomistic state with $\sim 10^{-6}$ s, the expected energy of 10⁴–10⁵ kcal/mol of the reaction system in chemical equilibrium. This hybrid MC/MD reaction method is promising for studies of various processes in chemical reaction systems and their interconversion in cells.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

Keywords

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

Chemical reaction

Reaction mechanism

Atomistic simulation

“誤差逆伝播法” — 評価関数の微分を効率的に計算する手法 —

NATURE VOL. 323 9 OCTOBER 1986 LETTERS TO NATURE 533

Learning representations by back-propagating errors

David E. Rumelhart^a, Geoffrey E. Hinton^b & Ronald J. Williams^a

^a Institute for Cognitive Science, C-015, University of California, San Diego, La Jolla, California 92093, USA

^b Department of Computer Science, Carnegie-Mellon University, Pittsburgh, Philadelphia 15213, USA

We describe a new learning procedure, back-propagation, for networks of neurone-like units. The procedure repeatedly adjusts the weights of the connections in the network so as to minimize a measure of the difference between the actual output vector of the network and the desired output vector. As a result of the weight adjustments, internal 'hidden' units which are not part of the input or output come to represent important features of the task domain, and the regularities in the task are captured by the interactions of these units. The ability to create useful new features distinguishes back-propagation from earlier, simpler methods such as the perceptron-convergence procedure.

There have been many attempts to design self-organizing neural networks. The aim is to find a powerful synaptic modification rule that will allow an arbitrarily connected neural network to develop an internal structure that is appropriate for a particular task domain. The task is specified by giving the desired state vector of the output units for each state vector of the input units. If the input units are directly connected to the output units it is relatively easy to find learning rules that iteratively adjust the relative strengths of the connections so as to progressively reduce the difference between the actual and desired output vectors. Learning becomes more interesting but

more difficult when we introduce hidden units whose actual or desired states are not specified by the task. (In perceptrons, there are 'feature analysers' between the input and output units that are not true hidden units because their input connections are fixed by hand, so their states are completely determined by the input vector; they do not learn representations.) The learning procedure must decide under what circumstances the hidden units should be active in order to help achieve the desired input-output behaviour. This amounts to deciding what these units should represent. We demonstrate that a general purpose and relatively simple procedure is powerful enough to construct appropriate internal representations.

The simplest form of the learning procedure is for layered networks which have a layer of input units at the bottom; any number of intermediate layers; and a layer of output units at the top. Connections within a layer or from higher to lower layers are forbidden, but connections can skip intermediate layers. An input vector is presented to the network by setting the states of the input units. Then the states of the units in each layer are determined by applying equations (1) and (2) to the connections coming from lower layers. All units within a layer have their states set in parallel, but different layers have their states set sequentially, starting at the bottom and working upwards until the states of the output units are determined.

The total input, x_i , to unit j is a linear function of the outputs, y_i , of the units that are connected to j and of the weights, w_{ji} , on these connections

$$x_j = \sum_i y_i w_{ji} \quad (1)$$

Units can be given biases by introducing an extra input to each unit which always has a value of 1. The weight on this extra input is called the bias and is equivalent to a threshold of the opposite sign. It can be treated just like the other weights.

A unit has a real-valued output, y_j , which is a non-linear function of its total input

基礎を大切に、広く学びながら、
もう少し先へ！



Ncube ひとまず モードチェンジ！
ご支援 有難うございました！



Collaborators and Students:

- N.O.-Yoshida (DR) • I.Okazaki (DR) • Y.Hara (DR)
 - T.Okamoto (PD) • M.Takayanagi (PD) • Y.Koyano (PD)
 - Y.Oishi (M2) • N.Yamamoto (DR) • K.Yamada (DR)
 - I.Kurisasi (DR) • N.Takenaka (DR) • Y.Suzuki (DR)
 - Y.Kitamura (DR) • K.Matsumoto (DR)
- (Other OBs & OGs and outer Coworkers)



ご清聴有難うございました。

卒業生、修了生、博士研究員、
共同研究者、研究室スタッフ
これまで有難うございました。
これからも宜しくお願いします！

