

研究課題別評価

1 研究課題名: 超効率的な高分子物性機能計算システムの開発

2 研究者氏名: 青木百合子

研究員: Feng Long Gu (研究期間 H.15.3~H17.4,
H17.5~H18.3 (九州大学学術研究員・特任助教授))

研究員: Jacek Korchowiec (研究期間 H.15.10~H17.3)

研究員: Marcin Makowski (研究期間 H.17.3~H17.4,
H17.5~H18.2 (九州大学学術研究員・特任助手))

技術員: 折本裕一 (研究期間 H.15.10~H17.3,
H17.4~H18.3 (九州大学学術研究員))

3 研究のねらい:

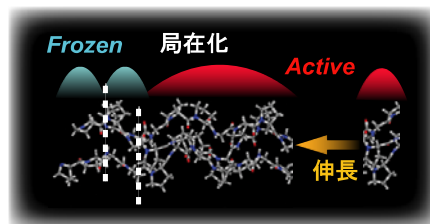
小さな分子に対して成功を遂げた量子化学計算は生体高分子等巨大系に対しては未だ無力である。規則系および不規則系巨大高分子の電子状態を、分子軌道法に基づく量子化学的な手法により、超効率的にしかも精度良く計算できる計算プログラムを完成させると共に、機能性高分子の量子化学的解析方法を組み込むことにより、より実用価値の高い「機能性高分子の分子設計統合システム」を構築する。

まず、高分子の重合反応をシミュレーションしながら効率よく超効率的に電子状態計算ができるよう、代表者らが初めて提唱した Elongation 法を複雑系に対しても適用可能となるよう完成させる。次に、原子・分子のレベルでの機能性高分子材料の分子設計および生体高分子における機能解明のために提出してきた導電性、磁性、非線形光学現象、協同現象に関する量子化学的機能・物性解析方法を発展させる。最後に実用化に向けて、これら機能・物性解析方法を Elongation 法と組み合わせる。本ソフトウェアによって、機能性高分子材料や生体材料の原子・分子レベルでの分子設計が可能となり、材料開発の大幅なコスト削減につなげることを目指す。

4 研究成果:

4-1 Elongation 法の概要

Elongation 法とは、小さなオリゴマーを出発クラスターとして、高分子の重合反応を追跡するようにしてセグメントを順次付加させながら、高分子鎖の電子状態を求めていく方法である。本方法では、クラスター側の分子軌道を付加するセグメントから離れた局在化軌道(Frozen LMO)とセグメントに近い局在化軌道(Active LMO)に分け、セグメントは、Active LMO とのみ相互作用させる。よって、高分子鎖にセグメントを付加させる度に、高分子鎖側の反応末端と付加するセグメントの間の局所的な相互作用のみを取り扱うため、全系をまともに扱う従来の計算に比べて、極めて効率よく電子状態を求めることができる。また、Frozen LMO は、セグメントとの相互作用がある閾値以下になったら計算からはすすようにしているため、計算精度を落とすことなく、正確にかつ効率的に高分子鎖の電子状態を合成していくことができる。しかも遠距離クーロン相互作用は評価されているので、極めて高精度で計算できること、どのようなランダム系に対しても適用可能であることが特徴である。



例えばコラーゲン三重ヘリックス(右図)に適用したところ、全系に対する従来の計算方法との誤差は、 10^{-9} a.u./atom となり、ほぼ完全な一致を示した。全くランダムなシーケンスからなる高分子系に対しても、むしろ領域軌道が効率よく作成できるため、高精度のままさらなる高速演算が可能である。

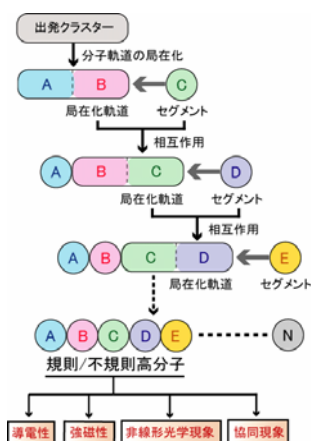
Number of added units	S/STO-3G	S/6-31G	T/STO-3G	T/6-31G
1	1.25×10^{-9}	6.87×10^{-9}	1.92×10^{-9}	19.91×10^{-9}
2	1.17×10^{-9}	10.34×10^{-9}	4.58×10^{-9}	11.42×10^{-9}
3	1.17×10^{-9}	24.39×10^{-9}	7.18×10^{-9}	18.97×10^{-9}
4	1.23×10^{-9}	28.24×10^{-9}	9.55×10^{-9}	34.77×10^{-9}
5	1.35×10^{-9}	47.70×10^{-9}	11.32×10^{-9}	45.12×10^{-9}

S: 一重ヘリックス T: 三重ヘリックス

本方法は、導電性、強磁性、非線形光学特性への機能設計に適用しているが、ここでは応用例として、非線形光学材料設計への応用についてのみ示す。

4-2 Elongation 法における方法論の開発の概要

Elongation 法の概念図は下図(左)であるが、本PRESTOプロジェクトの当初の計画は、下図(右)の表に示すように、半経験的(AM1, PM3, MNDO 法)および非経験的分子軌道法のレベルで制限 Hartree-Fock(RHF)法、非制限 Hartree-Fock (UHF)法、開殻系 Hartree-Fock(ROHF)法全てに対して本方法を確立することであり、通常の Elongation 法、AO-Cut 法の導入による Linear SCF Scaling 法、エネルギー勾配法による構造最適化法全ての組み込みは完了した。さらに、密度汎関数法、電子相関効果の導入について、引き続き展開させているところである。



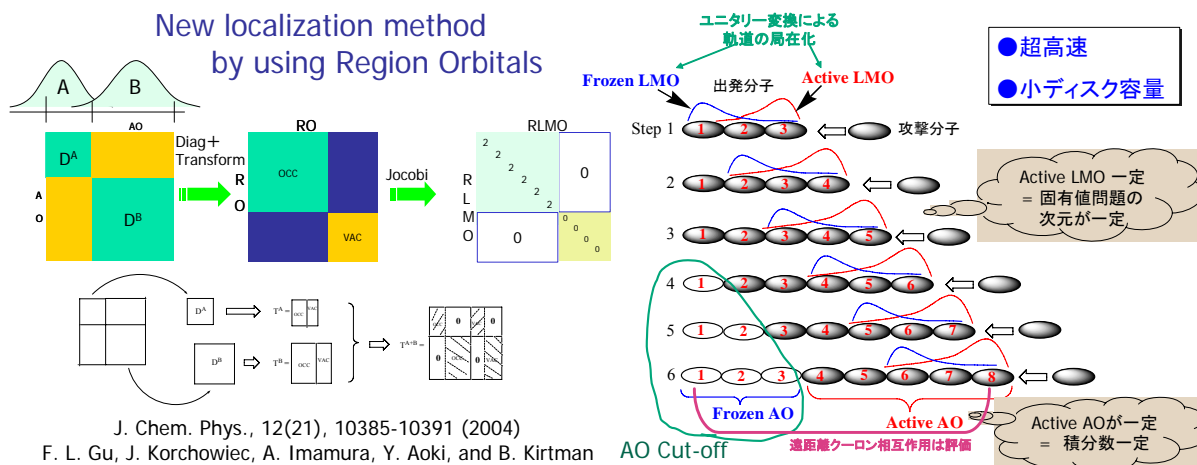
PRESTOの当初の計画は終了

Hamiltonian	通常	AO-Cut/ qfmm	OPT 構造最適化	電子相関効果	
				TD-HF	MP2
AM1, PM3, MNDO	○	○	○	○	○
HF-RHF	○	○	○	○	進行中
HF-UHF	○	○	○	○	進行中
HF-ROHF	○	○	○	○	進行中
DFT	○	進行中	○	○	○

本方法を始めるに当たっての、最大の難点は、それまで行っていた 2×2 法による局在化軌道の作成では基底関数が増えるにしたがって計算時間が膨大になることであった。如何に軌道を各領域にうまく局在させるかが、本計算方法を高精度に保つためのポイントとなる。本プロジェクトにおいて、下図左のように、A領域とB領域に分割した密度行列に対してそれぞれ対角化を行うことにより、極めて効率的にしかも Quality の高い領域軌道を作成できることを提案した。本方法をプログラム化し、ポリペプチド系や系全体が分極した Twitter-ion 系、 π 電子が非局在化した共役系などに適用した結果、極めて高精度で効率よく電子状態を伸長できることを確認した。

もうひとつの難点は、Frozen 領域軌道における基底関数を、如何にして2電子積分の演算から省くかであった。これについては、攻撃分子とFrozen AO 間に新たに生じる必要最低限のクーロン積分は評価するものの、それ以外の項と交換相互作用項は一度演算したものは保存しておき、全エネルギーの計算のときのみ再利用するという効率的な計算手法を導入した。

New localization method by using Region Orbitals

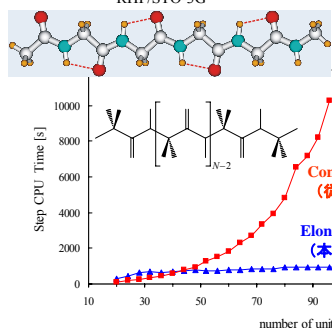


これにより、系を伸長させる過程での Linear SCF Scaling が達成できた。しかし、最後に全エネルギーを計算する段階で、全系のクーロンエネルギーを計算する必要があるため、この部分により、オーダー N からのずれが見られる。この部分を改善するために、遠距離クーロン相互作用の QFMM 法による評価方法を導入している。

本方法により、ポリグリシン巨大系に対して演算し、従来法と本方法での演算時間を比較した(下図左)。伸長過程については、閉殻系のまま重合することができる他、UHF法によりラジカル重合を計算機上で実現することも可能であり、この場合も下表(右)に示すように、誤差は 10^{-8} a.u./unit程度と非常に小さいことがわかる。これはスピン多重度を2重項のままで伸長したものであるが、一方、スピン多重度が系とともに増え続ける高スピン型の磁性高分子の計算も可能となっている。

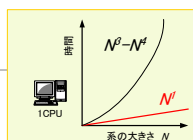
Elongation法の高速性 Polyglycine(～150残基)

C5 Conformer of PolyGlycine
Step Elongation CPU Time in SCF
RHF/STO-3G



超高速

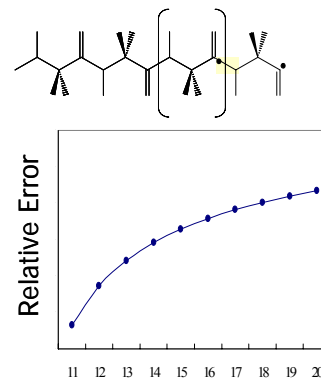
1CPUでオーダー N
...系の大きさ N の一次に
比例した計算時間



Radical polymerization reaction(UHF)

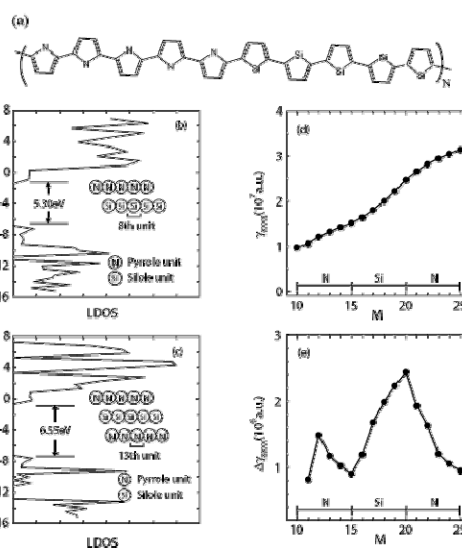
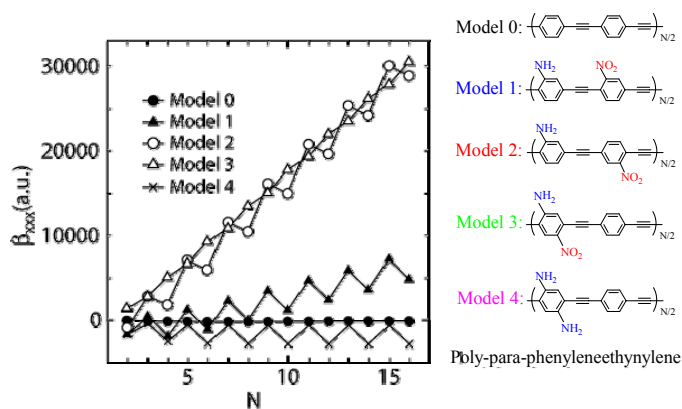
Error(a.u.)
～ 10^{-7} a.u.

POLYGLYCINE		
n	Elongation	Error
10	-271.933904961	0.000000000
11	-299.0780420906	0.000000021
12	-326.222495764	0.000000073
13	-353.366620515	0.000000164
14	-380.511427885	0.000000287
15	-407.6558964318	0.000000442
16	-434.8002670644	0.000000619
17	-461.9448994987	0.000000812
18	-489.0893132462	0.000001023
19	-516.2337881982	0.000001251
20	-543.3782640470	0.000001494



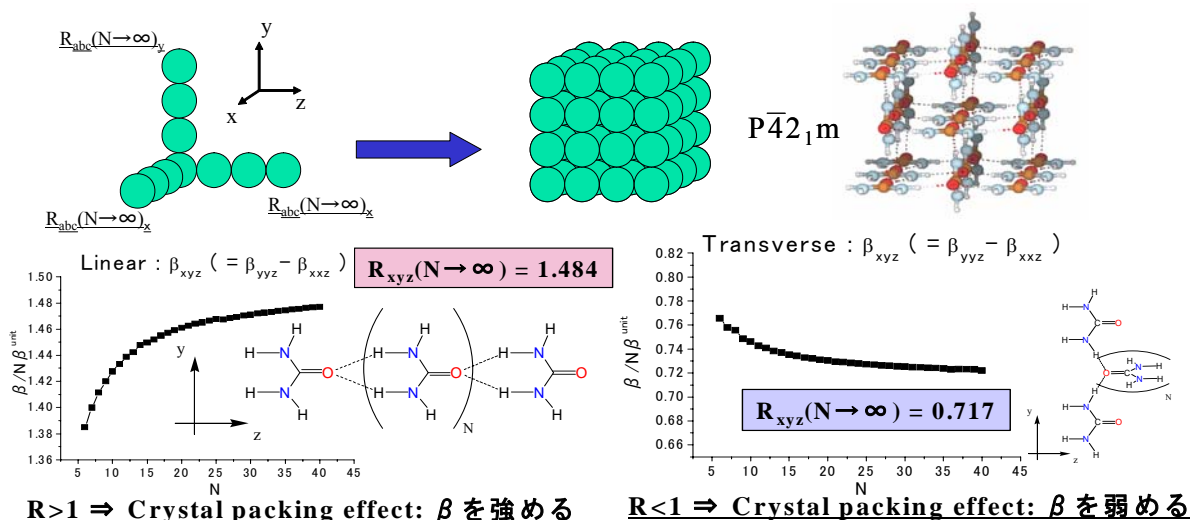
4-3 Elongation 法における非線形光学材料設計への応用

高分子の超分極率が超効率的に計算可能となるよう、Elongation 法にハミルトニアンに電場の効果を導入して全エネルギーの電場勾配を数値的に Finite Field 法によって見積もる Elongation-FF 法を開発し、その応用として、ポリパラフェニレン Push-Pull 置換体のほか、ポリパラフェニレンエチニレンの Push-Pull 置換体等に適用し、2次非線形感受率が、中心対称性が Broken した系においてユニット数とともに増大することを確認した。



また、量子井戸構造(Band gap が大小交互になっている構造)を持つことにより3次の非線形光学性が大きくなることが理論的に示されている。モデル分子として量子井戸構造を持つポリヘテロール(ピロールとシロールからなるブロックポリマー) に対して適用を行い、局所バンド構造と3次の超分極率 γ 、 $\Delta\gamma$ の関係を調べたところ、Band gap が小さい silole block-unit の付加により γ がより大きく増大することが示された(前頁下図右)。

一方、三次元結晶における非線形光学特性計算としてPOM結晶、MNA結晶、Urea結晶などに適用した。例として、Urea結晶の超分極率 β のElongation法による結果をMultiplicative schemeによってもとめた結果を示す。結晶軸x, y, z各方向に伸長させてCrystal packing ratio R_{abc} を計算する。ここで、 $R_{abc} = \beta_{abc}/N\beta_{abc}^{unit}$ 。以下に、Urea結晶におけるLinear方向とTransverse方向のpacking ratioから得られる β_{xyz} を実験値との比較で示す。



実験測定値との比較

$$R_{xyz}(N \rightarrow \infty) = R_{abc}(N \rightarrow \infty)_{linear} \times R_{abc}(N \rightarrow \infty)_{transverse}^2$$

$$= 1.484 \times 0.717^2 = 0.762$$

実験値 $-3.4 \times 10^{-9} \text{esu}$ (Halbout *et al.*¹⁾)

$$\beta_{xyz}^{eff} = -62.44 \text{ a.u.} \times 0.762 = -47.58 \text{ a.u.}$$

$$\chi_{xyz}^{(2)} = \mathcal{N} \times \beta_{xyz}^{eff} = 6.84 \times 10^{21} \text{cm}^{-3} \times -0.412 \times 10^{-30} \text{esu}$$

$$= -2.82 \times 10^{-9} \text{esu} \quad (1 \text{ a.u.} = 8.657 \times 10^{-33} \text{esu}) \quad \text{誤差 } -17.1\%$$

電子相関(MP2)による補正²

$$\chi_{xyz}^{(2)MP2} = \chi_{xyz}^{(2)HF} \times \frac{\beta_{xyz}^{MP2}}{\beta_{xyz}^{HF}} = -2.82 \times 10^{-9} \text{esu} \times \frac{-69.69}{-62.44} = -3.14 \times 10^{-9} \text{esu} \quad \text{誤差 } -7.6\%$$

¹ Halbout, J. M. *et al*, *Nonlinear Optical Properties of Organic Molecular and Crystals*; Vol. 1, p 385-404.

² Castet, F.; Champagne, B. *J. Phys. Chem. A* **2001**, *105*, 1366.

4-4 電子相関効果導入への扉

—Elongation 法の領域局在化スキームによる摂動論への展開

周波数 ω 依存の超分極率を得るために Coupled Perturbed Hartree-Fock 法による超分極率の計算アルゴリズムを領域軌道基底で開発し、Elongation 法に組み込んだ。局在化軌道ベースで Time-dependent Hartree-Fock 方程式を解く全く新しい理論的手法であり、本課題に限らず一般的に応用可能な方法であるため、今まで困難を極めていた巨大系への電子相関効果導入に新しい展開をもたらす方法と期待できる。次に、方法論の概略と、計算結果の一部を示す。

外場のない状態での領域局在化軌道の局在化スキームは、対称直交化後の直交 AO (OAO) を基底とした密度行列は、変換行列を X とすると $D^{(0)OAO} = XD^{(0)AO}X^\dagger$ で表される。

領域軌道の作成は 2 段階で行い、最初の段階は、領域 A に関する直交サブ密度行列 $D^{(0)OAO}$ (A) と領域 B に関する直交サブ密度行列 $D^{(0)OAO}$ (B) をそれぞれ対角化する。

$$T^{(0)A^\dagger} D^{(0)OAO}(A) T^{(0)A} = \lambda^{(0)A} \quad T^{(0)B^\dagger} D^{(0)OAO}(B) T^{(0)B} = \lambda^{(0)B}$$

次にそれぞれから得られた変換行列 $T^{(0)A}$, $T^{(0)B}$ より定義した T 行列 $T^{(0)} = T^{(0)A} \oplus T^{(0)B}$ から領域 (RO) 軌道基底の密度行列 $D^{(0)RO} = T^{(0)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(0)}$ を作成する。ROs から CMOs への変換行列は $C_{RO}^{(0)CMO} = T^{(0)\dagger} X C_{AO}^{(0)CMO}$ となる。

次の段階では、可能な限り局在性を保つような形で $D^{(0)RO}$ の占有ブロックと非占有ブロック間をユニタリー変換し、得られる新しい領域局在化軌道(RLMO)基底の密度行列 $D^{(0)RLMO}$ の NON-ZERO 項のみが2なる対角行列となるようにする。その変換行列を $\zeta^{(0)}$ とすると、CMO と RLMO の関係は $C_{RLMO}^{(0)CMO} = \zeta^{(0)\dagger} T^{(0)\dagger} X C_{AO}^{(0)CMO}$ となり、元の AO 基底であらわすと、最終的な RLMOs は $C_{AO}^{(0)RLMO} = X^{-1} T^{(0)} \zeta^{(0)}$ で与えられる。

次に、時間依存の電場 $E(\omega, t)$ によって摂動を受けた系に対しては、まず、time-dependent Hartree-Fock 方程式を解くために、静電場のもとで摂動展開を行う。

$$D^{AO} = D^{(0)AO} + E D^{(1)AO} + E^2 D^{(2)AO} + \dots$$

$$T^A = T^{(0)A} + E T^{(1)A} + E^2 T^{(2)A} + \dots$$

$$\lambda^A = \lambda^{(0)A} + E \lambda^{(1)A} + E^2 \lambda^{(2)A} + \dots$$

$$\zeta = \zeta^{(0)} + E \zeta^{(1)} + E^2 \zeta^{(2)} + \dots$$

ここで $T^{(1)A}$ を $T^{(1)A} = T^{(0)A} \eta^{(1)A}$ と表現すると、 $\lambda^{(0)A} \eta^{(1)A} + g^{(1)A} + \eta^{(1)A^\dagger} \lambda^{(0)A} = \lambda^{(1)A}$ と書くことができる ($g^{(1)A} = T^{(0)A^\dagger} D^{(1)OAO}(A) T^{(0)A}$)。 $\eta^{(1)A}$ のブロック対角行列はゼロであるが、非ブロック対角行列は以下で与えられる。

$$\eta_{ij}^{(1)A} = \frac{g_{ij}^{(1)A}}{\lambda_j^{(0)A} - \lambda_i^{(0)A}}$$

$T^{(1)B}$ 行列も同様にして計算すると、 $T^{(1)}$ 行列は非摂動系と同様に $T^{(1)} = T^{(1)A} \oplus T^{(1)B}$ で与えられ、RO基底の一次密度行列は $D^{(1)RO} = T^{(0)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(1)} + T^{(0)\dagger} D^{(1)OAO} T^{(0)} + T^{(1)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(0)}$ となる。

Field-dependent RO密度行列を対角化し $\zeta^{(1)} = \zeta^{(0)} g^{(1)}$ および $q^{(1)} = \zeta^{(0)\dagger} D^{(1)RO} \zeta^{(0)}$ とおくと

$$g_{ij}^{(1)} = \frac{q_{ij}^{(1)}}{\phi_j^{(0)} - \phi_i^{(0)}}$$

で与えられる。ここで、固有値の差 $\phi_j^{(0)} - \phi_i^{(0)}$ は + or - 2である。最終的に、摂動系のRLMOは、AO基底で $C_{AO}^{(1)RLMO} = X^{-1} T^{(1)} \zeta^{(0)} + X^{-1} T^{(0)} \zeta^{(1)}$ によって与えられる。本方法は、既に簡単な系に適用して方法論的に間違いのないことを確認済みであり、摂動の高次項に対しても、周波数依存場に対しても共通する一般的な方法となると期待できる。

実際には以下の摂動系に対する Coupled Perturbed Hartree-Fock(CPHF)方程式を解く。

$$F^{(1)} C^{(0)} + F^{(0)} C^{(1)} = C^{(1)} \epsilon^{(0)} + C^{(0)} \epsilon^{(1)}$$

ここで、Fock 行列の摂動項は

$$\begin{aligned} & F^{(1) \text{LMO-AO}}(B+M) \\ &= C^{(0) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(1) \text{AO}}(A+B+M) C^{(0) \text{LMO-A}}(B+M) \\ &+ C^{(1) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(0) \text{AO}}(A+B+M) C^{(0) \text{LMO-A}}(B+M) \\ &+ C^{(0) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(0) \text{AO}}(A+B+M) C^{(1) \text{LMO-A}}(B+M) \end{aligned}$$

で与えられる。

最終的に、Active Space に対して一次の密度行列を以下の式

$$D_{AO}^{(1)AO}(A+B+M) = D_{AO}^{(1)AO}(A) \oplus D_{AO}^{(1)AO}(B+M)$$

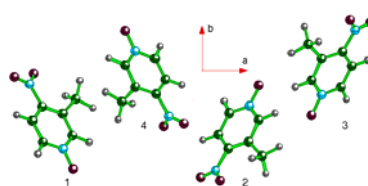
で得ることができ、これより分極率(α)が

$$\alpha = -\text{Tr}[H_{AO}^{AO}(A+B+M)D_{AO}^{(1)AO}(A+B+M)]$$

で与えられる。

これらの Time-dependent Hartree-Fock 法による定式化を Elongation 法に組み込み (ELG-TDHF)、H₂O クラスターに対してテスト計算を行い、従来のダイレクトに全系を扱う方法 (CVL-TDHF) とほぼ完全な一致を見ることができた。出発クラスターが 5 個のとき(下表左上)と 10 個のとき(下表左下)の、従来法による 6-31G 基底による α の比較表である。下図右には、PO M 結晶系における、それぞれの結晶軸に対する α について、Elongation 法による Finite-Field 法 (ELF-FF 法) と、Time-dependent Hartree-Fock 法 (ELG-TDHF) による比較を示すが、一致は極めて良好である。

HF/6-31G	α_{xx}	α_{yy}	α_{zy}	α_{zz}
CVL-TDHF	8.4590	32.3614	-5.6998	41.6113
ELG-TDHF (Nst=5)	8.4593	32.3616	-5.6980	41.6080



HF/6-31G	α_{xx}	α_{yy}	α_{zy}	α_{zz}
CVL-TDHF	15.5076	59.3705	-10.2997	78.0778
ELG-TDHF (Nst=10)	15.5076	59.3703	-10.2996	78.0774

	Method	α_{aa}	α_{bb}	α_{cc}
Along a axis	ELG-FF	974	1202	768
	ELG-TDHF	973	1202	768
Along b axis	ELG-FF	918	1336	718
	ELG-TDHF	918	1320	718
Along c axis	ELG-FF	929	1079	841
	ELG-TDHF	928	1079	835

5 自己評価:

当初の目標は、半経験的分子軌道法および非経験的分子軌道法の Hartree-Fock 法のレベルで Elongation 法を完成させることであったが、最大の難点であった効率的な領域分子軌道の作成において新しい方法を見出したことと、基底(AO)カットオフ法における技術的な問題が解決したことにより、予想より順調に開発が進行した。よってさらに踏み込んで、密度汎関数法のレベルでも開発を進めるとともに、post Hartree-Fock である電子相関効果の導入のための Time-dependent Hartree-Fock 法を組み込み、Coupled Perturbed Hartree-Fock 法による超分極率の計算が可能となった。本方法は Møller-Plesset 摂動法に対しても同様に適用できるため、Hartree-Fock レベルのみでなく、電子相関問題に踏み込むことができたのは大きな成果であった。

一方、階層的電子状態計算法に関しては、半経験的分子軌道法についてはすでに完成しており、非経験的分子軌道法レベルでも同様の手法でいつでも適用できる状態にあるものの、逐次的 Elongation 法を並列環境で開発を行ったため、階層的計算方法の重要性が薄れてしまった。方法論的な基盤は完成しているものの、並列計算機の威力をさらに発揮させるように、本方法を非経験的分子軌道法に組み込む時間的余裕がもてなかったのは残念である。その代わりに階層的方法をカバーする Generalized Elongation 法を考案できたことは、2次元3次元系。さらに複雑な生体高分子に向けて、本方法の適用性を広めることに役立つと期待している。

本方法の特徴として特筆すべき点は、非線形問題の取り扱いに必要な $10^{-6} \sim 10^{-10}$ (μ Hartree 以下)の超高精度を達成できたことである。当初において予想していた精度は 10^{-4} 程度であったが、方法論の改良を行うにつれて、それまで見えていなかった問題がひとつずつ解決し、徐々に計算精度が向上してきた。オーダーN法として提案されている計算方法の中で、本方法を上回る精度を与える方法は世界的に見ても他にないため、当初の目的を遥かに上回る成果となったといえる。ただし、プロジェクト遂行中は基礎方法論の構築に力を注ぐばかりで、なかなか応用に向けて手を広げる余裕はなかった。今後は実験家とタイアップすることにより2次元や3次元系を含む大規模系に向けた適用と新規機能性材料の設計に役立てていきたいと考えている。

6 研究総括の見解:

青木研究者は、タンパク質あるいは DNA のような生体高分子を含む巨大高分子系に対して、原子数の1次に比例した計算時間で効率よく、しかも計算精度を落とすことなく計算できる Elongation 法によるシミュレーション手法を開発した。また、本手法に半経験的、非経験的分子軌道計算、および密度汎関数法等に組み込むことで、その効率性と信頼度の向上を実証した。

本手法によって、従来の量子化学計算では取り扱うことのできなかった巨大系の電子状態が短時間で計算可能となり、様々な条件化における蛋白質構造と機能に関する分子レベルでの解明が可能となる。本研究成果により種々の生体高分子の機能や役割、生理活性現象のメカニズムを経験則ではなく、電子論に基づく一般論として明らかにすることができ、生体機能の学問的発展に大いに貢献できると期待される。

7 主な論文等:

論文 (27件)

1. Elongation Method with Cut-off Technique for Linear SCF Scaling
J. Korchowiec, F. L. Gu, A. Imamura, B. Kirtman, and Y. Aoki, *Int. J. Quantum Chem.*, 102, 785-794, 2005.
2. Elongation Method at Restricted Open-Shell Hartree-Fock Level of Theory
J. Korchowiec, F. L. Gu, and Y. Aoki, *Int. J. Quantum Chem.*, 105, 875-882, 2005.
3. Calculation of Static (Hyper)Polarizabilities for p-Conjugated Donor/Acceptor Molecules and Block Co-Polymers by the Elongation Finite-Field Method
S. Ohnishi, F. L. Gu, K. Naka, A. Imamura, B. Kirtman, and Y. Aoki, *J. Phys. Chem. A*, 108, 8478-8484, 2004.
4. A new localization scheme for the elongation method
F. L. Gu, Y. Aoki, J. Korchowiec, A. Imamura, and B. Kirtman, *J. Chem. Phys.*, 121(21), 10385-10391, 2004.
5. Enhanced hyperpolarizability via electron correlations in donor-sigma-acceptor systems
Y. Orimoto and Y. Aoki, *Phys. Rev. A*, 68, 063808 1-6, 2003.

特許 (国内3件、内PCT出願1件)

1. 特開 2005-242563、科学技術振興機構、Y. Aoki, Y. Orimoto and A. Imamura
「分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」
2. 特願 2004-279278 (PCT/JP2005/016767)、科学技術振興機構、
Y. Aoki, F.-L. Gu, J. Korchowiec, A. Imamura
「エロンゲーション法の分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」
3. 特願 2004-279315 (PCT/JP2005/016767)、科学技術振興機構、
Y. Aoki, F.-L. Gu, J. Korchowiec, A. Imamura
「エロンゲーション法の分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」

著書 (1件)

1. Elongation Method for Polymers and its Application to Nonlinear Optics, in *Atoms, Molecules and Clusters in Electric Fields: Theoretical Approaches to the Calculation of Electric Polarizabilities*, edited by G. Maroulis, accepted for publication in 2005 by the Imperial College Press
Feng Long Gu, Akira Imamura, and Yuriko Aoki, Imperial College Press, 2006.

招待講演 (5件)

1. 高分子計算機科学研究会、東京、2002 年 12 月 「高分子の電子状態計算における効率的な方法の開発と機能設計」24-th Chinese Chemical Society Congress, Changsa(CHINA), 25 April 2004
2. "Development of RHF and UHF elongation methods and application to large polymer

systems”

3. International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2004, Athens(GREECE), November, 2004”Elongation Method at Semi-empirical and ab initio Levels for Large Systems”
4. 社団法人企業研究会 第18期 CAMM フォーラム4月例会本例会ーコンピュータによる材料開発・物質設計を考える会ー、東京、2005 年 4 月「機能性高分子設計のための理論的重合法システム」
5. 富士通計算化学セミナー、福岡、2005 年 4 月「巨大系の超効率的 ab initio 計算のための Elongation 法の開発と機能設計への応用」