

平成 21 年 3 月 31 日現在

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2007～2008

課題番号：19850001

研究課題名（和文）分子ダイナミクス制御にもとづいたナノマシンの理論設計・解析

研究課題名（英文）Theoretical design and analysis of nanomachines by using molecular dynamics control technique

研究代表者

保木 邦仁 (HOKI KUNIHITO)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：00436081

研究成果の概要：研究代表者がこれまでに研究してきた分子ダイナミクス制御・レーザー制御理論に基づいた、ナノマシンの理論設計・実験結果の解析・機能分子の運動の観測手段の提案を目指して研究を進めた。特に、分子モーターの人工合成に必要なと思われる基礎理論の構築を目指した研究を行った。また、第一原理分子動力学法によりモーター分子の運動を評価して回転運動の伝達や散逸の機構を明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,370,000 円	0	1,370,000 円
2008 年度	1,350,000 円	405,000 円	1,755,000 円
年度			
年度			
年度			
総計	2,720,000 円	405,000 円	3,125,000 円

研究分野：化学

科研費の分科・細目：物理化学

キーワード：原子・分子物理、分子機械、分子モーター、レーザー制御

1. 研究開始当初の背景

ナノマシンの創作は、科学者の大きな夢である。近年のナノ工学技術の発達により、有機デバイス、半導体デバイス、分子コンピューター、DNA チップ等、応用上重要な装置が生み出されている。また、生体内において、蛋白等の分子はナノサイズの機械を構成し、自然界において安定に機能している。特に、アクチン-ミオシンの筋収縮メカニズム、レ

チナール基の異性化による暗視下での光感知、ATP 駆動型モーターのイオン輸送等の運動の機構が広く研究、解析されている。

一方、近年のレーザー技術の発達により、化学反応のレーザー制御技術が著しく進歩した。フィードバック制御実験によるパルス電場波形の自動整形技術を用いて、気相での光イオン化や光解離の量子収率制御と同様に、液相における光異性化反応の量子制御の

研究例が報告されている。

近年報告された膜蛋白（バクテリオロドプシン）の光異性化フィードバック制御実験では、パルスの電場強度・エネルギーは一定に保ちながら、波形の位相を調整して光異性化の収率が制御される。この異性化の反応制御機構を解明することにより、生体で光センサーとして機能する蛋白の光応答機構に対する知見が一層深まることが期待されている。

2. 研究の目的

レーザー制御理論に基づいたナノマシンの理論設計、実験結果の解析、機能分子の運動の観測手段の提案を目指す。研究代表者はこれまでに、化学反応ダイナミクスの量子制御、特に分子キラリティー制御、光駆動分子モーターの設計、光異性化のフィードバック実験の理論解析、熱中性子散乱の断面積評価法の開発などを行ってきた。これらの研究成果を更に発展させ、応用範囲の広い理論構築を目指す。ナノサイズの機能分子の解析・設計をおこない、レーザーの可干渉性や中性子散乱の反跳効果を利用することにより、分子系の電子の量子状態やプロトンの振動波束の操作・観測手段を提案する。

3. 研究の方法

キララル分子に直線偏向レーザーを照射して、非対称な分子内回転運動を引き起こすことを考える。このような分子内回転モードでは、右・左回りで越えなければならない遷移状態のエネルギーの高さは同じである。しかし、キララル分子のポテンシャル曲線の形状は非対称なものであり、レーザー場と分子が相互作用することにより、一方向運動の生成が可能である。研究代表者のこれまでの研究成果をさらに発展させ、古典的なモーターのように回転速度や方向を任意に制御する実験法を提案する。これは、量子化された分子内

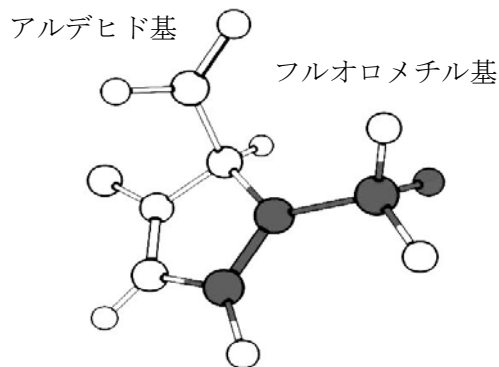


図2 2つの歯車が連動して動くキララル分子モーターのモデル。アルデヒド基の一方向回転運動が直線偏向レーザーにより誘起され、フルオロメチル基が駆動される。キシレン分子等、内部回転基が2つある分子の非調和回転モード間カップリングに関する実験・理論的研究が報告されている。本研究では、このようなカップリングが回転運動の方向に与える影響を明らかにし、歯車の噛み合いの様子を分子動力的に考察した。

一方向回転状態の生成やレーザーの位相を利用した分子内回転制御を行うことにより遂行される。レーザーパルスの電場によって分子モーターをモーターの回転方向や角速度の、ナノ秒・ピコ秒の時間スケールでの制御する。また、分子と環境を記述する多自由度モデルの運動を考慮することにより、分子モーターが外界に与える仕事や熱的な影響について考察する。

また、中性子散乱実験による分子モーターの回転運動や、水や生体分子中のプロトンダイナミクスの観測法を開発する。これまで応募者は、振動核波束ダイナミクス計算を行うことによって中性子散乱断面積を求める方法を開発し、水クラスターの化学結合が中性子散乱の断面積に与える影響について研究してきた。この研究成果をさらに発展させ、水中のプロトンの動力学評価を行うことにより、溶液での核波束の運動や短寿命の量子相関と断面積との関係を考察する。Dreismannらは水-重水混合液の中性子散乱実験を行

い、散乱断面積比が重水素の濃度に依存し、その変化幅は約 2 倍もあることを発見した。この結果を中性子散乱における従来の理論に基づいて説明するのは困難であり、この効果は振動状態の量子力学的な短寿命の相関に起因すると考えられている。中性子散乱は、分子中の核に局所的な撃力を与える最も直接的な手法であり、これにより誘起される分子核波束ダイナミクスに関する理論を展開する。

4. 研究成果

研究代表者がこれまでに研究してきた分子ダイナミクス制御・レーザー制御理論に基づいたナノマシンの理論設計、実験結果の解析、機能分子の運動の観測手段の提案を目指して研究を進めた。特に、分子モーターの人工合成に必要と思われる基礎理論の構築を目指した研究を行った。外場による分子内一方向回転運動の生成に重要と考えられる手法として、

1. 赤外レーザーによる分子内ラチェット構造を利用した手法
 2. ポンプ・ダンプUV/可視パルス列による電子励起状態を経由した手法
- の2つを提案し、量子化学的手法により妥当性と分子運動の機構を検討した。また、第一原理分子動力学法によりモーター分子の運動を評価して回転運動の伝達や散逸の機構を明らかにした(図2参照)。これらの研究成果を総括し、台湾での国際会議や春年会アジア国際シンポジウムに招待された際に発表した。近年、分子性結晶内のベンゼンの回転運動をNMR等で測定した実験が報告されている。本研究結果をさらに発展させるため、この実験結果を解析し、分子内回転運動により機能発現する分子機械の研究

究を展開していく予定である。

また、Dreismann らの中性子散乱実験の理論解析も行った。水素・重水素分子による熱外中性子散乱の微分断面積比を求めて結果を実験と比較した。この結果は現在投稿準備中である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

1. M. Yamaki, S. Nakayama, K. Hoki, H. Kono, and Y. Fujimura, “Quantum dynamics of light-driven chiral molecular motors”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 11 (2009) 1662. 査読有り
2. K. Hoki and P. Brumer, “Dissipation effects on laser control of cis/trans isomerization”, *Chemical Physics Letters*, 468 (2009) 23. 査読有り
3. M. Yamaki, K. Hoki, H. Kono, and Y. Fujimura, “Quantum control of a chiral molecular motor driven by femtosecond laser pulses: Mechanisms of regular and reverse rotations”, *Chemical Physics*, 347 (2008) 272. 査読有り
4. K. Hoki and Y. Fujimura, “Control of Molecular Chirality by Lasers”, *Advances in Multi-Photon Processes and Spectroscopy*, 18 (2008) 245. 査読有り
5. P. Brumer, K. Hoki, and M. Spanner, “An

analysis of two liquid state adaptive feedback experiments”, *Isreal Journal of Chemistry*, 47 (2007) 111. 査読有り

6. M. Kanno, K. Hoki, H. Kono, and Y. Fujimura, “Quantum optimal control of electron ring currents in chiral aromatic molecules”, *Journal of Chemical Physics*, 127 (2007) 204314. 査読有り
7. M. Yamaki, K. Hoki, T. Teranishi, W.C. Chung, F. Pichierri, H. Kono, and Y. Fujimura, “Theoretical Design of an Aromatic Hydrocarbon Rotor Driven by a Circularly Polarized Electric Field”, *Journal of Physical Chemistry A*, 111 (2007) 9374. 査読有り
8. S. Tanabe, K. Hoki, H. Kono, Y. Fujimura, “Calculation of the cross section of epithermal neutron scattering from water by a time-dependent wavepacket approach”, *Journal of Physical Chemistry A*, 437 (2007) 267. 査読有り

[学会発表] (計 7件)

1. Kunihito Hoki, 日本化学会第89春季年会、アジア国際シンポジウム、“Chiral Molecular Motor Driven by a Linearly Polarized Laser Pulses”, 2009年3月29日、日本大学理工学部船橋キャンパス
2. Kunihito Hoki, 13th Asian Workshop on Chemical Reactions, “Chiral Molecular Motor Driven by a Linearly Polarized Laser Pulses”, 2009年3月18日、台湾 台北市、Howard Internat

ional Hotel

3. 保木邦仁、梅木健太、五十嵐明則、河野裕彦、藤村勇一、“熱外中性子散乱に分子振動が与える影響”、分子科学討論会2008、2008年9月27日、福岡国際会議場
4. 保木邦仁、梅木健太、五十嵐明則、河野裕彦、藤村勇一、“分子振動が熱外中性子散乱に与える影響”、第11回理論化学討論会、2008年5月22日、慶応義塾大学理工学部矢上キャンパス
5. 保木邦仁、田辺誠一、河野裕彦、藤村勇一、“分子の熱外中性子散乱断面積における振動効果の理論解析”、第1回分子科学討論会2007、2007年9月17日、仙台
6. 保木邦仁、田名部誠一、河野裕彦、藤村勇一、“分子振動が熱外中性子散乱断面積に与える影響の理論解析”、第32回原子衝突研究会、2007年8月22日、東京
7. 保木邦仁、田名部誠一、河野裕彦、藤村勇一、“時間依存波束計算法を用いた水の熱外中性子散乱断面積の評価”、第10回理論化学討論会、2007年5月14日、名古屋

[図書] (計 0件)

なし

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

なし

○取得状況 (計 0件)

なし

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

保木 邦仁 (HOKI KUNIHITO)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：00436081