

平成 21 年 4 月 30 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006 ~ 2009

課題番号：18066020

研究課題名（和文） 分子集団系の自由エネルギー理論計算

研究課題名（英文） Free energy calculation of molecular assemblies

研究代表者

岡崎 進 (OKAZAKI SUSUMU)

名古屋大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：70194339

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・4601 物理化学

キーワード：(D)分子動力学、(E)化学反応、(H)溶液・コロイド、(P)理論化学

1. 研究計画の概要

分子集団系における化学反応過程および反応機構を分子論的視点から明らかにすることを目的として、以下の2つの系に対して研究を進める：

[1] 水溶液中ミセルの疎水殻中への溶質分子の可溶化反応に対し、分子動力学計算に基づいた数値的に厳密な自由エネルギー計算を実行することにより、溶質のバルクの水中からミセルの疎水核への移動の自由エネルギー変化、および可溶化過程に対する自由エネルギープロファイルを得る。これにより、可溶化の反応機構を分子レベルで明らかにする。

[2] 化学反応の非断熱量子過程の計算科学的研究を可能とするために、分子集団系における核の量子ダイナミクスに対するシミュレーションの新規方法論の開発を量子古典混合系近似の手法を基礎に展開し、量子動力学シミュレーション手法の確立を行う。さらに実在系の溶液中プロトン移動反応への展開を行う。

2. 研究の進捗状況

[1] 溶質分子のミセルへの可溶化の研究：

計算の土台となる分子動力学計算の計算プログラムの開発はほぼ終了しており、これまでに溶質分子(メタンからオクタンまでのアルカン)の水中ミセルに対する自由エネ

ギー変化の計算が終了した。その結果から不溶性溶質分子のミセルコア中心への取り込みに対する安定性についての検討が進んだ。また、可溶化過程に対する自由エネルギープロファイルの計算の準備に着手し、計画どおり順調に推移している。

[2] 溶液中プロトン移動反応の研究：

量子古典混合系近似に基づく新規方法論の開発は完了した。実在系への展開として、溶液内マロンアルデヒドの分子内プロトン移動反応に対するポテンシャルモデルの構築を終え、現在は量子シミュレーションの計算プログラムの開発を行っており、順調に進展している。

以上のように、研究遂行で生じた問題はなく計画通りに進捗している。

3. 現在までの達成度

おおむね順調に進展している

(理由)

本研究に用いる分子動力学計算のプログラム開発が高並列化に成功したことに加え、本研究の補助金で購入した計算機を有効利用できたため、研究計画通りに順調に進展することができた。

4. 今後の研究の推進方策

[1] 溶質分子のミセルへの可溶化の研究：

これまでに得た計算データから分子論のより詳細な解析を進める。同時に可溶化過程に対する自由エネルギープロファイルを計算するためのプログラム開発を行い、代表的な炭化水素分子に対して計算を実行する。この計算に基づいて、可溶化過程の分子論的機構についての詳細な解析を行う。

[2] 溶液中プロトン移動反応の研究：

実在系に対する量子ダイナミクスシミュレーション計算を行うためのプログラムを完成させ、溶液中におけるマロンアルデヒドの分子内プロトン移動反応および液体アンモニア中の分子間プロトン移動反応の計算を実行する。この計算データを解析することにより、溶液内の反応における量子効果および溶媒の役割についての検討を進める。

5. 代表的な研究成果

(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 4件)

A. Yamada and S. Okazaki, A quantum equation of motion for chemical reaction systems on an adiabatic double-well potential surface in solution based on the framework of mixed quantum-classical molecular dynamics, *J. Chem. Phys.* **128**, 044507(8pages)(2008), 査読有

N. Yoshii and S. Okazaki, Free energy of water permeation into hydrophobic core of sodium dodecyl sulfate micelle by molecular dynamics calculation, *J. Chem. Phys.* **126**, 096101(3 pages)(2007), 査読有
S. Kajimoto, N. Yoshii, J. Hobley, H. Fukumura, and S. Okazaki, Electrostatic potential gap at the interface between triethylamine and water phases studied by molecular dynamics simulation, *Chem. Phys. Lett.* **448**, 70-74(2007), 査読有

N. Yoshii and S. Okazaki, A molecular dynamics study of structure and dynamics of surfactant molecules in SDS spherical micelle, *Condens. Matt. Phys.* **4**, 573-578(2007), 査読有

[学会発表](計 7件)

S. Okazaki and A. Yamada, "A Mixed Quantum-Classical Molecular Dynamics Approach to Proton Transfer Reaction of a Solute Molecule in Solution", 15th International Conference on the Properties of Water and Steam (ICPWS), Berlin, Germany, September 7-11, 2008

S. Okazaki, N. Yoshii, K. Fujimoto, "A

Molecular Dynamics Study of Stability of SDS Micelle in Water and Solubilization of Solute Molecule by It", EMLG/JMLG Annual Meeting 2008, Lisbon, Portugal, August 31-September 4, 2008

S. Okazaki, "Molecular dynamics study of micelle formation in water and solubilization of solute molecules by it", International Symposium on Multi-scale Simulations of Biological and Soft Materials (MSBSM2008), Tokyo, June 18-20, 2008

N. Yoshii and S. Okazaki, "A Molecular Dynamics Study of Free Energy of Micelle Formation in Water", 62nd Calorimetry Conference held jointly with The Japan Society of Calorimetry and Thermal Analysis(Calcon 2007), Hawaii, August 2007

S. Okazaki, "A Quantum Molecular Dynamics Study of Energy Relaxation and Decoherence of Solute Vibration in Solution", 20th International Conference on Raman Spectroscopy(ICORS 2006), Yokohama, August 2006

N. Yoshii and S. Okazaki, "A Molecular Dynamics Study of the Free Energy of Micelle Formation for SDS in Water and its Size Distribution", 16th Symposium on Thermophysical Properties, Boulder, USA, July 2006

S. Okazaki and A. Yamada, "A quantum dynamics simulation for proton transfer reaction in solution based upon a diabatic surface hopping method", 12th International Conference on Retinal Proteins (ICRP) Satellite Meeting in Nagoya "Structure, Function & Evolution of Rhodopsins: Mechanisms of Proton Transfer and Color Tuning", Nagoya, June 2006