

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 4月 4日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23655101

研究課題名（和文）

分子系の引き込み現象可能性に関する理論的研究

研究課題名（英文）

Theoretical studies on possibility of the entrainment in molecular systems

研究代表者

長尾 秀実 (NAGAO HIDEMI)

金沢大学・数物科学系・教授

研究者番号：30291892

研究成果の概要（和文）：

二原子分子や脂質ミセルの振動モデル分子を構築し、溶媒中のモデル分子のシミュレーションを実施した。低密度溶媒中の分子間では引き込み現象は観測できなかったが、高密度溶媒中の二分子間では引き込み現象が誘発されることが分かった。

以上の結果から分子振動の引き込み現象は高密度の溶媒中で誘起される可能性が高いことが示すことができた。今後の課題として溶媒の粘性や物性と分子の引き込み現象に関する研究が挙げられる。

研究成果の概要（英文）：

We have discussed the dynamics of molecular systems by using some molecular models in relation to the frequency entrainment. We have found that the frequency entrainment in molecules is not observed in the solvent with lower density. On the other hand, in the case of higher density of the solvent, we have observed the frequency entrainment between molecules explicitly.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	1,700,000	510,000	2,210,000

研究分野：理論化学

科研費の分科・細目：複合化学・高分子化学

キーワード：引き込み現象、分子動力学シミュレーション、自己組織化、高分子、脂質ミセル

## 1. 研究開始当初の背景

蛍の同時発光現象や心臓細胞の律動等の引き込み現象は、蔵本理論により論じることができる。引き込み現象の発見は17世紀にホイヘンスが梁に並べて吊るした振動数の異なる時計の振り子が時間の経過とともに同周期で運動することを観測したのが初めである。分子動力学シミュレーションのアルゴリズムの中に暗に非線形項を導入していることに気がついた。たとえばシミュレーションの温度を一定に保つ為に速度に比例する項を導入している。この項は分子間にある引き込み現象を引き起こす可能性があることに気がついた。マクロな世界で現れる引き

込み現象が分子等のミクロな世界にも現れる可能性がある。連携研究者(数学者)と議論の後、本研究が挑戦的萌芽研究にふさわしいと判断し計画するに至った。

## 2. 研究の目的

本研究では分子レベルのミクロな世界で引き込み現象が現れるかどうかを観測・解析・検証することを目的とする。ある温度に設定した熱浴と相互作用する、ある二原子分子の振動周期は、初期値に関係なく時間の経過とともに同じ振動周期に達する可能性がある。その分子動力学シミュレーションの実施と系の運動方程式の位相縮約により、分子

の引き込み現象の出現を示す。また数個の脂質が作る溶媒中のミセル同士の引き込み現象を分子動力学シミュレーションにより観測・解析することを試みる。二個の脂質ミセルの振動周期が同じになることを観測できる可能性がある。

### 3. 研究の方法

本研究目的である分子レベルのミクロな世界で引き込み現象が現れるかどうかを観測・解析・検証するため、(1)二原子分子の引き込み現象の研究と(2)脂質ミセルの引き込み現象の研究の研究項目を設定する。水素分子等の二原子分子及び数個の脂質が作る溶媒中の二個の脂質ミセルの分子動力学シミュレーションを実施する。分子振動や準安定状態間振動が同振動数になるかを観測する。引き込み現象出現の温度依存性、圧力依存性、相互作用依存性を探索し、引き込み現象出現の臨界条件等を見つけることを目指す。シミュレーション結果を詳細に検討することにより、多分子で起こる集団引き込み現象の数理モデルの構築を計画し、多分子系の連立方程式の位相縮約を試みる。本研究は連携研究者と大学院生研究協力者で実施する。

### 4. 研究成果

本研究において、二原子分子や脂質ミセルのモデル分子を構築し、様々な条件下での引き込み現象の分子動力学シミュレーションによる研究を実施した。

分子密度が均一な高温状態では二原子分子振動の引き込み現象の観測は困難であった。一方、低温状態では二原子分子がクラスター化して、一部の少数分子クラスター内では分子振動に引き込み現象が観測された。

溶媒のない状態(真空中)かつ低温状態でのシミュレーション結果からは、粒子数、体積、温度が一定の条件下で振動の引き込み現象が観測できた。一方、粒子数、体積、エネルギーが一定の条件下では観測できなかった。そこで熱浴を含む粒子の運動方程式はファンデルポール方程式に帰属できることを示し、シミュレーション中の熱浴による相互作用が引き込み現象の原因であることを示した。

次に溶媒中のモデル分子のシミュレーションを実施した。低密度溶媒中の分子間では引き込み現象は観測できなかったが、高密度溶媒中の二分子間では引き込み現象が誘発されることが分かった。

以上の結果から分子振動の引き込み現象は高密度の溶媒中で誘起される可能性が高いことが示すことができた。

本研究で得られた結果は国際学会で報告し、論文に報告した。今後の課題として溶媒の粘性や物性と分子の引き込み現象に関する

研究が挙げられる。引き続き研究を実施する予定である。

### 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20件)

- ① H. Nagao, S. Kawamoto, M. Rusmerryani, A. Purqon, K. Kawaguchi, H. Saito, "Theoretical Study on Entrainment Phenomenon in Model Molecular Systems", AIP Conference Proceedings, 1518 (2013) 729-732. 10.1063/1.4794669 査読有
- ② H. Saito, M. Iwayama, T. Mizukami, J. Kang, M. Tateno, H. Nagao, "Molecular Dynamics Study on Binding Free Energy of Azurin-Cytochrome c551 Complex", Chemical Physics Letters, 556(2012)297-302, 10.1016/j.cplett.2012.12.016, 査読有
- ③ K. Kawaguchi, H. Takagi, M. Iwayama, M. Nishimura, T. Miyakawa, H. Saito, M. Takasu, H. Nagao, "Molecular Dynamics Analyses of the Dissociation Process of ADP from Hsp90", International Journal of Quantum Chemistry, 112, (2012), 3791-3795, 10.1002/qua.24229, 査読有
- ④ Sergei P. Kruchinin, Hidemi Nagao, "Nanoscale Superconductivity", International Journal Modern Physics, B 26(2012),12300013, 10.1142/S0217979212300137, 査読有
- ⑤ Hiroaki Saito, Taku Mizukami, Shuhei Kawamoto, Takeshi Miyakawa, Masashi Iwayama, Masako Takasu, Hidemi Nagao, "Molecular Dynamics Studies of Lipid Bilayer with Gramicidin A: Effects of Gramicidin A on Membrane Structure and Hydrophobic Match", International Journal of Quantum Chemistry, 112(2012),161-170, 10.1002/qua.23252, 査読有
- ⑥ Shuhei Kawamoto, Takeshi Miyakawa, Masako Takasu, Ryota Morikawa, Tatsuki Oda, Shiroh Futaki, Hidemi Nagao, "Cell-Penetrating Peptide Induces Various Deformations of Lipid Bilayer Membrane: Inverted

Micelle, Double Bilayer, and Transmembrane”, International Journal of Quantum Chemistry, 112(2012), 178-183, 10.1002/qua.23177, 査読有

- ⑦ Taku Mizukami, Hiroaki Saito, Shuhei Kawamoto, Takeshi Miyakawa, Masashi Iwayama, Masako Takasu, Hidemi Nagao, ” Solvation Effect on the Structural Change of Globular Protein: A Molecular Dynamics Study” International Journal of Quantum Chemistry, 112(2012), 344-350, 10.1002/qua.23251, 査読有
- ⑧ Shuhei Kawamoto, Masako Takasu, Takeshi Miyakawa, Ryota Morikawa, Tatsuki Oda, Shiroh Futaki, Hidemi Nagao, ” Binding of Tat peptides on DOPC and DOPG lipid bilayer membrane studied by molecular dynamics simulations”, Molecular Simulation, 38(2012), 366-368, 10.1080/08927022.2010.536546, 査読有

[学会発表] (計31件)

- ① 宮川毅, 森河良太, 高須昌子, 杉森公一, 川口一朋, 齋藤大明, 長尾秀実, ”Hras-GTP内におけるGTP周辺にある水分子の分子動力学法による研究”, 第68回日本物理学会 春季大会, 2013年3月26日~29日, 広島
- ② K. Kawaguchi, H. Takagi, M. Iwayama, H. Saito, H. Nagao, ” Molecular dynamics analyses of dissociation process of ADP from Hsp90”, International Symposium On Computational Science 2013(招待講演), 2013年2月18日~21日, Kanazawa
- ③ Masashi Iwayama, Isman Kurniawan, Kazutomo Kawaguchi, Hiroaki Saito, Hidemi Nagao, ” Theoretical studies on oxidation of molecules by combining MD and QM/MM calculations”, The 53rd Sanibel Symposium, 2013年2月17日~22日, Florida, USA
- ④ Hidemi Nagao, Michke Rusmerryani, Acep Pruqon, Kazutomo Kawaguchi, Hiroaki Saito  
”Theoretical study on entrainment phenomenon in model molecular systems” The 4th International Symposium on Slow Dynamics in

Complex Systems 2012年12月2日-7日 仙台

- ⑤ K. Kawaguchi, H. Saito, Hidemi Nagao, ” Free energy profile of Hsp90-ADP binding by molecular dynamics simulations”, Conference on Computational Physics (CCP2012), 2012年10月14日~18日, Kobe
- ⑥ H. Saito, M. Iwayama, T. Mizukami, K. Kawaguchi, Hidemi Nagao, ” Binding Free Energy of Azurin-Cytochrome c551 Complex by all-atom Molecular Dynamics Simulation”, Conference on Computational Physics (CCP2012), 2012年10月14日~18日, Kobe
- ⑦ H. Saito, M. Iwayama, M. Nishimura, H. Takagi, K. Kawaguchi, H. Nagao, ”Structure and lateral pressure profile of lipid bilayer containing gramicidin A by molecular dynamics simulation”, 第50回日本生物物理学会年会, 2012年9月22日~24日, 名古屋
- ⑧ H. Nagao, ” THEORETICAL STUDIES ON SUPERCONDUCTIVITY IN ULTRASMALL GRAIN” 9th International Conference on New Theories, Discoveries, and Applications of Superconductors and Related Materials (招待講演), 2012年9月16日~20日, Rome, Italy
- ⑨ Kazutomo Kawaguchi, Hiroyuki Takagi, Masashi Iwayama, Hiroaki Saito, and Hidemi Nagao, ” Free energy profile for binding of ADP to Hsp90 by molecular dynamics simulation” The 5th International Symposium on Computational Sciences (ISCS) 2012 (招待講演), 2012年5月15日~16日
- ⑩ Hiroaki Saito, Masashi Iwayama, Hiroyuki Takagi, Kazutomo Kawaguchi, and Hidemi Nagao, ” Molecular dynamics study of gramicidin A in lipid bilayer: structure and lateral pressure profile”, The 5th International Symposium on Computational Sciences (ISCS) 2012 (招待講演), 2012年5月15日~16日

[その他]

ホームページ等

<http://hal.s.kanazawa-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長尾 秀実 (NAGAO HIDEMI)  
金沢大学・数物科学系・教授  
研究者番号：30291892

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

長山 雅晴 (NAGAYAMA MASAHARU)  
北海道大学・電子科学研究所・教授  
研究者番号：20314289

岩崎 宏 (IWASAKI HIROSHI)  
金沢大学・数物科学系・准教授  
研究者番号：30242514

齋藤 大明 (SAITO HIROAKI)  
金沢大学・数物科学系・助教  
研究者番号：40506820

川口 一朋 (KAWAGUCHI KAZUTOMO)  
金沢大学・数物科学系・助教  
研究者番号：90402429