

B3-03

水圏において多数の水分子が協奏して引き起こされる水素結合ダイナミクス

○金鋼(阪大院基礎工)

「水圏機能材料」において、高分子と強く相互作用し凍らない水として機能する水分子の運動性を解明する重要性が指摘されているが、分子スケールから巨視的物性を決めるマルチスケール階層性の全貌解明には至っていない。そこで鍵となるのは、多数の水分子が協奏することでいかに水素結合が破断・結合するかを正確に理解することである。本研究は、分子動力学(MD)シミュレーションを用いた研究を展開し、水素結合ネットワークの解明と通した水圏機能材料の学理深化を目指すものである。

本発表では、プロトタイプとして純水をターゲットとしたマルコフ状態モデルによる水素結合破断の遷移過程を特徴付ける研究について述べる。

マルコフ状態モデルとは、MDシミュレーションで得られた軌道から離散的な状態を定義しその状態間の遷移レートと、状態の定常確率を定量化する手法である。もともとは、生体分子の構造変化ダイナミクス(例えば、折り畳み状態とほどけた状態間の遷移)を評価するために開発されてきた¹⁾。本研究はこれを水分子の状態間遷移へ応用し、水素結合の破断に伴う構造変化の遷移ネットワークとその温度依存性を解析した(Fig. 1)。その結果、常温 300 K では、支配的な遷移経路は、中間状態を伴わず直接新しいアクセプターへ水素結合するものであり、全遷移の約 2/3 を占めていた。一方で、温度が低下され過冷却状態になると、水素結合破断に伴う中間状態として、水素結合スポット以外の第 1 配位圏に弱く配向する割合が増加することが明らかとなった。このことは過冷却状態では複数の分子が関与する協働的運動を適切に記述する反応座標の抽出が必要となることを示唆する。

今後、水多体間協働的運動の局所構造を特徴付ける変数を抽出する理論的技術を確立し、より一般の水圏機能材料への応用を目指す。

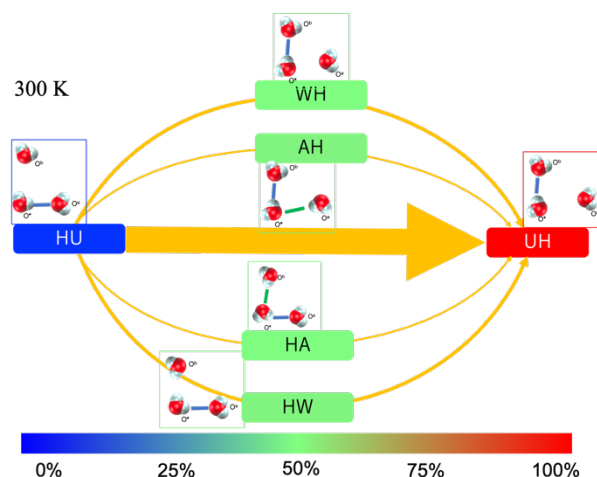


Fig. 1 : 300 K における水素結合破断における水分子 3 体の遷移経路図。H・U・W・A は、それぞれ 2 体間の水素結合状態、非結合状態、弱い結合状態、他のスポットでの結合状態を表しており、この組み合わせで 3 体間の構造を記述している。本研究では HU を始状態、UH を終状態としてマルコフ状態モデルを構築した。矢印の太さは選択率、各状態の色はコミッターとよばれる、始状態に到達する前に終状態に到達する確率を意味する。

1) G. R. Bowman, V. S. Pande, F. Noé, *An Introduction to Markov State Models and Their Application to Long Timescale Molecular Simulation*, (Springer Netherlands 2014).

PROFILE

金 鋼(大阪大学大学院基礎工学研究科)

京都大学大学院情報学研究科数理工学専攻博士後期課程を経て、2003 年 JST 博士研究員、2006 年分子科学研究所助手、2007 年 同助教、2013 年新潟大学大学院自然科学研究科准教授、2016 年より大阪大学大学院基礎工学研究科准教授。博士(情報学)。専門は、ソフトマター化学工学。受賞歴は、2011 年日本物理学会若手奨励賞、2015 年分子シミュレーション学会学術賞。