

## 6-4 理論・計算分子科学研究領域

### 理論分子科学第一研究部門

齊 藤 真 司（教授）（2005 年 10 月 1 日着任）

甲田 信一（助教）

TANG, Zhiye（助教）

ZHU, Zhe（大学院生）

千葉 史朱香（事務支援員）

A-1) 専門領域：物理化学，理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 生体機能ダイナミクスの理論研究：天然光合成系における効率的励起エネルギー移動
- b) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：顕著な構造変化を伴わない過冷却液体の運動の遅延化
- c) 凝縮系ダイナミクスの理論研究：揺らぐ環境下での反応・拡散過程

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 生体機能ダイナミクスに関する研究として，高等植物の光化学系 II の光捕集アンテナ複合体 LHCII における励起エネルギー移動（EET）の解析を進めている。LHCII 中の EET の解明には，クロロフィル（Chl）分子の励起エネルギーやその揺らぎ（スペクトル密度）の知見が不可欠である。最近，我々は TDDFT 計算におけるパラメータの調整を行い，異なる誘電率をもつ複数の溶液中での Chl 分子の励起エネルギーを適切に記述することに成功した。さらに，これらの適切な電子状態計算の結果を再現する分子動力学（MD）計算における Chl 分子のパラメータの開発にも成功した。これらの成果をもとに，膜中に存在する LHCII の長時間の MD 計算を実施し，吸収スペクトルなどの実験結果を再現できることを確認した。さらに，LHCII 内の異なる環境下にある Chl 分子の励起エネルギーレベルや揺らぎの分子機構が明らかになってきた。
- b) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，温度低下による過冷却液体のダイナミクスの遅延化の分子起源の解明に取り組んでいる。過冷却液体状態は，構造的には通常の液体状態と類似しているが，ダイナミクスに関しては，液体状態のものに比べ遅くなっていくという特徴をもつ。液体から結晶への変化のような顕著な構造変化を伴わない過冷却液体の運動の遅延化の機構解明は，凝縮系物理学における長年の課題の一つである。我々は，反応速度論において提案された「動的乱れ」の概念に基づき，過冷却水における運動の遅延化における分子機構を明らかにした。
- c) 凝縮系ダイナミクスに関する研究として，我々は，反応・拡散過程に関する課題にも取り組んでいる。その研究の一つとして，揺らぎが引き起こす‘異常’質量依存拡散現象について解析を進めている。軽水と重水はそれらの質量や化学的・熱力学的性質が類似しているため，同位体水を分離することは極めて困難である。しかし，最近，北川らにより開発された多孔質配位高分子（PCP）を用いることにより，従来にない高効率で同位体水の分離が可能であることが実験的に明らかにされた。同位体水の分離機構として，PCP 内の配位子の構造揺らぎが考えられている。

しかし、その理論的な裏付けは未だ明らかにされていない。そこで我々は、実験系を単純化した理論モデルを構築し、  
‘異常’ 質量依存の拡散現象の機構解明に取り組んでいる。

#### B-1) 学術論文

**S.-I. KODA and S. SAITO**, “Locating Transition States by a Variational Minimum Energy Path Search with an Energy-Derivative-Free Objective Function,” *J. Chem. Theory Comput.* **20(7)**, 2798–2811 (2024). DOI: 10.1021/acs.jctc.3c01246  
**J. ONO, Y. MATSUMURA, T. MORI and S. SAITO**, “Conformational Dynamics in Proteins: Entangled Slow Fluctuations and Nonequilibrium Reaction Events,” *J. Phys. Chem. B* **128(1)**, 20–32 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c05307  
**T. INAGAKI, M. HATANAKA and S. SAITO**, “Anisotropic and Finite Effects on Intermolecular Vibration and Relaxation Dynamics: Low-Frequency Raman Spectroscopy of Water Film and Droplet on Graphene by Molecular Dynamics Simulations,” *J. Phys. Chem. B* **127(26)**, 5869–5880 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c02109

#### B-4) 招待講演

**S. SAITO**, “Unraveling collective orientation relaxation in aqueous solution: Effects of ion and finite-size,” Asian Research Network for Terahertz Molecular Science, Kobe (Japan), March 2024.  
**S. SAITO**, “Uncovering the secrets of water: Hidden structures and dynamics,” Theoretical Chemistry Symposium, Chennai (India), December 2023.  
**S. SAITO**, “Structural change dynamics in molecular systems,” Structure and Dynamics of Chemical and Biomolecular Systems, Kanpur (India), October 2023.  
**S. SAITO**, “Structural change dynamics in molecular systems,” Theory and Applications of Computational Chemistry (TACC) 2023, Sapporo (Japan), September 2023.  
**S. SAITO**, “Conformational Dynamics of Biomolecules Revealed by Molecular Simulations,” 11<sup>th</sup> International Conference on Biological Physics (ICBP) 2023, Seoul (Korea), August 2023.

#### B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

分子科学会運営委員 (2022–2024).

日中韓理論化学ワークショップ幹事 (2013–).

学会の組織委員等

Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (TRCS2025) 組織委員 (2022–2025).

学会誌編集委員

日本化学会速報誌編集委員会委員 (2023–).

その他

森野基金 運営委員会委員 (2020–).

計算物質科学協議会 運営委員会委員 (2020–).

B-8) 大学等での講義, 客員

Indian Institute of Technology Kanpur, 客員教授, 2020年4月–2025年3月.

神戸大学, 非常勤講師, 2024年1月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「高等植物の光捕集アンテナタンパク質における効率的励起エネルギー移動の理論研究」, 齊藤真司 (2021年度–2025年度).

科研費挑戦的研究(開拓), 「凝縮系反応・構造動力学における動的乱れの解明に向けた理論・計算手法の開拓」, 齊藤真司 (2023年度–2026年度).

科研費若手研究, 「シアノバクテリア時計タンパク質振動子の出力分子機構の理論的解明」, 甲田信一 (2022年度–2024年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は, 生体分子系の機能および凝縮系のダイナミクスに関する理論研究を進めている。これらの研究に関する展望は, 以下の通りである。

生体分子機能に関するダイナミクスに関しては, 高等植物のLHCIIにおける励起エネルギー移動の分子機構の解明をさらに進める。励起エネルギー移動の分子論的解明には, LHCII系の個々のChl分子の適切な電子状態とダイナミクスの記述が不可欠である。我々は, これらの物理量を適切に記述する方法論の開発に成功し, 膜中に存在するLHCIIにおける励起エネルギー移動ダイナミクスの解析を可能にした。今後, LHCII内の不均一な環境下でのChl分子の励起ダイナミクスを解析し, LHCIIにおける効率的なEETダイナミクスを分子レベルで解明することを目指す。これまでに我々は, 緑色硫黄細菌のFMOタンパク質における励起エネルギー移動を解析し, 各色素分子のエネルギー揺らぎがFMOタンパク質中の効率的な励起エネルギー移動に重要な役割を果たしていることを明らかにしてきた。そこで, LHCIIにおける励起エネルギー移動の解析を進め, LHCIIとFMOタンパク質の励起エネルギー移動を比較することにより, 天然光合成系における励起エネルギー移動の理解を深めていく。さらに, バクテリアと高等植物の異なる進化段階における励起エネルギー移動の普遍性や特異性を明らかにしたい。

凝縮系ダイナミクスに関する研究として, 凝縮系における構造変化や反応・拡散過程がどのように進行するかについて, さらに研究を進める。構造変化ダイナミクスに関しては, (過冷却)液体におけるガラス転移に向かう運動の遅延化の分子機構に関する研究を展開させる。系によりエネルギー地形が異なり, エネルギー地形の違いは, fragility (すなわち, ダイナミクスの時間スケールの温度依存性)の違いに反映されることが知られている。そこで, 今後は, 異なるfragilityをもつ液体における運動の遅延化がどのように異なるのかについても明らかにしていきたい。また, 反応・拡散過程に関する課題としては, 多孔質配位高分子系により同位体水の高効率分離の分子機構の解明に向けた研究をさらに進める。構造変化ダイナミクスや拡散ダイナミクスの研究で明らかにしたように, 動的乱れ, すなわち, 揺らぎを露わに考慮しなければいけない環境下での反応・構造変化・拡散ダイナミクスは, 従来の結果には見られない複雑なダイナミクスの様相を示す。そこで, 新たな研究の方向性として, 揺らぐ環境下の酵素反応や核形成過程がどのように進行するかなどについても, これまでとは異なる新しい分子論的観点から明らかにしていきたい。