

# 凝縮系におけるダイナミクスと分光に関する理論解析



## 斉藤 真司 (教授)

1988年慶應義塾大学理工学部卒 1990年京都大学大学院工学研究科修士課程修了、1995年博士(理学)(総合研究大学院大学) 1990年分子科学研究所技官、1994年名古屋大学理学部助手、1998年助教授を経て2005年10月より現職  
TEL: 0564-55-7468 FAX: 0564-55-7025  
電子メール: shinji@ims.ac.jp

専門領域

機能分子科学専攻

我々のまわりの自然は多様性に満ちている。しかも、その多様性は、さまざまな空間・時間スケールで変化しつづけている。このようなダイナミックな変化の様相、起源を分子レベルから明らかにするために、我々は分子シミュレーションや電子状態理論などを用いて研究を進めている。とくに、さまざまな分光学的・統計学的手法を用いた理論・数値解析を行っている。現在の主な興味は以下の通りである。

溶液や生体系のダイナミクスの解析<sup>1,2)</sup>

水など水素結合をもつ分子間の相互作用が強い系では、幅広い時間スケールをもつネットワーク構造変化による複雑な揺らぎが見られ、エネルギーや分極率のスペクトルにおいて $1/f$ 的な特徴を示す。我々は、このような運動がさまざまな観測においてどのようにみられるのか、またその起源について力学的視点から解析を進めている。また、溶液内化学反応についても解析を行っている。

生体系の化学反応として、細胞増殖に関わるRasにおけるGTP加水分解反応の解析を行っている。反応にともないどのような構造変化・揺らぎが生じ、または抑えられ、機能の発現に関わっているのか解析を進めている。

過冷却液体、相転移ダイナミクスの解析<sup>3)</sup>

液体の温度を急激に下げると、結晶にならず自由エネルギー的には結晶よりも不安定な過冷却状態になる。過冷却状態で

は、構造変化ダイナミクスのスローイングダウンが起こる。過冷却液体におけるポテンシャルエネルギー面のダイナミクスへの影響、構造・密度揺らぎの影響、エネルギー(エンタルピー)地形の温度変化の解析を進めている。

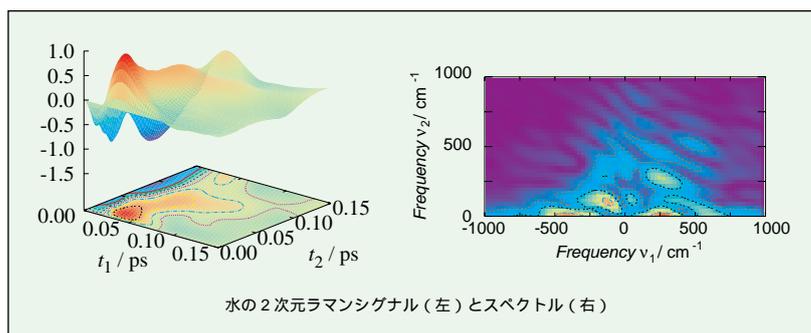
また、我々は、これまでに水の結晶化過程の解析を行ってきた。融解過程も結晶化過程と同様に非常に興味深い現象であり、欠陥がどのように生じ、どのように広がっていくのか、界面の影響、さらに、結晶化ダイナミクスとの違いなどについて分子論的な解析を行っている。

凝縮系ダイナミクスの多次元分光法に基づく解析<sup>4)</sup>

凝縮系の複雑なダイナミクスの様相を、多次元分光法の視点から解析を行っている。多次元分光法とは、異なる3つ以上の時刻で系と電場が相互作用するような分光法である。我々はこれまでに、現実系に対する多次元分光法の計算方法の開発を世界に先駆けて行ってきた。とくに平衡および非平衡分子動力学法を用いた2次元ラマン分光法の理論・数値解析を進めてきた。その結果、2次元ラマン分光法からは、通常の1次元分光法に比べ、構造やダイナミクスのより詳細な情報が得られることを示した。以上の成果の展開として、多次元分光法に基づく化学反応ダイナミクスの解析に興味をもっている。また、構造やダイナミクスに対する敏感さは多次元振動分光法に限られるものではなく、振動分光法以外の測定法への多次元的計測(解析)の理論展開を進めている。

## 参考文献

- 1) A. Shudo and S. Saito, "Slow Relaxation in Hamiltonian Systems with Internal Degrees of Freedom," *Adv. Chem. Phys.* **130**, 375–421 (2005).
- 2) T. Yagasaki, K. Iwahashi, S. Saito and I. Ohmine, "A Theoretical Study on Anomalous Temperature Dependence of pK<sub>w</sub> of Water," *J. Chem. Phys.* **122**, 144504 (9 pages) (2005).
- 3) M. Matsumoto, S. Saito and I. Ohmine, "Molecular Dynamics Simulation of the Ice Nucleation and Growth Process Leading to Water Freezing," *Nature* **416**, 409–413 (2002).
- 4) S. Saito and I. Ohmine, "Fifth-Order Two-Dimensional Raman Spectroscopy of Liquid Water, Crystalline Ice Ih and Amorphous Ices: Sensitivity to Anharmonic Dynamics and Local Hydrogen Bond Network Structure," *J. Chem. Phys.* **125**, 084506 (12 pages) (2006).



水の2次元ラマンシグナル(左)とスペクトル(右)