

森 田 明 弘 (助 教 授) *)

A-1) 専門領域：理論化学、計算化学

A-2) 研究課題：

- a) 界面和周波発生分光の理論とシミュレーション
- b) 気液界面の物質移動と不均質大気化学

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 近年界面に敏感な振動分光法として、和周波発生分光法が注目され急速に発達を遂げている。しかし、その実験的なスペクトルを分子レベルで解析、同定する方法論については多分に未開拓であり、理論計算による貢献が強く望まれている。近年我々は、電子状態理論および分子動力学シミュレーションを用いて、和周波発生スペクトルを非経験的に計算し解釈する理論を世界に先駆けて提案した。以上の成果をふまえ、本研究には具体的に次の二つの方向がある。界面和周波発生の基礎理論を整備し、必要な分子モデルを開発すること。様々な興味ある界面への応用に向けて大規模計算を実行し、界面構造の解析を行うこと。本年度は、のテーマに対しては、誘起四重極子の効果を計算できるように基礎理論を拡張した。観測されるシグナルには界面だけでなくバルクからの成分が含まれていることが従来から指摘されているが、その大きさを定量的に計算することを可能とした。また、に対しては初めのステップとして、我々が以前に報告した水表面のスペクトルの計算手法に多くの改良をほどこしたうえで大規模計算を行い、実験と比較しうる精度の計算結果を得ることができた。
- b) 気液界面の物質移動は大気化学や化学工学の基礎をなす問題の一つであるが、観測される速度論は界面自体の性質やダイナミクスだけでなくバルク相中の拡散や溶解度など多くの要因に左右され、実験の解釈にはしばしば甚だしい曖昧さや不一致が残されている。解析上の最大の問題は、現象論的な速度を気相、界面、液相それぞれの成分に正しく分割することであるが、実験上独立に測定することが困難である。そこで分子シミュレーションや流体計算などの理論計算を併用して、実験的な境界条件に即して現象論の速度を定量的に分割して評価する方法を開発した。とくに連続液滴法の実験から水の凝結係数が0.23と報告されていた値は、精確な解析によれば ~ 1 であることを突き止め、従来の分子動力学計算との不一致を解決した。また、実験条件に器壁効果がある場合の解析法や、得られた結果の大気化学へのインパクトについても示された。

B-1) 学術論文

D. R. HANSON, M. SUGIYAMA and A. MORITA, "Revised Kinetics in the Droplet Train Apparatus Due to a Wall Loss," *J. Phys. Chem. A* **108**, 3739–3744 (2004).

A. MORITA, Y. KANAYA and J. S. FRANCISCO, "Uptake of the HO₂ Radical by Water: Molecular Dynamics Calculations and Their Implications to Atmospheric Modeling," *J. Geophys. Res.* **109**, D09201, doi:10.1029/2003JD004240 (2004).

A. MORITA, M. SUGIYAMA, H. KAMEDA, S. KODA and D. R. HANSON, "Mass Accommodation Coefficient of Water: Molecular Dynamics Simulation and Revised Analysis of Droplet Train/Flow Reactor Experiment," *J. Phys. Chem. B* **108**, 9111–9120 (2004).

A. MORITA, M. SUGIYAMA and S. KODA, “Reply to “Comment on ‘Gas-Phase Flow and Diffusion Analysis of the Droplet Train/Flow Reactor Technique for the Mass Accommodation Processes’”,” *J. Phys. Chem. A* **108**, 8544–8545 (2004).
S. IUCHI, A. MORITA and S. KATO, “Potential Energy Surfaces and Dynamics of Ni²⁺ Ion Aqueous Solution: Molecular Dynamics Simulation of the Electronic Absorption Spectrum,” *J. Chem. Phys.* **121**, 8446–8457 (2004).
A. MORITA, “Toward Computation of Bulk Quadrupolar Signals in Vibrational Sum Frequency Generation Spectroscopy,” *Chem. Phys. Lett.* **398**, 361–366 (2004).

B-3) 総説、著書

森田明弘, 「気液界面でのmass accommodation——MD計算と不均質取り込み実験の接点」, *分子シミュレーション学会アンサンブル* **25**, 7–9 (2004).
森田明弘, 「表面和周波発生(SFG)スペクトルの非経験的シミュレーションと理論解析」, *真空* **47**, 503–508 (2004).

B-4) 招待講演

森田明弘, 「エアロゾル界面での物質移動の理論」, 特定領域研究「大気化学・燃焼化学における新規ラジカル連鎖反応」成果報告会, 京都, 2004年1月.
森田明弘, 「界面和周波発生分光の理論とシミュレーション」, 学術創成研究「新しい研究ネットワークによる電子相関係の研究」全体会議, 伊東, 2004年7月.
森田明弘, 「Heterogeneous Atmospheric Chemistry and Interfacial Phenomena」, 総研大岡崎レクチャーズ: アジア冬の学校, 岡崎, 2004年12月.
A. MORITA and J. T. HYNES, “Time Dependent Theory of Sum Frequency Generation Spectra,” 227th ACS National Meeting, Symposium on Vibrational Analyses of Dry and Wet Surfaces, Anaheim (U. S. A.), March–April 2004.
A. MORITA, M. SUGIYAMA, S. KODA and D. R. HANSON, “Molecular Dynamics and Fluid Dynamics Analyses of Mass Accommodation Kinetics,” 228th ACS National Meeting, Symposium on Liquids and Liquid Surfaces, Philadelphia (U. S. A.), August 2004.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

分子構造総合討論会実行委員 (2003).

科学研究費の研究代表者、班長等

奨励研究(A)-若手研究(B) 代表者 (2001-2002).

基盤研究(C) 代表者 (2003-2005).

B-10) 外部獲得資金

奨励研究(A)-若手研究(B), 「成層圏エアロゾル表面での不均質大気化学の理論的研究」, 森田明弘 (2001年-2002年).
基盤研究(C), 「大気中エアロゾル表面構造と物質移動に関する理論的研究」, 森田明弘 (2003年-2005年).
山田科学振興財団派遣援助, 「大気中エアロゾル表面構造の理論的研究」, 森田明弘 (2001年).

C) 研究活動の課題と展望

本年度分子研に着任して、界面和周波発生の理論計算の開発を本格的にスタートできる環境をもつことができた。従来から行ってきた溶液系の分子ダイナミクスで培った理論的な方法論とも密接に関わりがあり、分子の電子分極の理論や分子シミュレーションなどを生かした発展を目指す。実際の理論計算は現在の計算機水準では相当に大型の計算となるが、並列計算に適した問題であるため、今後実行が容易になっていくと予想される。研究の立ち上げにあたっては、まず基礎理論の整備と分子モデリングの開発に注力する必要がある。当面は水溶性界面の問題を主な研究対象とするが、将来的には液体や固体の界面やそのダイナミクスなどの方向へ研究を展開したいと考えている。

* 2004年1月1日着任