

森 田 明 弘 (助教授)(2004 年 1 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：計算化学、理論化学

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) 分子軌道法に基づく電子分極の分子モデリング
- c) 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) 可視 - 赤外の和周波発生分光法は、界面構造を光学的にプローブする実験手法として広く用いられるようになってきた。しかし得られたスペクトルを解釈する上では、しばしば経験的なフィッティングなどに伴う曖昧さがつきまとい、界面構造を分子レベルで同定する上で實際上大きな障害となっている。そこで近年我々は分子シミュレーションによって得られる界面構造から和周波発生スペクトルを直接に計算する方法論を提案し、その開発を進めている。本年は水および水溶性電解質界面を例にして計算手法やモデリングの改良およびチューニングを行い、かつ計算科学研究センターの資源を活用して従来以上の大規模並列計算を行った。その結果計算精度を明らかに向上させ、実用的な解析に向けて実験との定量的な比較を行うことができるレベルに達しつつある。電解質水溶液の場合、イオンの分子モデルを精密化する必要性も明らかになってきた。
- b) 電子分極の効果は、凝縮相中での分子間相互作用を記述する上で非常に重要であるのみならず、上記(a)の課題とも関連して物質の光学的性質を分子レベルでモデル化する上でも中心的な物性となる。電子分極に関して以前に我々は、相互作用サイト表示に基づく charge response kernel (CRK) 理論を提唱し、分子軌道法によって電子分極を非経験的に計算し取り扱う方法論を与えた。本年はそれを拡張し改良することによって、分子内振動および電子分極を一般的かつ精確に表現できる分子モデリングの手法の開発を行った。まず電子相関を実用レベルで取り込めるように、CRK理論を密度汎関数をベースに定式化した。また部分電荷の定義における不安定性は従来モデルの問題として残されていたが、それを取り除くようにCRK理論に改良をほどこした。これらの成果をプログラム化し、電子状態プログラムパッケージ GAMESS-UK に組み込んだ。
- c) 気液界面の物質移動は大気環境化学などで基礎に重要な問題であるのみならず、界面自体の性質やミクロなダイナミックスとバルク相中のマクロな拡散や溶解度などの熱力学とが絡み合った典型的なマルチスケールの問題である。現象論的な速度論を理解するには、界面とバルク相の両方の効果を正しく接続する必要がある。そこで分子シミュレーションと流体拡散方程式の数値計算を併用して、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。とくに従来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、全系の定量的な解析を行うことによって微視的には~1であることを見出した。これは界面物質移動の実験と分子動力学計算によるミクロな界面ダイナミックスとの不一致を解決することができた例である。

B-1) 学術論文

S. IUCHI, A. MORITA and S. KATO, "Electronic Relaxation Dynamics of Ni²⁺ Ion Aqueous Solution: Molecular Dynamics Simulation," *J. Chem. Phys.* **123**, 024505 (2005).

A. MORITA, M. SUGIYAMA, S. KODA and D. R. HANSON, “Reply to “Comment on ‘Mass Accommodation Coefficient of Water: Molecular Dynamics Simulation and Revised Analysis of Droplet Train/Flow Reactor Experiment,’”” *J. Phys. Chem. B* **109**, 14747–14749 (2005).

T. ISHIDA, “Polarizable Solute in Polarizable and Flexible Solvents: Simulation Study of Electron Transfer Reaction Systems,” *J. Phys. Chem. B* **109**, 18558–18564 (2005).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

A. MORITA and T. ISHIDA, “Charge Response Kernel Theory based on Ab Initio and Density Functional Calculations,” *Lecture Series on Computer and Computational Sciences* Brill Academic Publishers; Leiden, **4**, 663–666 (2005).

B-3) 総説、著書

岡崎 進、森田明弘, 「分子科学者が挑む12の謎」第10章, 分子科学研究所編, 化学同人, 151–167 (2005).

B-4) 招待講演

森田明弘, 「気液界面における物質移動の理論」, 分子研究会「大気科学における不均質系の分子科学」, 岡崎, 2005年1月.

森田明弘, 「可視 - 赤外SFG表面分光の理論計算の開発」, NAREGIナノサイエンス実証研究第3回公開シンポジウム, 岡崎, 2005年2月.

A. MORITA, “Theory and Simulation of Interfacial Sum Frequency Generation Spectroscopy,” 11th Japan-Korea Joint Symposium—Frontiers in Molecular Science, Okazaki (Japan), March 2005.

森田明弘, 「界面和周波分光の理論計算法の発展」, 名大物質国際研第2回SFG研究会, 名古屋, 2005年3月.

A. MORITA, “Theoretical Calculation of Sum Frequency Generation Spectroscopy,” University of California, Berkeley (U.S.A.), November 2005.

森田明弘, 「NAREGI分子研拠点における産学連携の取り組み」, 第19回分子シミュレーション討論会, 岡崎, 2005年11月.

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).

第19回分子シミュレーション討論会実行委員 (2005).

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

分子研に赴任後2年目となって研究グループが整備できてきた。界面和周波分光の理論計算は世界的にも新しい試みであり、フロンティアを広げることに貢献したい。単に理論の方法論を提案するだけでなく実用的な解析手法に育てるには、解決すべき点も多く、確かにchallengingな問題である。まず既存の分子力場だけでは和周波分光の計算に対応できないため、新たな分子モデリング手法の開発から取り組む必要がある。また系が大きくなるにつれて大規模計算も実際上不可欠であり、巨大な計算資源を効率良く使うノウハウも大いに求められる。幸いスーパーコンピュータが身近にある環境にあり、分子科学者の立場で計算機を先端的に使いこなすことも研究活動の課題である。その一方、従来の理論の枠内でパラメータとしてempiricalに扱われていた部分を分子レベルで理解していくことで、理論そのものを深めていく方向性も重要である。今後は水溶性の界面のみならず、炭化水素鎖のC-H領域や過渡的な界面構造など、計算で取り扱うことのできる系を広げていく予定である。