

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、界面構造を分子レベルでプローブする実験手法として、固体表面科学はもとより、触媒化学、高分子化学、電気化学、大気化学など多くの関連分野への展開が図られている。実験データから分子レベルの界面構造を同定するためには、スペクトルの解釈が必要であるが、定性的・経験的な解釈にはしばしば限界が明らかで、信頼できる理論計算によるサポートが求められている。そこで本グループでは分子軌道計算に基づく分子モデリングと分子動力学計算に基づいて和周波発生スペクトルを非経験的に計算し、理論的に解析する手法を開発してきた。本年の成果として、近年注目されている電解質水溶液界面の構造解析を行った。電解質水溶液界面において、表面張力の濃度依存性の実験事実や誘電体モデルによる鏡像電荷の理論によって、イオンは水溶液界面から遠ざかる傾向があると長年信じられてきた。しかし近年の分子動力学シミュレーションでは、Br⁻ や I⁻ などのように大きくて分極率の大きいアニオンは界面から露出する状態が安定であると予想されており、大きな議論を呼んでいる。実験的に液体表面を観測する手段が乏しいことが検証を困難にしているが、その問題を解決する上で界面和周波発生分光は非常に有力な手段である。近年その実験結果が報告されたが、同様の実験結果に対して相異なる解釈と結論が両立しており、十分な解決に至っていない。そこで理論計算との比較に基づいて曖昧さのない解釈を与えることを試みた。その結果、分子シミュレーションと界面和周波分光実験との間に矛盾のない解決を得ることができた。
- 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。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。本年はそのモデルを上記 (a) の課題に応用し、任意の分子系の分極および分極率を時々刻々に計算するための分子モデルを開発した。これは、上の和周波分光の理論を一般的な界面系に拡張するために必要とされる成果である。
- 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で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。そのため不均質取り込みの実験から分子レベルの速度論を導出する際に非常に大きな曖昧さが残されていた。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。

B-1) 学術論文

A. MORITA, "Improved Computation of Sum Frequency Generation Spectrum of Water Surface," *J. Phys. Chem. B* **110**, 3158–3163 (2006).

B. C. GARRETT, G. K. SCHENTER and A. MORITA, “Molecular Simulation of the Transport of Molecules across the Liquid/Vapor Interface of Water,” *Chem. Rev.* **106**, 1355–1374 (2006).

T. ISHIDA and A. MORITA, “Extended Treatment of Charge Response Kernel Comprising the Density Functional Theory and Charge Regulation Procedures,” *J. Chem. Phys.* **125**, 074112 (2006).

T. ISHIYAMA and A. MORITA, “Intermolecular Correlation Effect in Sum Frequency Generation Spectroscopy of Electrolyte Aqueous Solution,” *Chem. Phys. Lett.* **431**, 78–82 (2006).

B-4) 招待講演

森田明弘, 「和周波発生分光の理論計算による水溶液界面の解析」平成17年度新プログラム全体会議, 犬山, 2006年1月.

森田明弘, 「界面の構造解析手法としての可視-赤外和周波分光法」第2回分子・物質シミュレーション中核拠点連携研究会, 岡崎, 2006年3月.

A. MORITA, “Recent Progress in Molecular Dynamics Simulation of Vibrational Sum Frequency Generation Spectroscopy,” APS March Meeting, Symposium “Chemical and Spectroscopic Applications of Nonlinear Optics,” Baltimore (U.S.A.), March 2006.

A. MORITA, “Molecular Dynamics Analysis of Vibrational Sum Frequency Generation Spectroscopy,” Institute of Atomic and Molecular Sciences, Taipei (Taiwan), September 2006.

森田明弘, 「Charge Response Kernel モデルの密度汎関数への展開と和周波分光計算への応用」学術創成研究「量子的化学原理」総括シンポジウム, 京都, 2006年11月.

A. MORITA, “Computational SFG analysis of aqueous interfaces,” 分子研研究会「和周波分光で拓く分子科学の新展開」岡崎, 2006年12月.

森田明弘, 「溶液界面解析のための和周波分光の理論」分子研研究会「生体機能理解の基礎としての複雑分子系の階層構造的分子間相互作用」岡崎, 2006年12月.

B-6) 受賞、表彰

森田明弘, 平成18年度分子科学奨励森野基金 (2006).

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).

第22回化学反応討論会実行委員 (2006).

第13回理論化学シンポジウム代表世話人 (2006).

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-8) 他大学での講義、客員

京都大学化学研究所,「界面和周波発生分光の理論」2006年1月26日-27日.

京都大学化学研究所,客員助教授,2005年4月-2006年3月.

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3年目となり,分子研での研究の進展を成果として発表できるようになってきた。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貢献したい。計算で予想した非線形感受率が実験で確認された事例や,従来の実験の解釈を理論計算で精密化して塗り替える成果も得られるようになって,実験との連携もこれまで以上に密になってきたことは,理論化学者としても喜ばしいことと思っている。これからも,理論自体の深化および大規模計算を活用した幅広い応用の両面において,研究を進展させていきたい。