

計算分子科学第二研究部門

齊藤真司(教授)(2005年10月1日着任)

A-1) 専門領域：理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 過冷却液体のダイナミクス、相転移ダイナミクスの理論研究
- b) 生体高分子の構造変化ダイナミクスの理論研究
- c) 多次元分光法による凝縮系ダイナミクスの理論研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 液体を急冷すると、融点で結晶化せずに過冷却液体、さらにはガラスとなる。とくに、過冷却液体では、通常の液体状態に比べ揺らぎの影響が顕著となる。また、水においては、一般的な液体とは異なり、2種類以上のアモルファス状態が存在し、その密度揺らぎは非常に興味深く、過冷却水の運動、揺らぎの分子動力学計算による解析を行った。ラマン分光や周波数依存熱容量を解析し、過冷却水における運動のスローイングダウンと水素結合ネットワークの組み替え運動との関連を明らかにした。また、等積・等圧熱容量の温度依存性および複素熱容量の解析から、過冷却水における密度揺らぎが非常に大きく、局所的密度揺らぎのダイナミクスへの影響を明らかにした。
- b) GTP 結合タンパク質 Ras は癌原遺伝子産物として知られたシグナル伝達タンパク質である。GTP と結合した活性型の Ras は Raf などの標的タンパク質に結合し、シグナルを下流に送ることにより細胞増殖が進み、GTP が加水分解され GDP となると Ras は不活性型となる。GTP の加水分解が抑制されると、Ras が活性型に固定され細胞増殖が続き、癌の原因の一つとなる。これまでの実験研究から加水分解の前後で、Ras が構造変化することが知られている。我々は、分子動力学計算を用いて、Ras の各状態における Mg イオン近傍の水素結合ネットワーク構造と揺らぎ、周囲のアミノ酸との相互作用を明らかにした。
- c) 液体や生体系の複雑な凝縮系のダイナミクスを解析する1つの方法として、多次元計測の理論解析を進めている。多次元計測とは、2つ以上の異なる時刻で系に摂動を与え、その後の系の応答の測定であり、多時間相関関数で表され系の詳細なダイナミクスを得ることが可能となる。我々は、2次元ラマン分光法が、系の局所構造やダイナミクスに非常に敏感で、和周波、差周波スペクトルから運動のカップリングの様相を解析できることを示した。現在、2次元ラマン分光法、3次元赤外分光法、多次元散乱を液体や過冷却液体などに適用し、遅い揺らぎの起源、分子間運動カップリングの時間変化、詳細な構造変化ダイナミクスの解析を進めている。

B-1) 学術論文

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 (12pages) (2006).

T. SUMIKAMA, S. SAITO and I. OHMINE, "Mechanism of Ion Permeation in Model Channel; Free Energy Surface and Dynamics of K⁺ Ion Transport in Anion-Doped Carbon Nanotube," *J. Phys. Chem. B* **110**, 20671–20677 (2006).

A. SHUDO, K. ICHIKI and S. SAITO, "Origin of Slow Relaxation in Liquid Water Dynamics: A Possible Scenario for the Presence of Bottleneck in Phase Space," *Europhys. Lett.* **73**, 826–832 (2006).

B-4) 招待講演

S. SAITO, "Dynamics and Hydrogen Bond Structure in Water Analyzed by Using Two-Dimensional Raman Spectroscopy and Ion Permeation Dynamics in Model Channel," Indo-Japan Joint Workshop on "New Frontiers of Molecular Spectroscopy," Kobe (Japan), September 2006.

S. SAITO, "Theoretical Study of Two-Dimensional Raman Spectroscopy of Liquid and Solid water," 20th International Conference on Raman Spectroscopy, Yokohama (Japan), August 2006.

S. SAITO, "Theoretical Study of Two-Dimensional Raman Spectroscopy: Anharmonic Dynamics and Local Hydrogen Bond Network Structure in Liquid and Solid Water," 66th Okazaki Conference "Soft X-ray Raman Spectroscopy and Related Phenomena," Okazaki (Japan), August 2006.

S. SAITO, "Theoretical Studies of Two-Dimensional Raman Spectroscopy and Ion Permeation Dynamics," Mini Workshop on Computational Aspects of Material Science, Ishikawa (Japan), June 2006.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

理論化学討論会世話人会委員 (2002-).

B-8) 他大学での講義、客員

名古屋大学理学部, 「物理化学基礎」2006年4月-9月.

神戸大学大学院自然科学研究科, 特別講義「液体動力学」2006年11月15日-11月17日.

東京大学大学院総合文化研究科, 相関基礎科学特別講義I「溶液の分子論的ダイナミクスと分光解析」2006年11月27日-11月29日.

東京大学大学院総合文化研究科, 客員教授, 2005年4月- .

B-10) 外部獲得資金

特定領域研究(計画研究)「空間・時間不均一ダイナミクス理論の構築」斉藤真司 (2006年度-2009年度).

基盤研究(B)(2), 「化学反応および相転移ダイナミクスの多次元振動分光法による理論解析」斉藤真司 (2004年度-2006年度).

基盤研究(C)(2), 「凝縮系の揺らぎおよび非線形分光に関する理論研究」斉藤真司 (2001年度-2002年度).

基盤研究(C)(2), 「溶液内化学反応と高次非線形分光の理論研究」斉藤真司 (1999年度-2000年度).

奨励研究(A), 「溶液の高次非線形分光と化学反応ダイナミクスの理論研究」斉藤真司 (1997年度-1998年度).

C) 研究活動の課題と展望

我々は、液体や過冷却液体、相転移過程のダイナミクス、生体高分子系の構造変化、多次元計測に基づく揺らぎの理論解析を進めている。

液体や過冷却液体のダイナミクスの解析として、過冷却水の解析を行っている。低密度、高密度領域の揺らぎ、ポテンシャルエネルギーの変化、密度揺らぎによるエネルギー地形の変化を明らかにし、この結果をもとに、室温状態の水において $1/f$ スペクトルとして見られる遅い揺らぎの解析へと展開させていきたい。

生体高分子の解析として、細胞増殖に関わるRasの加水分解反応の解析を行っている。GTPの加水分解におけるMgイオンやGTP、GDP近傍の水素結合ネットワーク構造の揺らぎや変化、反応中間状態、GAPの影響の解析、リン酸がどのように抜けていくのかなど分子動力学計算と電子状態計算を併用し反応機構の解明を進める。

以上の凝縮系ダイナミクスの詳細を解析する一つの方法として、多次元分光などの解析を行っている。多次元分光法の展開として、運動間のカップリングの時間変化の解析、振動分光法以外への展開、遅いダイナミクスに対する解析手法の確立を目指す。