

計算分子科学研究部門

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の理論研究
- b) 生体高分子における構造揺らぎと反応の理論研究
- c) 線形・非線形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、過冷却液体さらにはガラスとなる。過冷却液体は、様々な興味深い性質を示す。我々は、分子動力学計算を用い、薄膜や多孔質媒体などの制限空間におけるガラス転移に関する研究を進めてきた。パーコレーション閾値に近い非常に高い固定粒子密度において、流動粒子密度を増やすと自由体積が減少するにも関わらずガラス相から液体相に転移し、再びガラス相に転移するリエントラント現象があることを明らかにした。さらに、多時間相関のアイデアを過冷却液体のダイナミクスへと展開し、密度揺らぎの3時間相関関数の解析を通して、不均一ダイナミクスの解析を行った。その結果、3時間相関関数は不均一ダイナミクスに非常に敏感であり、これまで動的不均一性の寿命と考えられてきた緩和時間とは異なる動的不均一性の寿命を明らかにした。
- b) GTP結合タンパク質 Ras は、細胞増殖に関わるタンパク質である。我々は、GTP加水分解反応前後の揺らぎや構造変化が、どのように反応(機能発現)に影響しているか分子動力学法、電子状態計算を用い調べている。GTP結合型、GDP結合型など Ras の様々な状態における揺らぎを解析し、Ras の構造の多様性を明らかにした。また、それらの状態に加え、実験で観測されている構造の分布についても解析し、GDP結合型から GTP結合型への構造変化過程を推定した。これら構造の多様性の解析に加え、Ras における GTP加水分解に関する研究を進めている。Ras は単体でも GTP加水分解能を有するが、GAP というタンパク質が結合することにより、GTP の加水分解速度が 10^5 倍も大きくなる。我々は QM/MM 法を用いて、GAP に結合した Ras の GTP加水分解の反応経路の解析を進めている。その結果、解離性遷移状態を経て、GTP の近傍に捕捉されている水分子から、グルタミン、さらにリン酸へと二重プロトン移動を起こし、GTP の加水分解が起こっていることを明らかにした。
- c) 線形および非線形分光法による凝縮系のダイナミクスの理論解析を進めている。我々は、2次元赤外分光法により水の分子間運動の理論研究を行っている。その結果、平衡振動の相関が約 110 fs で喪失すること、また、約 100 fs で平衡振動から分子間並進運動へ緩和することを明らかにした。さらに、非調和性の強い水の分子間並進運動が、これら運動の相関の喪失および緩和に大きな影響を及ぼしていることを明らかにした。また、パンププローブ分光法、異方性減衰の理論解析、さらに非平衡分子動力学シミュレーションを用い、水中の平衡振動のエネルギー緩和機構を明らかにした。また、水が凍ると、水の変角運動の強度が減少することが古くから知られているが、その機構は全く分かっていなかった。我々は、近年開発された分子パラメータを用いた分子シミュレーションを利用して、水の変角運動の強度変化の物理的機構を明らかにした。

B-1) 学術論文

A. FURUKAWA, K. KIM, S. SAITO and H. TANAKA, “Anisotropic Cooperative Structural Rearrangements in Sheared Supercooled Liquids,” *Phys. Rev. Lett.* **102**, 016001 (4 pages) (2009).

T. YAGASAKI and S. SAITO, “Molecular Dynamics Simulation of Nonlinear Spectroscopies of Intermolecular Motions in Liquid Water,” *Acc. Chem. Res.* **42**, 1250–1258 (2009).

K. KIM and S. SAITO, “Multiple Time Scales Hidden in Heterogeneous Dynamics of Glass-Forming Liquids,” *Phys. Rev. E* **79**, 060501 (R) (4 pages) (2009).

K. KIM, K. MIYAZAKI and S. SAITO, “Slow Dynamics in Random Media: Crossover from Glass to Localization Transition,” *Europhys. Lett.* **88**, 36002 (5 pages) (2009).

T. YAGASAKI, J. ONO and S. SAITO, “Ultrafast Energy Relaxation and Anisotropy Decay of the Librational Motion in Liquid Water: A Molecular Dynamics Study,” *J. Chem. Phys.* **131**, 164511 (11 pages) (2009).

B-3) 総説, 著書

西 信之, 佃 達哉, 斉藤真司, 矢ヶ崎琢磨, 「クラスターの科学—機能性ナノ構造体の創成—」米田出版 (2009).

B-4) 招待講演

C. KOBAYASHI and S. SAITO, “Molecular Simulations of Signal Transduction Protein Ras: Structural Changes and Fluctuations,” Korea-Japan Seminars on Biomolecular Sciences—Experiments and Simulations, Seoul (Korea), February 2009.

S. SAITO, “Intermolecular Dynamics of Water: Theoretical Studies of Heat Capacity and Nonlinear Infrared Spectroscopy,” India-Japan Workshop on Frontiers in Molecular Spectroscopy and Theory, Kolkata (India), March 2009.

S. SAITO, “Intermolecular Dynamics of Liquid Water: Theoretical Studies of Heat Capacity and Nonlinear Infrared Spectroscopy,” 2nd KIAS International Symposium on Recent Progress in Computer Simulations in Molecular Sciences, Seoul (Korea), June 2009.

T. YAGASAKI and S. SAITO, “Intermolecular Dynamics of Liquid Water: Theoretical Study of Nonlinear Infrared Spectroscopy,” International Symposium on Reaction Dynamics of Many-Body Chemical Systems, Kyoto, June 2009.

C. KOBAYASHI, M. HIGASHI and S. SAITO, “Molecular Simulations of Signal Transduction Protein Ras: Structural Changes and Reaction,” 2nd Japan-Korea Seminars on Biomolecular Sciences—Experiments and Simulations, Nagoya, December 2009.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

理論化学討論会世話人会委員 (2002–2009).

分子シミュレーション研究会幹事 (2007–).

日本化学会東海支部幹事 (2007–2008).

分子科学会運営委員 (2008–).

B-8) 大学での講義，客員

神戸大学大学院理学研究科，「量子化学特論B」2009年11月10日-12日。

東京大学大学院総合文化研究科，「関連基礎科学特別講義I」溶液の分子論的ダイナミクスと分光解析」2009年11月25日-27日。

総合研究大学院大学物理科学研究科，「機能分子基礎理論」2009年12月14日-16日。

東京大学大学院総合文化研究科，客員教授，2005年4月-2010年3月。

B-10) 競争的資金

文部科学省科研費特定領域研究(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)。

文部科学省科研費若手研究(B)，「多時間相関関数を用いたガラス転移の不均一ダイナミクスの解析」金 鋼(2009年度-2010年度)。

文部科学省科研費若手研究(B)，「密度揺らぎの多体相関関数による過冷却液体ダイナミクスの解析」金 鋼(2007年度-2008年度)。

日本学術振興会科研費基盤研究(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)。

日本学術振興会科研費基盤研究(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)。

日本学術振興会科研費基盤研究(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)。

B-11) 産学連携

日本電信電話(株)マイクロシステムインテグレーション研究所，「テラヘルツ分光スペクトル解析に関する研究」，斉藤真司(2008年度-2009年度)。

C) 研究活動の課題と展望

液液体や過冷却液体のダイナミクスの解析として過冷却液体の不均一ダイナミクスの解析を行い，密度揺らぎの多時間関数により動的不均一性の特徴的時間スケールが緩和時間ではなく，我々が多時間相関関数から引き出した時間スケールであることを明らかにした。これまでの成果を分子性液体に応用し，並進・回転運動における動的不均一性の解析等へと発展させる。

生体高分子における構造揺らぎと反応の解析として，細胞増殖に関わるRasにおけるGTPの加水分解反応の解析をさらに進める。とくに，GTPの加水分解反応がどのような機構で，どのように引き起こされるのかを明らかにする。また，新しい展開として，生体分子の励起状態ダイナミクスの解析を進める。

多次元分光による凝縮系ダイナミクスの解析に関して，これまでの成果を踏まえた新たな理論研究として，半古典理論計算を併用した分子内振動の解析へ展開し，分子内振動エネルギーがどのように緩和するかを明らかにする。さらに，溶液内反応ダイナミクスの解明にも発展させていきたい。