

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) 溶液中の振動エネルギー緩和，生体分子における励起状態ダイナミックスの理論研究
- b) 線形・非線形分光法による凝縮系ダイナミックスの理論研究
- c) 過冷却液体のダイナミックスの理論研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 光合成系では，発色団で吸収された光エネルギーが励起エネルギー移動により効率よく活性中心へと伝達される。しかし，高効率エネルギー移動はどのように達成されているのか，すなわち，各色素のエネルギーレベルがどのように決まり，それらは振動・構造揺らぎの影響をどの程度受けているのかは明らかにされていない。その解明に向けて，Fenna-Matthews-Olson(FMO)タンパク質に含まれるバクテリオクロフィルの溶液中の電子励起状態の解析を行った。
- b) 線形および非線形分光法による凝縮系のダイナミックス，とくに水の分子内および分子間ダイナミックスの解析を進めている。とくに，分子間運動の揺らぎ（スペクトル拡散）の起源，エネルギー緩和ダイナミックスを明らかにした。さらに，エネルギー緩和ダイナミックスに対する新しい解析手法を提案し，その手法による詳細な解析を行った。また，分子内振動・変角運動における揺らぎの影響の解析を行った。変角運動に関する二次元赤外分光法等の解析から，変角運動における変調への伸縮振動の影響，エネルギー緩和機構などの新たな知見を明らかにした。
- c) 水は，他の液体には見られない多くの熱力学的異常性を示す。また，水の異常性は温度低下とともに増すことも知られている。このような熱力学的異常性の一つに，過冷却状態における，等積比熱には見られない等圧比熱の急激な増加がある。この定圧比熱の特異的温度依存性の分子論的起源について分子シミュレーションを用いた解析を進め，熱力学的異常性の起源となるダイナミックスの時間・空間スケールを明らかにした。また，高次非線形分光法のアイディアを展開し，多時間相関関数を利用した動的不均一性の解析を進めている。その結果，Fragile 液体では，中性子散乱で決定される - 緩和時間よりも遅い時間スケールの不均一ダイナミックスを見出した。さらに，Fragile 液体から Strong 液体まで数種類の過冷却液体の不均一ダイナミックスを系統的に解析し，Fragile の性質の強い液体では - 緩和時間と不均一ダイナミックスの寿命の分離がより大きいことを明らかにした。

B-1) 学術論文

N. YAMAMOTO, O. KAMBARA, K. YAMAMOTO, A. TAMURA, S. SAITO and K. TOMINAGA, "Temperature and Hydration Dependence of Low-Frequency Spectra of Poly-L-Glutamic Acid with Different Secondary Structures Studied by Terahertz Time-Domain Spectroscopy," *Soft Matter* **8**, 1997–2006 (2012).

K. OHTA, J. TAYAMA, S. SAITO and K. TOMINAGA, "Vibrational Frequency Fluctuation of Ions in Aqueous Solutions Studied by Three-Pulse Infrared Photon Echo Method," *Acc. Chem. Res.* **45**, 1982–1991 (2012).

B-3) 総説, 著書

斉藤真司, 「凝縮系の揺らぎ, 緩和と分光法」CSJ カレントレビュー 08 「巨大分子系の計算化学——超大型計算機時代の理論化学の新展開」76–81 (2012).

斉藤真司, 「二次元赤外分光法の理論および水の分子間ダイナミクスの解析」日本赤外線学会誌 **80**, 22–30 (2012).

K. OHTA, J. TAYAMA, S. SAITO and K. TOMINAGA, “Solvation Dynamics of Vibrational State in Hydrogen-Bonding Solvents: Vibrational Frequency Fluctuation Studied by Three-Pulse Infrared Photon Echo Method,” in *Ultrafast Infrared Vibrational Spectroscopy*, M. D. Fayer, Ed., CRC Press (2012).

B-4) 招待講演

S. SAITO, “Dynamics of liquid water: Energy relaxation and fluctuation,” 4th Japan-Korea Seminar on Biomolecular Sciences: Experiments and Simulations,” Nara, January 2012.

S. SAITO, “Chemical Reaction, Fluctuation, and Relaxation in Liquids,” Marie Curie IRSES meeting on 1st International Workshop on Computer Simulations of Thermally Excited Molecules and Materials by First Principles, Nagoya, March 2012.

斉藤真司, 「凝縮系ダイナミクス」日本化学会春季年会, 慶應義塾大学, 横浜, 2012年3月.

S. SAITO, “Dynamics of liquid water: Energy relaxations and fluctuations,” Recent advances in studies of molecular processes at liquid interfaces, 244th ACS National Meeting & Exposition, Philadelphia (U.S.A.), August 2012.

S. SAITO, “Dynamics of Liquid and Supercooled Water,” Indo-Japan Bilateral Collaborative Seminar on Recent Advances in Spectroscopy and Microscopy: Fundamentals and Applications to Materials and Biology, Hyderabad (India), November 2012.

B-6) 受賞, 表彰

金 鋼, 日本物理学会若手奨励賞 (2010).

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).

日本化学会東海支部幹事 (2007–2008).

分子シミュレーション研究会幹事 (2007–2011).

分子科学会運営委員 (2008–2012).

B-8) 大学での講義, 客員

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「生体分子シミュレーション入門」2012年10月31日.

神戸大学大学院理学研究科, 「量子化学特論」2012年10月11日–12日.

B-10) 競争的資金

科研費挑戦的萌芽研究,「生体分子の構造変化に伴う状態遷移ダイナミックスの解析手法の開発とその応用」 斉藤真司 (2011年度).

科研費若手研究(A),「ガラス形成液体における動的不均一性とその時空間構造の理論解析」 金 鋼 (2011年度-2014年度).

科研費基盤研究(B)(2),「線形・非線形分光シミュレーションによる緩和および反応ダイナミックスの解明」 斉藤真司 (2010年度-2012年度).

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ックスの解析」 金 鋼 (2009年度-2010年度).

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ックスの解析」 金 鋼 (2007年度-2008年度).

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

科研費基盤研究(B)(2),「化学反応および相転移ダイナミッ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).

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).

C) 研究活動の課題と展望

励起状態反応ダイナミックスの理論研究に関しては,生体分子系における励起エネルギー移動の解明に向けて,電子状態計算を行い,ポテンシャルエネルギー面,相互作用の解析を進める。線形・非線形分光法による凝縮系ダイナミックスの理論研究に関しては,水の分子内・分子間ダイナミックスの解析を行い,水の中でどのようにエネルギー緩和ダイナミックスが進んでいるかを明らかにする。また,過冷却液体の不均一ダイナミックス,とくにFragile-Strong 遷移の起源を解析する。さらに,これまで我々が高速および不均一ダイナミックスを解析するために展開してきた方法論を生体分子系等に発展させ,それらの系における構造変化・遍歴ダイナミックスと生体分子の機能の関係等を明らかにしていきたい。