

豊橋技術科学大学長 殿

平成 8 年 2 月 23 日

審査委員長 神野清勝



論文審査及び最終試験の結果報告書

このことについて、下記の結果を得ましたので報告いたします。

記

学位申請者	Gogonea Valentin	学籍番号	第 927752 号
申請学位	博士(工学)	専攻名	材料システム工学
論文題目	An Approach to Solvent Effect Modeling by the Combined Scaled-Particle Theory and Dielectric Continuum-Medium Method (スケール粒子理論と連続誘電媒体法の組み合わせによる溶媒効果のモデリング)		
公開審査会の日	平成 8 年 2 月 9 日		
論文審査の期間	平成 8 年 1 月 24 日～平成 8 年 2 月 23 日	論文審査の結果	合格
最終試験の日	平成 8 年 2 月 9 日	最終試験の結果	合格

論文内容の要旨

本学位論文は、分子計算法において溶媒効果を迅速に求める実用的方法として最近注目されている連続誘電媒体法に大幅な改良を加えたものである。従来の連続誘電媒体法は非球形溶媒排除体積の計算を数値的あるいはパラメータ化して行い、且つ空洞生成仕事の扱いが単純に過ぎた為に不十分で、精度が低かった。ここで行った主な改良点は次のようである。(1) 溶媒接触可能な溶質分子表面積の原子座標に関する一次および二次微分を解析的に書き下し、また溶媒排除体積についても数値的一次および二次微分を書き下した。(2) 溶媒中に溶質分子を入れるための空洞を作るのに必要な仕事を Scaled particle 理論を用いて統計力学的に求めた。(3) 溶媒接触可能分子表面積を求めるに当たって、表面積関数が不連続となる場合の条件を丹念に調べあげて、連続解析計算が可能となるように工夫した。(4) 一般的な溶媒和力場を構築するために、振動計算を含むエンタルピー、エントロピーの精密な評価スキームを作成した。これを分子力学計算プログラムに導入した結果、溶媒中にある溶質の構造最適化を行うことが可能となった。4種類の典型的な溶媒を選んで各種炭化水素の溶解に関する熱力学関数をこの計算法によって求めたところ、実験値と良く一致する結果が得られた。

審査結果の要旨

1989年にStillが溶媒効果計算法としての反応場理論に画期的な改良を加えた。すなわち、溶質分子の溶媒接触可能表面積計算アルゴリズムおよび溶質-溶媒静電相互作用を求めるための一般化Born式を導入して、水中のカルボン酸溶解自由エネルギーの計算に成功した。爾来、連続誘電媒体法は各種分子計算法に広く取り入れられてきた。しかし、Stillの方法においては、構造最適化中の表面積計算時間を短縮するために、空洞半径をパラメータとする近似を用いたので種々の不都合を生じた。本研究においては、分子表面積のみならず分子体積の二次微分までの計算をすべて解析的に行う事を可能として為に計算が高速化され、構造最適化のサイクル毎に溶媒効果力場を正確に再評価することが可能となった。実用的にはこのプログラミングがキーポイントとなったが、これ以外にも本研究は連続誘電媒体法を徹底的に検討して原理的改良を加えた。まず溶媒力場を溶媒圧力項、溶媒-溶質ファンデルワールス相互作用、溶媒-溶質静電相互作用項、空洞生成の仕事という独立項に分解して、それぞれの項を正確に求めた。また Scaled particle 理論を導入して非球形空洞生成の熱力学関数を求める方法を初めて開発した。この結果として、連続誘電媒体法は物理化学的に厳密な内容を持つ溶媒効果理論となった。以上により本論文は博士(工学)の学位論文に相当するものと判定した。

審査委員

神野清勝



伊藤浩一



堤和男



角田乾哉



大澤映二



印

(注) 論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。