

専攻	材料システム工学	学籍番号	927752	指導教官氏名	大澤 映二
申請者氏名	GOGONEA VALENTIN				阿部 英次

## 論 文 要 旨

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)
------	--

(要旨 和文 1,200 字程度)

(1)

近年、溶媒中の様々な物理的および化学的現象のシミュレーションのためのコンピュータツールの必要性が増し、特に、溶媒中での大きな分子の立体配座の研究にたいする期待が広い。これまでに、溶媒効果は溶媒接触可能表面積の計算に基づく極めて単純なモデルによって近似されてきたが総量は満足すづきものではなかった。そこで本研究では、特に分子の立体構造への溶媒の影響を考慮に入れ、新しい溶媒力場モデルおよび溶媒和熱力学モデルを提案する。

本研究で開発した溶媒力場は、剛体球充填に基づく統計力学（スケール粒子理論）と、誘電媒体理論を出発点とし、プログラムは、分子力場計算プログラムへの付加モジュールとして使用することができ、本研究では、溶媒を連続媒体と見なすが、これによって溶媒-溶質間の静電的相互作用の計算が容易になる。一方、空洞形成の可逆仕事を求めるには、分子間相互作用ポテンシャルや分子立体配座等を定めて溶媒分子を統計学的に記述をせぬばならない。そこで、本研究では、溶媒-溶質間における特異的な相互作用（水素結合、イオン間相互作用等）がない場合に限って、非球形溶媒分子を球形粒子として見なす。ガス状態の分子力場計算、半経験的又は *ab-initio* 計算を行なうことによって、分子

が気相から液相へ変化する場合の溶質分子の内部分配関数の変化（分子の幾何学的変化、分子振動頻度シフト等）を考慮した溶媒和の熱力学的解析が容易に行なえるようになった。

5 分子がガス状態から液体へ又は、一つの溶媒から異なった溶媒への遷移の際、溶媒の影響は、気相分子のポテンシャルエネルギーへの追加項として表すことができる。この追加項は、二つのエネルギー項からなり、一つは溶媒の圧力を表し、動的エネルギー項である。もう一つは、10 ポテンシャルエネルギー項で、溶質分子－溶媒間近距離（反発力）および長距離（静電ポテンシャル、双極子－双極子および分散）相互作用を表す。

本研究で提案した溶媒力場と、これまでに提案された方法との主な相違点は以下のようである。（a）普遍的であること、すなわち本モデルは溶媒種類に関係なく適用15 できる。（b）溶媒の動的振る舞いを再現するため、溶媒圧力エネルギー項を導入した。（c）スケール粒子理論を用いた非球形溶質（多球融合）における空洞形成の可逆仕事の計算。（d）溶媒－溶質間の v a n d e r W a a l s 相互作用エネルギーの計算に際して20 溶質近傍の溶媒分子の分布を剛球半径方向分布関数と見なしたことなどである。