

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 11183 号
------	---------------

氏 名 小嶋 秀和

論 文 題 目

Molecular Dynamics Study of Stability of Intramolecular Hydrogen Bonding Structure of Malonaldehyde in Solution and Its Quantum Reaction Dynamics of Proton Transfer
(分子動力学シミュレーションによるマロンアルデヒドの溶液中における分子内水素結合構造の安定性とプロトン移動反応量子ダイナミクス)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	岡崎 進
委員	金沢大学	教授	三浦 伸一
委員	名古屋大学	准教授	篠田 涉
委員	名古屋大学	講師	沢邊 恭一
委員	名古屋大学	教授	薩摩 篤

論文審査の結果の要旨

小嶋秀和君提出の論文「Molecular Dynamics Study of Stability of Intramolecular Hydrogen Bonding Structure of Malonaldehyde in Solution and Its Quantum Reaction Dynamics of Proton Transfer(分子動力学シミュレーションによるマロンアルデヒドの溶液中における分子内水素結合構造の安定性とプロトン移動反応量子ダイナミクス)」は、マロンアルデヒドの溶液中での分子内プロトン移動反応に対して純古典的ならびに量子古典混合系近似に基づいた分子動力学シミュレーションを実行し、溶液内プロトン移動反応の分子論を明らかにしている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、溶液内プロトン移動反応の理論的、計算科学的取扱いの歴史や現状について述べ、その問題点や課題を明らかにした上で、本研究の目的を述べている。

第2章では、本研究で用いた方法論の理論的基礎を述べ、実在系への適用に当たって施した改良や近似について説明している。

第3章では、本研究を遂行するにあたって必要となるcis-enol型マロンアルデヒド分子のねじれ運動に関わるポテンシャルエネルギーを量子化学計算により求め、これを二つのねじれ角の関数として記述するために適切な関数形を提案し、ポテンシャル関数として最適化している。

第4章では、分子内プロトン移動反応が生じ得るマロンアルデヒドの平面トランス型の回転異性体の水溶液中での安定性について検討するために、熱力学的積分法やアンブレラサンプリング法による自由エネルギー計算を行い、平面トランス型の回転異性体が十分に安定であり、事実上他の異性体構造は取らないことを示し、プロトン移動のシミュレーションにおいてはこの平面トランス型構造を仮定して行えばよいことを実証している。

第5章では、極性溶媒の代表として水溶液中におけるマロンアルデヒドの分子内プロトン移動反応の純古典的ならびに量子古典混合系近似に基づいた分子動力学シミュレーションを行い、プロトン移動に及ぼす溶媒効果、量子効果を明らかにし、また得られた溶媒やプロトンの量子状態の軌跡に対する様々な解析に基づいて移動機構の解明を行っている。

第6章では、非極性溶媒の代表としてネオン流体中におけるマロンアルデヒドに対する同様なシミュレーションを行い、第5章の結果との比較から極性溶媒中における移動と非極性溶媒中における移動機構の特徴を抽出し、これら機構の違いを明らかにしている。

第7章では、本研究の結論を与えている。

以上のように、本論文では量子古典混合系近似に基づいた分子動力学シミュレーションから溶液内プロトン移動反応の量子効果、溶媒効果、さらにはその分子レベルでの移動機構を明らかにしている。これらの計算科学的手法ならびに得られた結果は生体系におけるプロトン移動や電気化学反応系におけるプロトン輸送の基礎として重要であり、工学の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文の提出者である小嶋秀和君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。