

分子動力学法による高分子溶液中の水素結合ネットワークの解析

高村優*, 宮本陽介*, 喜多理王**, 新屋敷直木**, 八木原晋**

* 東海大学大学院理学研究科 [〒259-1292 神奈川県平塚市北金目 4-1-1]

**東海大学理学部物理学科

1. 緒言

分子間に働く種々の相互作用は物質の性質を決定する重要な要因の一つである。特に水素結合は水やアルコールなどに代表される水素結合性液体のダイナミクスを理解する上で欠かせない。U. Kaatze らによって液体ダイナミクスと水素結合ネットワークの関係が考察されている¹⁾。過去の研究において溶液の密度測定と分子の水素結合サイトの数から水素結合密度を求め、誘電分光法による緩和パラメータと比較されている²⁾。我々はこれまで様々な種類の高分子溶液の液体ダイナミクスの観測をしてきた³⁾。本研究では分子動力学法により水素結合ネットワークの解析を行い、誘電分光法による実験データと相補的な解析を行うことを目的とする。

2. 実験方法

周期境界条件を適用した立方体セルに分子を配置し、およそ 1000 から 5000 個の分子によって構成された高分子溶液を分子動力学法により運動を解析し、得られた各原子の座標データから系内の水素結合を数え上げた。計算条件は 1 ステップを 2fs とし合計 400ps 行い、分子力場として CHARMM を用い NPT アンサンブルを設定した。また計算は BIOVIA 社 Discovery Studio 4.1 を用いて東海大学総合情報センターの計算サーバーを利用して実行した。

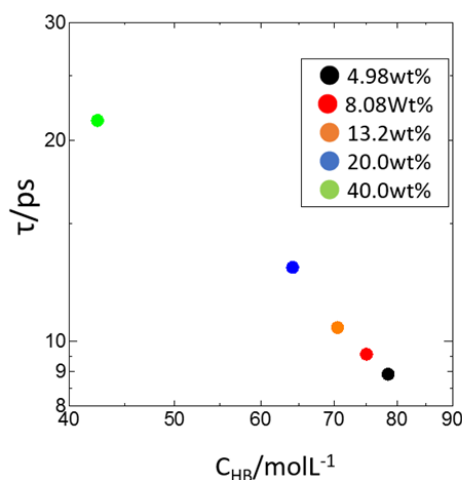


Figure 1. Relationship between relaxation time of h-process and hydrogen bond density

3. 実験結果

図 1 に様々な濃度における poly vinyl pyrrolidone (PVP) 水溶液の水由来の誘電緩和時間²⁾と分子動力学法から得られた水素結合密度の関係性を示す。

4. 考察

図 1 から高分子溶液の溶媒に由来する緩和の緩和時間と水素結合密度に相関があることが確認された。これは水素結合の生成、消滅にともなった分子の再配向に緩和時間が依存しているためであると考えられる。発表では PVP のほか、poly ethylene glycol (PEG) など様々な高分子溶液の水素結合ネットワークと液体ダイナミクスの相関について議論を行う。

5. 結言

分子動力学法を用いることで密度を測定することなく、水素結合密度を得ることができた。また誘電分光法によって測定された溶媒に由来する誘電緩和の緩和時間が純溶媒の場合と同様に水素結合密度に依存することが確認され、主に純溶媒を想定していた水素結合ネットワークと液体ダイナミクスの相関のモデル¹⁾が高分子溶液中の溶媒にも適用されると考えられる。以上のことから分子動力学法によるシミュレーションが誘電分光法などの実験による研究に対する相補的手法として有効であると考えられる。

謝 辞

本研究には東海大学総合情報センターの計算サーバーを利用して頂きました。

文 献

- 1) U. Kaatze, R. Behrends, and R. Pottel.:Hydrogen Network fluctuations and dielectric spectrometry of liquid. *Journal of Non-Crystalline Solid*, **305**,pp.19-28,2002
- 2) N. Shinyashiki, D. Imoto, S. Yagihara.:Broadband dielectric Study of Dynamics of Polymer and Solvent in Poly(vinyl pyrrolidone)/Normal alcohol Mixtures. *J.Phys.Chem.B*,**111**, pp.2181-2187,2007
- 3) N. shinyashiki, S. Yagihara, I. Arita, and S. Mashimo.:Dynamics of Water in a Polymer Matrix Studied by a Microwave Dielectric Measurement. *J.Phys.Chem. B*,**102**, pp.3249-3251, 1998