

FMO計算に基づくマルチスケールシミュレーション 手法の開発と先導的応用

¹立教大理, ²東大生研, ³(株)JSOL, ⁴慶大理工
○奥脇 弘次¹, 土居 英男¹, 望月 祐志^{1,2}, 小沢 拓³, 泰岡 顕治⁴

Development and Leading Application of Multiscale Simulation Method Based on FMO Calculations

○Koji Okuwaki¹, Hideo Doi², Yuji Mochizuki^{1,2}, Taku Ozawa³, Kenji Yasuoka⁴
¹ Department of Chemistry, Rikkyo University, Japan
² Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, Japan
³ Engineering Technology Division, JSOL Corporation
⁴ Department of Mechanical Engineering, Keio University, Japan

【Abstract】 In the analyses of miscibility behaviors of macromolecules, dissipative particle dynamics (DPD) simulations are generally performed. In these simulations, the so-called χ parameters describing the effective interactions among particles are crucial. It has been known that these parameters can be obtained within the classical force field frameworks. However, there is a potential problem where the charge transfer and polarization are substantial. Therefore, we have been developing reliable workflows to evaluate these parameters by using the ab initio fragment molecular orbital (FMO) method. In this presentation, we brief such FMO-based protocols including the lipid membrane and polymer electrolyte membrane as demonstrative examples.

【序】 近年、用途に応じて様々な物性を有した機能性材料の開発が盛んに行われている。機能の創出には材料の構造制御が不可欠であるが、特にナノとマクロの間であるメソ領域の構造が物性に大きな影響を与えることが知られている。メソ領域の挙動を予測するには、散逸粒子動力学(DPD)[1]といった粗視化粒子を用いたシミュレーションが有効である。しかし、成分間の相互作用を示すパラメータ(χ)の正確な算定法は確立されておらず、大きな課題となっている。そこで我々は、高分子を構成する基本単位間の相互作用エネルギーから算出する手法[2]に着目し、相互作用エネルギーをフラグメント分子軌道法プログラム ABINIT-MP[3]により算定すると共に、系の異方性を評価することで、一連の評価法の改良を行った(J-OCTA[4]の機能と連携)。その結果、単純な二成分混合系での相転移上部臨界温度が実験値と良好な一致を示し、更に高分子電解質膜のチャンネル構造の再現に成功した(2015年度本討論会にて報告[5])。

本研究では、この非経験的なパラメータ算定をより汎用的なマルチスケールシミュレーション手法として確立させることを目的とし、パラメータの問題が顕著な系へと応用を試みた。

【脂質膜への展開】 脂質膜は生体内で二重膜構造をとり、膜に嵌入したタンパク質が分子を認識し透過することで複雑な機能を保っている。近年、こうした脂質膜・膜タンパク質の人工的な創製によるナノバイオデバイスの可能性が研究され、創薬やセンサーの分野で幅広い展開が期待されている。しかし、脂質は結晶構造がとれないために、シミュレーションの

パラメータ設定は長年課題とされており、大規模な構造予測は難しいとされてきた。本研究では、リン脂質の一種であるPOPC膜の構造をシミュレートした。POPC分子を6つの小分子に分割し、複数配向の水を考慮した上で成分間のパラメータを算出した。その結果、脂質濃度に応じてベシクル、二重膜が生成された。また、二重膜の膜面積、膜厚は実験値[6]と良好な一致を示した[7]。更に、デバイスの基板となるシリカ上に脂質膜を固着するシミュレーションにも成功した[8]。

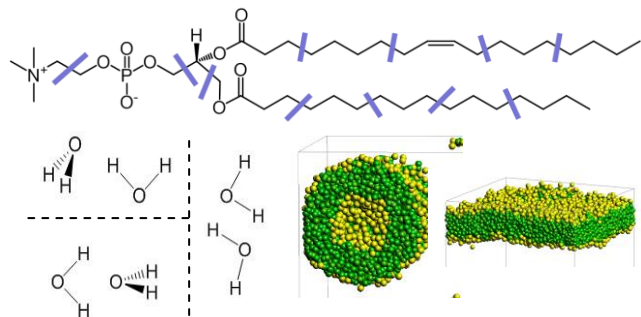


Fig. 1. POPC Structure (upper), water dimers used for parameter calculation (lower-left), and result of DPD simulation (lower-right)

【高分子電解質膜の Percolation 解析】 高分子電解質膜は、環境に優しいエネルギーとして期待される燃料電池のイオン交換膜として使われる。電解質膜が電池性能を決するために、高機能化が求められているが、分極や電荷の非局在化など電子レベルの相互作用が構造の本質であるために、パラメータの算定は大きな課題となっている。先行研究[9]に倣い、テフロン骨格の末端にスルホン酸を有し、燃料電池に一般的に使われる Nafion に対し本手法を用いたところ、水クラスタの連結構造を再現し、サイズも実験値[10]と良い対応を示した。

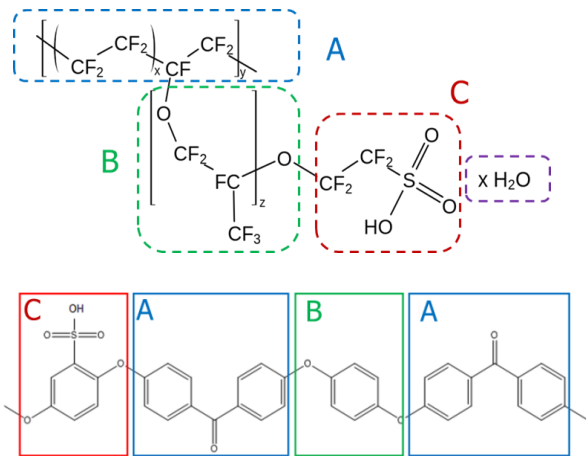


Fig. 2. Nafion Structure (upper), SPEEK structure (lower)

更に、膜の分子構造から生じる水クラスタの連結挙動の違いについても再現した。膜としての機能にはプロトン移動が直結すると考えられるため、水クラスタの連結度が膜の機能を示す有効な指標になるといえる。芳香族炭化水素骨格にスルホン酸を持ち、代替品として期待される

SPEEK 系の膜と、水クラスタの連結率を比較したところ、フッ素系膜に比べて小さい指標が示され、 H^+ 伝導度の実測値[11]と傾向が一致した。

実際の電解質膜中では、スルホン酸末端の一定割合のプロトンが電離しているといわれている。当日は、電離状態を考慮した上でのシミュレーション結果についても報告する予定である。

【謝辞】 本研究開発は文科省 FS2020 プロジェクトからの支援を受けている。

【参考文献】 [1] Groot, R. D. et al., J. Chem. Phys. **107** (1997) 4423. [2] Fan, C. F. et al., Macromolecules **25** (1992) 3667. [3] Tanaka, S. et al., Phys. Chem. Chem. Phys. **16** (2014) 10310. [4] <http://www.j-octa.com/> [5] 奥脇ら, 第9回分子科学討論会, 3P042(2015) [6] Kučerka, N. et al., J. Biochim. Biophys. Acta **1808** (2011) 2761. [7] Doi, H. et al., Chem. Phys. Lett. **684** (2017) 427. [8] Doi, H. et al., J. Comput. Chem. Japan. **16** (2017) 28. [9] Yamamoto, S. et al., Polymer J. **6** (2003) 519. [10] Gierke, T. et al., J. Polym. Sci. Polym. Phys. Ed. **19**(1981) 1687. [11] Wu, X. et al., J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys. **49**(2011)1437.