

【序】化学反応の制御は、主に静的なポテンシャルによる制御が現在広くおこなわれているが、反応の Kinematics を用いた制御は粒子散乱などの素過程、少数多体系を除いてあまりおこなわれていない。ここでわれわれが Kinematics と呼んでいるものは分子の Hamiltonian を内部座標で書いたときの計量の効果として捉えられるものである。そのような Kinematics の制御の手法を確立するためには、まず Kinematics が化学反応にどのような影響をもたらすのかを解明しなければならない。そのような Kinematics の効果は、共線形反応などの場合には質量加重座標をとり計量をユークリッド化するような座標変換を施すことによって、ポテンシャルのトポグラフィーの変化として捉えられてきたが、一般の場合には、

- ・ 3次元以上の系ではポテンシャルを可視化することができない
- ・ 4次元以上の系では必ずしも Weyl テンソルがゼロにならない(共形的平坦ではない)ので、そのような計量をユークリッド化するような座標系が局所的にも存在しない。

という2つの理由より、このような Kinematics の効果をポテンシャルのトポグラフィーとして捉えるという方法では巨大分子、高次元の化学反応における Kinematics の効果を捉えることができない。そこでわれわれは、そのような Kinematics の効果を計量に押し込め、Kinematics の効果を計量空間の幾何学的な構造として捉えるという方法論によって Kinematics の効果を考察し、それを制御することを、まずは気相中の反応の場合に試みた。われわれが計量によって取り出すことができる Kinematics の効果としては、

1. 質量配置の変化による相空間体積への寄与。(多くの場合、分子を近似的に振動回転分離することにより、振動モードの波数の変化としてしか理解されてこなかったが、特に気相中の反応に関しては、分子は角運動量の対称性を自発的に破ることができない。このことに起因して各構成原子はまったく独立には動くことができない。また、分子フレームをうまくまわすことによって質量移動を補償できるモードも存在する。その結果、単なる振動モードの波数変化以上の寄与をもたらす。)
2. 動的な捕捉状態を生み出す効果 (Kinematic ポテンシャルとして理解できる動的捕捉状態が存在する。たとえば Yanao & Takatsuka (Phys. Rev. A, in press) によって、平面3体クラスターの直線構造近傍にトラップされる運動が Kinematic ポテンシャルをとおして理解できることが示された。特に巨大分子においてこの寄与は大きい。)
3. 特定の配座にトラジェクトリーを集める効果 (内部座標の空間はゼロでない曲率をもっている。それは角運動量の保存量によるものともう一つはポテンシャルによって可動域が制限されているという二つの側面がある。そのようなゼロでない曲率によって、正曲率の場合にはトラジェクトリーを集める効果、負曲率の場合にはトラジェクトリーを散らすような効果を期待できる。)
4. スカラー曲率の効果 (この効果は純粋に量子力学的な効果である。このようなスカラー曲率の項が必要であることははじめに Bryce Dewitt (*Supermanifolds, second edition*, CAMBRIDGE) によって見出された。角運動量拘束条件などの拘束条件が点スペクトルの場

合にこの Dewitt による議論を用いることは、そんなに危険なことではないが、これを一般の拘束系に用いることは慎重にならなければならない。この一般拘束系への拡張については今後の課題としたい。)

の 4 つを挙げることができる。

【方法】われわれが Kinematics の制御の方法として用いたものは以下のようなものである

- ・ 分子のトポロジー (分子骨格をグラフに見立てたときのつながっている、つながっていない) の制御
- ・ 同位体置換ないしは化学的に不活性な重い基に置換することによる質量配置の制御
- ・ 溶媒などの配位分子を付着させることによる質量配置の制御
- ・ 分子の対称性による制御

以上の方法により Kinematics の制御をおこなった。

【結果】分子モデルによる同位体置換による相空間体積のコントロールの例を示す。

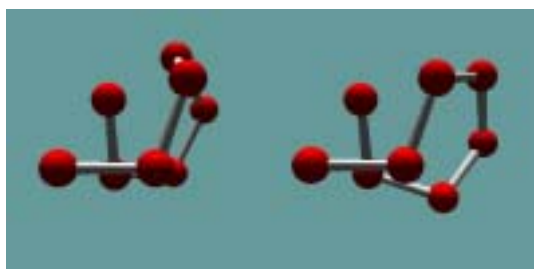


図 1 . 構成原子 (赤の部分) の質量が一定の場合

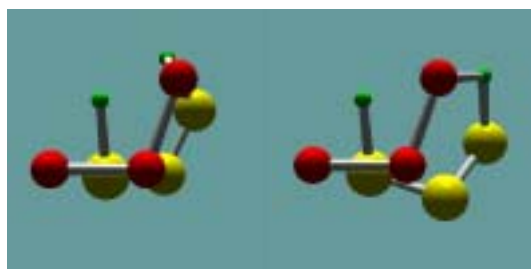


図 2 . 構成原子の質量を変えた場合

ここでは原子 (赤い球) 同士のポテンシャルとして Morse ポテンシャルを用いている。そのときに隣り合う 2 つの極小構造 (ベイスン) の相空間体積を比較する。図 1 . に示した 2 つの配座の相空間体積比は約 1:1 であるが、図 2 . に示した二つの配座の相空間体積比は 2:1 になる。今の場合図 1 . の質量分布として、 $(m_1, m_2, m_3, m_4, m_5, m_6, m_7, m_8) = (1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1)$ を用いており、図 2 . の質量分布として、 $(m_1, m_2, m_3, m_4, m_5, m_6, m_7, m_8) = (0.5, 2, 2, 2, 0.5, 1, 1, 1)$ を用いた。もちろん逆の操作も可能である。

今の場合、相空間体積は $\int_{V(q) < E} \frac{(E - V(q))^{N/2}}{\Gamma(N/2)} \sqrt{\det g_{\mu\nu}} dq$ で表されるが、二つの質量分布に関する

ベイスンの相空間体積の変化は、N 形式 $\sqrt{\det g_{\mu\nu}} dq$ の変化として理解することが可能である。こ

のモデルは簡単なモデルであり、今後、より詳細なモデルによって検証される必要があるが、このことは質量分布をうまくコントロールすることによって、ベイスン間の相空間体積比をコントロールし得ることを示唆している。このようなコントロールの著しい点は、0-1 の制御ではなく、配座の比率の制御という連続的なコントロールができる点である。このことはたとえば蛋白質、超分子などを設計する上において重要になる。なぜならば、それらは配座間の揺らぎをとおして機能を発現するものであると考えられるからである。

理論の詳細と残りの制御の結果については当日報告する。