

# 分子間プロトン移動に伴う電子移動に関する理論的研究

松瀬丈浩, 村上 泰  
信州大学繊維学部精密素材工学科

## 1 緒言

水分子におけるプロトン移動では、水分子自身はプロトン受容体 (acceptor) とプロトン供与体 (donor) になり、反応の方向が一方向にならない。しかし、構成分子の電子構造と空間構造等を考慮すると、プロトン acceptor、donor の役割を明示できるプロトン移動とそれに伴う電子移動の制御が出来る分子設計が出来るのではないかと着想出来る。

本計算では反応後の分子の対称性が良く、分子量の近い、アセトアミジンと酢酸における各々の二量体または互いの分子間プロトン移動、それに伴う電子移動を解明するために、プロトン移動のポテンシャル表面の解析、等を理論の面から考察する。

## 2 計算方法

Hartree-Fock-Kohn-Sham (HFKS) と局所密度汎関数 (LDA) における電子状態がほぼ同様の結果を得た事より、本来は HFKS 計算を実行して分子間のプロトン移動を分析すべきだが、計算機の能力が実情に対応していないので、プロトン移動の基本的特徴を理解するには非常に簡単に計算できる局所密度汎関数近似 (LDA) を採用した。

## 3 計算結果

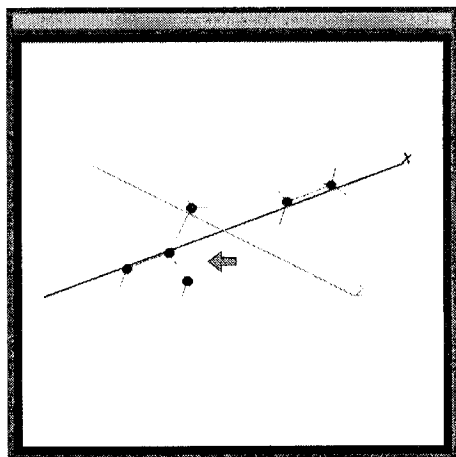


図 1: 面対称のプロトン移動経路

上記の計算方法をアセトアミジン-酢酸系に適用した計算結果として、面対称にお

ける HOMO の電子状態の推移を示す。図 1 ではプロトン移動の経路を表している。移動は簡略化の為、プロトンの移動距離は X 座標に投影した距離で 1 Å とし、移動は簡略化のため直線上であるとした。

図 2 にはプロトン移動に伴い HOMO 付近の

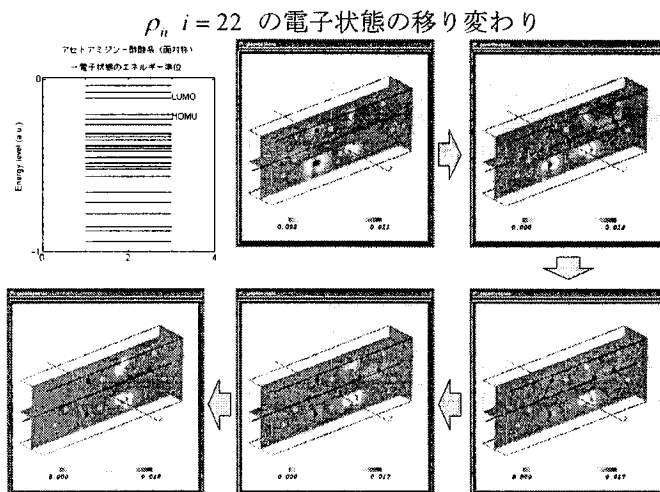


図 2: 面対称

電子の移動が見られる。これにより、プロトン移動が生じると、それに伴った電子の移動が生じると推測される。これは我々は『プロトン移動に伴って電子の移動はない』と、当初の考えていたが、この結果は大変興味深いものとなった。また、ここでは示してはないがプロトン移動の過程での全エネルギーの推移を見ると興味深い結果が得られている。

## 4 考察

本研究では理想的孤立系として分析をすることでプロトン移動に関する示唆的結果を得たが、今後は溶媒効果、特に水溶液中の分子を計算することを試み、より実際的分析を行う。現在は古典的にモデル化された水分子が量子力学的に取り扱われる分子を取り囲んでいるモデルで計算を進めている。初期的計算では古典的水分子で取り囲まれている量子力学的な水分子を 3D メッシュ HFKS 計算してみると、水溶液中の水分子の双極子モーメントを非常に良く再現することが分かった。今後は水溶液中の分子の性質を量子力学的に分析することが出来るので、溶媒中の分子間のプロトン移動の理論的研究が具体的に典型出来ると判断している。