



国立大学法人
総合研究大学院大学
The Graduate University for Advanced Studies [SOKENDAI]



自然科学研究機構
分子科学研究所



岡山大学
OKAYAMA UNIV.

2013年6月13日(木)

報道機関各位

国立大学法人 総合研究大学院大学
電話 046-858-1590 FAX 046-858-1542

プレスリリース概要

『氷の融解が始まる“きっかけ”を分子レベルで解明することに成功』
のご案内

初夏の候、貴社ますます御隆昌にてお慶び申し上げます。平素は学術研究の発展と広報活動に格別のお引き立てをいただき、厚く御礼申し上げます。

下記の通りプレスリリースをおこないますので、ご案内を申し上げます。何卒宜しくお取りはからいますようお願い申し上げます。

記

- タイトル：氷の融解が始まる“きっかけ”を分子レベルで解明することに成功
- 論文原題：Defect pair separation as the controlling step in homogeneous ice melting
- 発表雑誌名：**Nature** 2013年6月20日号 Nature誌の表紙を本研究が飾ります
- 発表方法①：記者会見
記者会見日時：6月18日(火)15時45分開始
記者会見会場：学術総合センター 中会議場1
アクセス
<http://www.hit-u.ac.jp/guide/other/pdf/guide.pdf>
- 発表方法②：ウェブ発表。解禁後に発表内容を下記ウェブサイトに掲載します。
総合研究大学院大学 <http://www.soken.ac.jp/>
- 記事解禁日時：2013年6月20日(木)午前2時(日本時間) ※同日朝刊への掲載は可
- 共同発表研究機関：自然科学研究機構 分子科学研究所及び岡山大学からも同内容が各報道機関へ送信されています。

○お問い合わせ先：

(1)発表者：望月 建爾（もちづき けんじ）

（総合研究大学院大学 物理科学研究科 機能分子科学専攻 5年一貫制博士課程4年）

電話：0564-55-7394（研究室）

個人 HP：<http://kenjimochizuki.wiki.fc2.com/>

(2)共著者：松本 正和（まつもと まさかず）

（岡山大学大学院自然科学研究科 准教授）

電話：086-251-7846（研究室）

研究室 HP：<http://theochem.chem.okayama-u.ac.jp/>

個人 HP：<http://theochem.chem.okayama-u.ac.jp/wiki/wiki.cgi/matto>

(3)共著者：大峯 巖（おおみね いわお）

（分子科学研究所 教授・所長、

総合研究大学院大学 物理科学研究科 構造分子科学 教授（併任）

電話：0564-55-7103（研究室）

研究室 HP：<http://www.ims.ac.jp/person/iohmine.html>

(4)広報担当：眞山 聡（まやま さとし）

総合研究大学院大学 広報室

広報室電話：046-858-1658/1590

【発表のポイント】

- ◆成果 氷が内部から融解する仕組みを、コンピュータシミュレーションを用いて、分子レベルで詳細に解明する事に初めて成功した。
- ◆新規性 氷の構造の乱れの大きさを測る新しい尺度を開発し、氷の融解過程はこれまで考えられていたような単純な経路ではなく、“水素結合ネットワークのからまり”をきっかけとする複雑な過程であることを明らかにした。
- ◆意義ならびに将来展望 固体・液体間の相変化という普遍的物理現象の仕組みを分子レベルで明らかにしたものであり、様々な物質の構造変化を理解する基盤を提供する。また、周囲の水を含む蛋白質の構造変化の仕組みの解明、さらには、その繰り返しである“生命の維持”を分子レベルで解明することへ繋がると期待される。

【研究内容】

1. イントロダクション

氷は通常、融点(1気圧では 0℃)で容器の壁や表面から融け始めます(不均一融解)。これに対し、界面が存在しない理想的な環境では、氷自身が自発的に結晶構造を乱し、融解のきっかけを作りだす、均一融解という現象が起こります。身近な例では、氷に強い光をあてると、表面だけでなく内部からも融け、融けた液体の水がチンダル像と呼ばれる、雪の結晶とよく似た形を氷の中に形成します(図1)。この内部からの融解が“界面が存在しない理想的な環境”に対応します。チンダル像はアイスフラワーとも呼ばれます。

この氷の均一融解は、いわゆる一次相転移という物理・化学の最も重要な現象の一つです。氷の結晶は、それぞれの水分子が隣接する4つの水分子と計4本の水素結合を作っており、図2のように、規則正しく秩序を保った非常に安定な水素結合ネットワーク構造を形成しています。一方、液体の水は、水素結合は残っていますが、より乱雑な無秩序な構造をしています(図3)。均一融解において、氷の安定な構造を崩壊させ、乱雑な液体の水の構造へ変化させる仕組み、特に秩序が崩壊し始める“きっかけ”は、これまで謎のままでした。

今回、総合研究大学院大学の望月建爾氏(物理科学研究科機能分子科学専攻5年一貫制博士課程4年)は、岡山大学の松本正和准教授および分子科学研究所の大峯巖教授とともに、均一融解の初期過程を分子レベルで詳細に解明する事に世界で初めて成功しました。

2. 研究手法

本研究は、分子動力学法と呼ばれる、コンピュータシミュレーション技法を用いて氷の融解過程を再現しました。特に、氷の構造の乱れの大きさを測る新しい尺度を開発し、さまざまな物理化学の理論計算手法を駆使して、解析を行いました。

3. 研究結果

本研究では、氷の構造が乱れる最初のきっかけから、それが成長して最終的に大規模な構造の崩壊に至る過程を詳細に追跡しました。その結果、氷の融解過程が、これまで考えられていた、微小な液滴の形成→液滴の成長→大規模な融解という単純な経路ではなく、ある種の格子欠陥対の形成と分離(図4)といった紆余曲折を経た複雑な過程(図5)を経ないと、融解できない事を明らかにしました。

水分子同士の水素結合のエネルギーは非常に強いため、温度による構造の揺らぎに誘発されていくつかの欠陥が出来ても、ほとんどの場合すぐに安定な氷構造へ戻ってしまいます。しかし、一旦格子欠陥対が分離すると、それらの欠陥対を消して、再び完全な氷構造へ戻すのは困難であり、糸がからまりなかなか元に戻せないような現象、“水素結合ネット

ワークのからまり”が生じます。この欠陥対は“消えない欠陥”として結晶中に存在し続け、さらに、水素結合ネットワークの組み替えを活性化する役割も果たす事で、氷の強固な水素結合ネットワーク構造を崩壊に導く“きっかけ”になる事を見つけました。

4. 今後の発展性・波及効果

本研究は、「固体の中の強い結合で形成された結晶構造がどのように壊れ液体になるのか？」という物理化学の最も基本的な課題の解明に挑戦しました。この成果は、水という最も身近な物質を対象として、「物質(物)の相」が変化する原因は何かという最も基本的な問題に対する一つの解を与えたものです。このような基礎研究の成果が、すぐに何かの「役に立つ」わけではありません。しかし、広く普遍的な物理現象を分子レベルで解明したものであり、今日のエレクトロニクスを支えるシリコンのような他の様々な物質の構造変化の仕組みを明らかにすることにもつながります。また水そのものは、我々の生命に不可欠です。例えば、タンパク質の生理学的機能にも、周りを取り囲む水が大きな寄与をしていることが示唆されています。水の構造変化に関する今回の研究は、“生命の仕組み”の解明につながるかもしれません。

【論文全著者】

望月 建爾 (もちづき けんじ)

(総合研究大学院大学 物理科学研究科 機能分子科学専攻 博士課程4年)

松本 正和 (まつもと まさかず)

(岡山大学大学院 自然科学研究科 准教授)

大峯 巖 (おおみね いわお)

(分子科学研究所 教授・所長、総合研究大学院大学 物理科学研究科構造分子科学専攻教授 (併任))



図1：氷の内部融解で現れるチンダル像の写真。単結晶の氷の内部から融解した時に現れる模様。写真の中の六花模様は融解で生じた液体の水で、その周りは氷の結晶。チンダル像の大きさは5 mm 程度。

(クレジット：中谷宇吉郎雪の科学館)

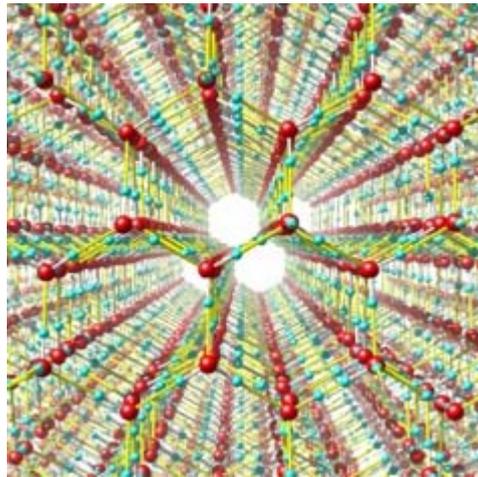


図2：氷の結晶の分子構造。赤色が酸素原子、白色が水素原子を表す。白色の線は分子内の酸素と水素の結合、水色の線は分子間の水素結合を表す。各分子が周囲の4分子と4本の水素結合を作っている。6つの水分子が環を作り、非常に秩序だった構造である。

(クレジット：総研大・岡山大・分子研)

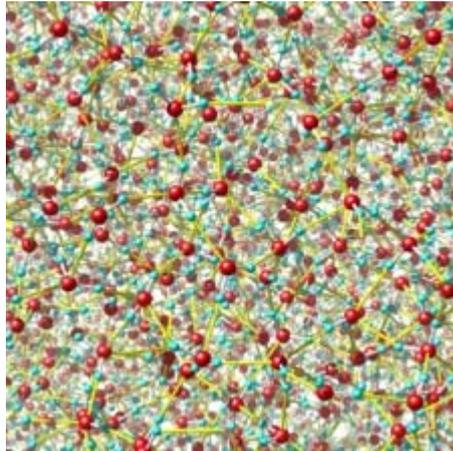


図3：液体の水の分子構造。色は図2と同じ。氷とは異なり、乱雑な構造である。
 (クレジット：総研大・岡山大・分子研)

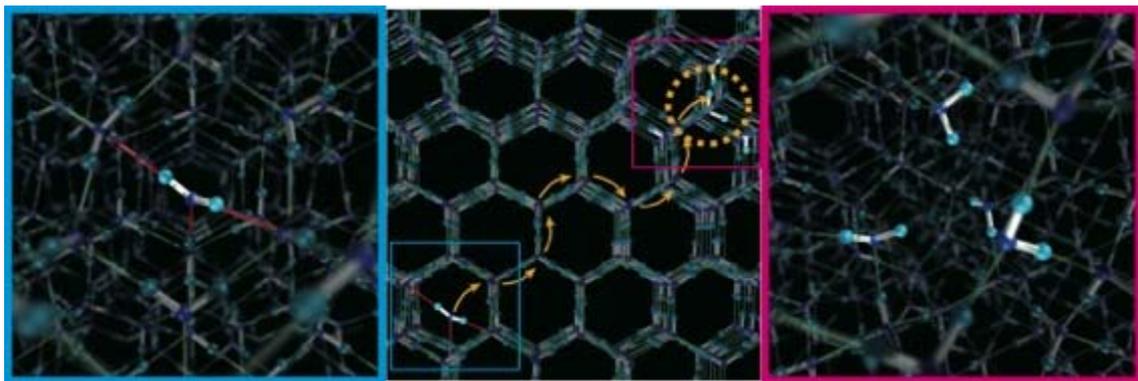


図4：分離した欠陥対の典型的な構造。左右の青と赤で囲まれた図は、中央の図の欠陥対の周辺構造を拡大した。左の欠陥は、侵入型欠陥と呼ばれ、結晶中に一つ余分な分子が入っている。右の欠陥は、空孔型欠陥と呼ばれ、結晶点にあるはずの分子が抜けている。二つの欠陥は対として生成し、フレンケル欠陥と呼ばれている。

(http://en.wikipedia.org/wiki/Frenkel_defect)

欠陥対以外の部分は、整然とした氷構造を保っているのが分かる（中央の図）。この欠陥を消すには、結合を一旦壊しながら、中央の図の橙色の矢印の経路を辿り、侵入型と空孔型の2つの欠陥が会う必要がある。このように、特定の経路を通らないと、完全な結晶構造に戻れない状態を“糸のからまり”と表現した（研究内容）。氷の結晶中には、他にもさまざまな種類の欠陥が存在するが、数ある欠陥の中で、この欠陥対が融解を引き起こす事実を明らかにし、その理由を物理的に説明したのは本研究が世界で初めてである。

(クレジット：総研大・岡山大・分子研)

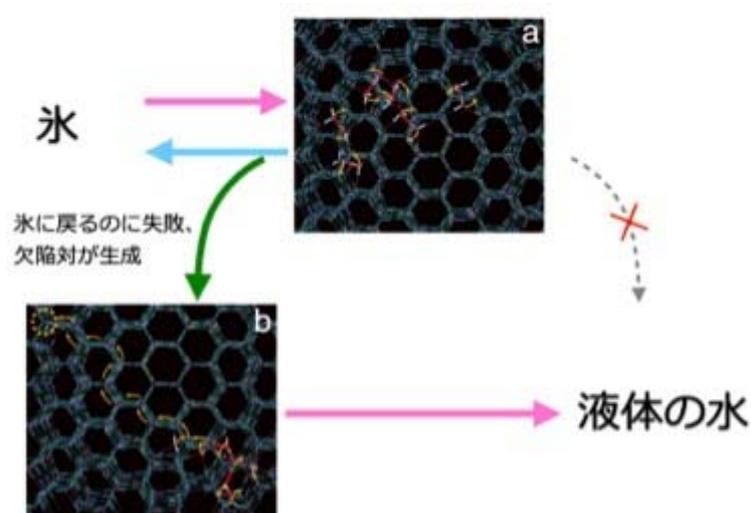


図5：融解過程の概略図。結晶点から離れた分子（欠陥分子）は明るい色、それらが作る水素結合は赤い線で示した。図4と同様に、完全な結晶構造へ戻るための経路を橙色の矢印で示した。まず、氷から構造(a)のような欠陥分子を含む構造ができる。(a)は、欠陥分子の数は多いが、氷へ戻る経路は短く、熱揺らぎで簡単に氷へ戻ってしまう。そのため、構造を破壊し、液体の水へ相転移する事はない。完全な結晶構造へ戻るには、全ての欠陥分子が適切な場所へ戻る必要がある。しかし、時々失敗し、図(b)のように、侵入型欠陥と空孔型欠陥（フレンケル欠陥）が取り残される。研究内容で説明したように、この欠陥対が氷へ戻らない“消えない欠陥”として存在し続け、かつ水素結合ネットワークの構造変化を容易にする事で、液体の水へと導く。

（クレジット：総研大・岡山大・分子研）

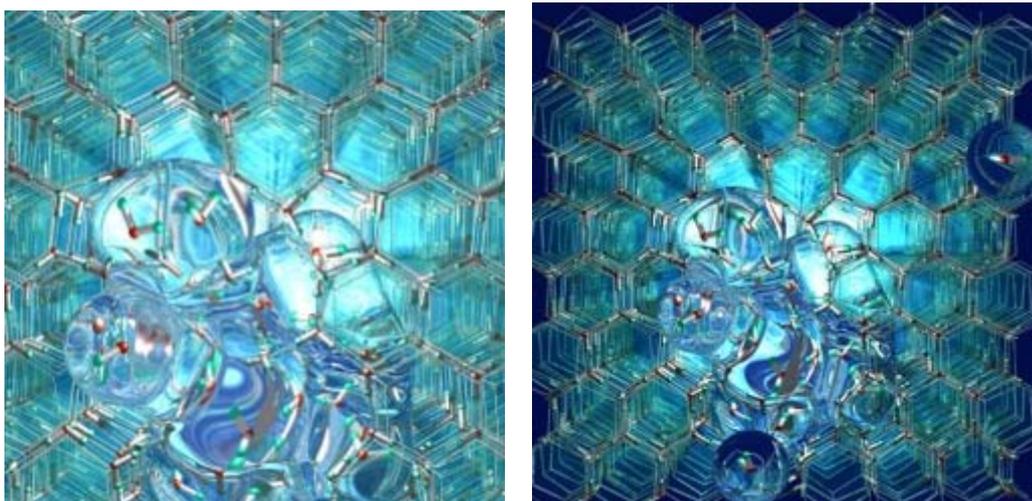


図6：規則正しい氷の構造の内部から、融解が始まり、液体の水が現れる様子を模式的に表した図。

（クレジット：総研大・岡山大・分子研）

動画1：氷から液体へ至る全過程の映像（解禁前の報道機関専用サイトでダウンロード可能です）

（クレジット：総研大・岡山大・分子研）