構造的流体中における 微粒子表面間力算出手法の開発

03508

助 成 対 象 者 森 貞 真太郎 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻

研究の直接の指導者 東 谷 公 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 教授

研究成果の概要

従来、液相中における微粒子表面間力は主にDLVO理論により説明されてきたが、このDLVO理論は無機電解質溶液中の表面間力にしか適用できない。しかし、実際の液相微粒子分散系では、分散剤・凝集剤として界面活性剤や高分子電解質がしばしば用いられるため、DLVO理論では解釈できない表面間力が観察される。このような表面間力の理解には分子レベルの解析が必要であるため、分子動力学法やモンテカルロ法に基づく計算機シミュレーションが有効であると考えられるが、計算機の実力による制約から、その実現は困難である。そこで本研究では、次のような手法の開発を試みた。

- (1) 溶媒とイオンや界面活性剤などの溶質に対して詳細な分子モデルを用いた小規模な分子動力学計算から、定量的な溶質間相互作用と自己拡散係数を算出する。
- (2) (1)で得られた結果を用いて、溶媒を陰に扱うシミュレーションを行う。

このような手法により計算量を大幅に削減することで、微粒子を含む界面活性剤溶液や高分子電解質溶液（構造的流体）のシミュレーションを実現が可能になると考えられる。

構造的流体中の表面間力計算を行うためには、それに先立ち、その流体自体を適切に表現できなければならない。そこで、まずは大規模な界面活性剤水溶液のシミュレーションの実現を試みた。その結果、界面活

性剤が集合体を形成する様子や、集合体が分裂する様子が観察された。また、水中における界面活性剤ミセルのシミュレーションを行った結果、実験で示されるようなミセル内部の流動性を表現できることが示された。このミセルの内部構造は、水分子まで含んだ通常の分子動力学法により、膨大な計算時間を費やして得られた結果とも良好に一致した。さらに、陰溶媒モデルにより、電解質によるミセルの安定化を表現することも確認された。以上のように、本研究の手法により界面活性剤水溶液を表現できることが示された。

DLVO理論では、表面間力は固液界面に形成される電気二重層の重なりによる静電反発力と、van der Waals引力との釣り合いで表現される。このDLVO理論により、電解質水溶液中における表面間力は正確に記述することができる。そこで、塩化ナトリウム水溶液中に二つの球形粒子を導入したシミュレーションにより、表面間力の解析を行い、得られた結果をDLVO理論と比較、検証した。その結果、本手法により粒子表面間力を適切に表現できることを確認すると共に、DLVO理論では不明であった粒子・溶液界面での詳細な溶質分子分布を明らかにした。

以上のように、これまでに界面活性剤水溶液やコロイド粒子分散系へ適用可能な、大規模シミュレーション手法の開発に成功し、界面活性剤水溶液のような構造的流体中における粒子表面間力算出のための基礎を確立した。今後は、これまで開発した手法を組合せ、界面活性剤水溶液中における粒子表面間力算出という、これまでは実現できなかったシミュレーションに取り組んでいく予定である。

発表論文

- 1) Shinto, H., Morisada, S., Miyahara, M., and Higashitani, K.; "Langevin Dynamics Simulations of Cationic Surfactants in Aqueous Solutions Using Potentials of Mean Force," *Langmuir*, **20**, 2017-2025 (2004).
- 2) Morisada, S., Shinto, H., and Higashitani, K.; "A Revised Implicit Solvent Model for the Simulation of Surfactants in Aqueous Solutions," *J. Phys. Chem. B*, submitted.
- 3) Morisada, S., Shinto, H., and Higashitani, K.; "Interactions between Colloidal Particles in NaCl Aqueous Solutions: Molecular Dynamics Simulations with an Implicit Solvent Model," *Advanced Powder Technol.*, in press.

学会発表

- 1) 森貞真太郎, 村西健嗣, 新戸浩幸, 東谷 公; "水溶液中におけるコロイド粒子間力の計算機シミュレーション," 第57回コロイドおよび界面化学討論会, 山口, 2004年9月
- 2) 新戸浩幸, 森貞真太郎, 東谷 公; "界面活性剤水溶液系の分子シミュレーション: 粗視化モデル vs 陰溶媒モデル," 第18回分子シミュレーション討論会, 京都, 2004年12月
- 3) 森貞真太郎, 新戸浩幸, 東谷 公; "陰溶媒モデルを用いた界面活性剤水溶液の大規模シミュレーション," 化学工学会・第70年会, 名古屋, 2005年3月発表予定