

Title	分離プロセスの量子化学的研究
Author(s)	田門, 肇
Citation	京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステム研究 成果報告書 (2016), 2015: 48-48
Issue Date	2016-03
URL	http://hdl.handle.net/2433/214368
Right	
Type	Article
Textversion	publisher

分離プロセスの量子化学的研究
Quantum Chemical Studies on Separation Processes

京都大学 大学院 工学研究科 化学工学専攻 分離工学分野 田門 肇

研究成果概要

本研究では、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムを利用し、吸着剤と吸着質の分子間相互作用や、乾燥過程における分子の動的挙動など、吸着工学や乾燥工学などにおける微視的な諸問題を取り上げ、分子軌道法や分子動力学法などの分子シミュレーションを用いて検討を行うことを目的としている。今年度は水-エタノール溶液中における活性炭スリット細孔へのプリン体の吸着過程について、分子動力学 (MD) シミュレーションにより検討した。以下その概要を報告する。

プリン体はアルコール飲料等に多く含まれ、過剰に摂取すると健康を害することが知られている。消費者の健康志向の高まりから、近年、酒造会社はプリン体等を低減した製品を意欲的に開発している。低減方法の一つとして、吸着材による分離除去が挙げられる。本研究では、水-エタノール溶液中においてプリン体が活性炭スリット細孔に進入する場合の自由エネルギー変化 ΔF を分子動力学 (MD) シミュレーションにより求めるとともに、その吸着過程について、実験では困難な分子レベルの解析を行った。

プリン体のモデルとしてプリン分子を、活性炭のスリット細孔 (スリット幅 16Å) のモデルとして 2 枚のグラフェンシートを用いた。なお基本セルの大きさは 19Å × 32Å × 32Å であった。これらのモデルを用いて、温度 298 K、圧力 1 atm、アルコール度数約 10 % の水-エタノール溶液中におけるプリン分子の吸着に関する NVT アンサンブル MD シミュレーションを実施した。計算には BIOVIA 社の Materials Studio 8.0 を用い、分子力場には Dreiding, TIP3P を用いた。時間の刻み幅は 1 step を 1 fs とした。プリンがセルの一番端の yz 平面の中心 (x, y, z) = (0, 0, 0) から、細孔壁の中央部 (16, 0, 4.5) (単位: Å) まで移動する場合の ΔF を得るため、プリン体の進入経路上の各点において、400 ps の熱平衡計算後、250 ps の計算結果からプリンに働く平均力を求め、それを経路に沿って積分することで ΔF を算出した。

上述の方法により、経路①: (0, 0, 0) → (10, 0, 0) → (10, 0, 4.5) → (16, 0, 4.5)、および経路②: (0, 0, 0) → (16, 0, 0) → (16, 0, 4.5)、の2つの進入経路に対する ΔF を求めた。その結果、細孔の中央部にプリン体が吸着し得ること、その際の ΔF が約 -65 kJ mol^{-1} であることがわかった。次に、水中において経路②に沿ってプリン体が細孔に進入する場合の ΔF と比較した。その結果、スリット細孔内において、水-エタノール溶液中の方が水中よりも ΔF の低下の度合いが大きいことがわかった。その原因を検討するため、プリンと水の平均水素結合数を求めたところ、水中の方がスリット細孔内における平均水素結合数が多いことがわかった。これは、水-エタノール溶液中では、プリンが水から受ける平均力が吸着に及ぼす影響が弱まり、細孔壁から受ける引力の影響が相対的に大きくなったことを示唆する結果である。