

無水キトサン結晶の物性表現に向けた GROMOS 56Acarbo 力場の改良
Force-Field Refinement of GROMOS 56Acarbo for Accurate Property Prediction of Anhydrous
Chitosan Crystals

京都大学 農学研究科 森林科学専攻 生物繊維学分野 大川一路

研究成果概要

キトサンは、セルロースの C2 位ヒドロキシ基がアミノ基に置換された構造をもつ多糖類の一種である。キトサンには無水型と水和型の二つの結晶多形が存在しているが、その構造は未解明であった。近年、無水型のみが結晶構造が明らかになり(Fig. 1)¹⁾、分子動力学(MD)シミュレーションを用いた物性予測が可能となった。

MD による物性予測は力場の設計に強く依存するため、適した力場を構築することが重要である。単糖・多糖に対応するよう改良されてきた GROMOS 56Acarbo^{2, 3)} 力場は、単糖などの小分子に対しては物性を良好に再現できたが、無水キトサン結晶の安定な構造再現は十分にはできなかった。そこで、無水キトサン結晶の構造および物性を再現可能な力場を構築した。

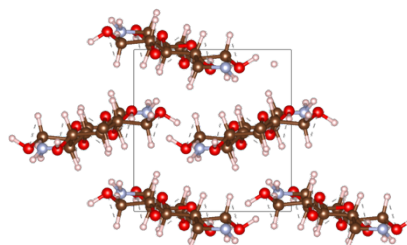


Fig. 1 The crystal structure of anhydrous chitosan¹⁾

GROMOS 力場における原子間相互作用は、レナード-ジョーンズ(LJ)ポテンシャルによって特徴づけられる。二原子間距離 r のとき、LJ ポテンシャル $L(r)$ は eq. 1 で与えられる。さらに、原子種ごとに 6 乗項および 12 乗項に対応するパラメータが定義されており、さらに極性相互作用を表現するための特別な 12 乗項(追加パラメータ)が用意されている。

$$L(r) = \frac{C_6}{r^6} - \frac{C_{12}}{r^{12}} \quad (\text{eq. 1})$$

$$C = \epsilon_i \epsilon_j \quad (\text{eq. 2})$$

しかし、GROMOS 56Acarbo 力場無水キトサン結晶の安定化に重要となる C-H $\cdots$ O(あるいは C-H $\cdots$ N)型の弱い極性相互作用に対しては、C-H 原子に対応する極性 12 乗項が定義されていない。これを補完するために、LJ パラメータの最適化を行った。

その結果、 $[C_{12}]^{1/2} = 3.775 \times 10^{-3} \text{ (kJ mol}^{-1} \text{ nm}^6)^{1/2}$ の時に最もよく物性が表現できることが明らかになり、無水キトサン結晶に対して整合性のある MD 計算が行えるようになった。

1) Naito, P. K. et. al., *Biopolymers*, **105**,361-368, (2016). 2) Hansen, H. S., and Hünenberger, P. H., *J. computational chemistry*, **32**, 998-1032, (2011). 3) Naumov, V. S., and Ignatov, S. K., *J. of Molecular Modeling*, **23**,1-15, (2017).

学会発表 (謝辞あり)

セルロース学会第 32 回年次大会

・分子動力学法による無水キトサン結晶の熱膨張シミュレーション