

名古屋大学理学部化学科

新見顕、江上知幸、松本正和、大峰巖

Proton Transfer and Ordering in Ice

Dept. of Chemistry, Nagoya University

Akira Shinmi, Tomoyuki Egami, Masakazu Matsumoto, and Iwao Ohmine

水中のプロトン移動[1]は氷のプロトンディスオーダー[2]や格子欠陥により制約される一方、プロトン移動が水素結合ネットワークのトポロジーを変化させ、長期的には結晶構造にまで影響を及ぼす可能性がある。このように、氷の中のプロトン移動は、部分と全体が相互に影響しあう問題として非常に興味深い。

我々は、格子ダイナミクスモデルを用い、100万分子からなる結晶格子上でプロトンホッピングのポテンシャルエネルギー面(PES)を詳しく調べた。その結果、PESは、小林らのQM/MM法による結果同様、平坦であることがわかった。[3]また、多数のプロトン移動経路のなかには、エネルギーバリアがなく、単調にエネルギー低下がおこる経路が必ず存在することがわかった。このような経路を選んでホッピングを続けると、系のエネルギーを非常に低くすることができる。その過程で、氷の大域的なネットワークトポロジーは変化し、プロトンオーダー氷(POI)に漸近することがわかった。

現実の氷を極低温に冷却しても、プロトンの秩序化にはおおよそ百万年程度を要すると考えられている。[4]また、観測時間内にPOIへの転移がおこるには、KOHのドーピングなどの方法が不可欠である。[5]一方、外惑星系にはPOIが多量に存在する可能性があり、その物性や形成機構は近年再び注目を集めている。[6]

理論と実際の齟齬は、現実の氷に含まれる様々な格子欠陥あるいは氷の表面が、プロトンを捕獲し、ホッピングが著しく遅くなるのが原因である可能性がある。講演では、これらの影響等についても議論する。

[1] D. Marx, *ChemPhysChem* **7**, 1848 (2006).

[2] J. D. Bernal and R. H. Fowler, *J. Chem. Phys.* **1**, 515 (1933).

[3] C. Kobayashi et al, *J. Chem. Phys.* **113**, 9090 (2000); *ibid* **115**, 4742 (2001).

[4] Suga, H. *Solid State Phys. (in Japanese)* **20**, 125 (1985).

[5] Kawada, S. *J. Phys. Soc. Jpn.* **32**, 1442 (1972).

[6] H. Fukazawa et al, *J. Phys. Chem. B* **106**, 6021 (2002).