

課題名 (タイトル) :

計算化学手法を用いた気相有機イオン構造モデルの評価

利用者氏名 : 中村 健道

所属 : グローバル研究クラスタ連携支援ユニット (物質構造解析)

- | | |
|--|--|
| <p>1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係</p> <p>有機分子由来気相イオン, 特に ESI 法で生成するプロトン付加もしくはカチオン付加分子と, MS/MS 法により生成するフラグメントイオンの構造をモデル化し, モデル構造, 推定遷移状態, フラグメンテーション反応経路・機構と実測質量スペクトルパターンの比較評価を行う. 我々が開発中の閾値エネルギー分解 IMS/MS/MS 法を用いて観測可能な気相イオンの衝突断面積見積りとイオン移動度分析データの関連付けによるモデルの検証を組み合わせ, 異性体識別を含む有機化合物の確実な同定を可能とするための方法論を確立し, メタボロミクス等, 有機化合物の微量迅速同定を必要とする生命科学分野の研究に資することを旨とする. 応用分野でしばしば興味の対象となる中程度の大きさの有機分子 (分子量数百から千程度) の大きさの有機分子を扱うため, スーパーコンピュータの利用による計算の高速化が必要である.</p> <p>2. 具体的な利用内容、計算方法</p> <p>閾値エネルギー分解 IMS/MS/MS 法を用いたフラグメンテーション反応経路・機構解析法ワークフロー開発のモデル系の一つとして対称性を有する 20 員環ケトエーテルを選択, 前駆イオン (リチウム付加体) 及び衝突活性化解離により生成するプロダクトイオンの構造モデルを構築した. まず, 実験室ワークステーション環境において Conflex および Spartan を用いて候補コンフォメーションを探索, 主要な候補構造について DFT 計算を用いた精密化を行った. 精密化後の構造について, Mobcal を用いて衝突断面積を計算, IMS/MS/MS 実験データとの比較を行った. また, RICC においては, 今後, コンフォメーション探索の範囲を広げて同様の Gaussian による構造精密化と Mobcal による衝突断面積計算を大規模に行っていく際の作業手順確率のため, 小</p> | <p>規模の試行計算を実施した.</p> <p>3. 結果</p> <p>ワークステーション環境における計算により, 候補コンフォメーション (10 構造レベル) の中から有望な構造 3 件程度に絞り込み, 構造精密化と衝突断面積計算を行った結果, 実験データと誤差範囲内で一致する候補構造を見出すことができた.</p> <p>4. 今後の計画・展望</p> <p>今後は, 候補コンフォメーション探索の範囲を広げ, RICC において 100 個レベルの候補構造の精密化並びに衝突断面積計算を実施, ワークステーション環境で得られた候補構造の妥当性を検証する. さらに, 候補構造に基づく気相単分子解離反応経路ならびに遷移状態をモデル化, と MS/MS スペクトルパターンの関連付けを試みる.</p> |
|--|--|