

令和4年度高性能汎用計算機高度利用事業
「富岳」成果創出加速プログラム
「環境適合型機能性化学品」
成果報告書

令和5年5月30日
大阪大学 基礎工学研究科

松林 伸幸

目次

1. 補助事業の目的	1
2. 令和4年度（報告年度）の実施内容	1
2-1. 当該年度（令和4年度）の事業実施計画	1
2-2. 実施内容（成果）	2
(1) 共重合ポリマーへの有機不純物の吸着	2
(2) セルロース誘導体への水、ガス、および、有機成分の吸収	3
(3) 樹脂／無機接着界面の水分子による劣化	4
(4) プロジェクトの全体推進	6
2-3. 活動（研究会の活動等）	6
2-4. 実施体制	7
別添1 学会等発表実績	9

補助事業の名称

「富岳」成果創出加速プログラム
環境適合型機能性化学品

1. 補助事業の目的

ポリマー材料の環境適合化を目的とし、水処理など環境の改善に資する分離膜の劣化要因であるファウリングの抑制、撥水ポリマーのような機能性材料における環境リスク成分の使用削減、そして、バイオ由来のセルロース樹脂の機能強化のために、全原子 MD シミュレーションと自由エネルギー計算を行い、有用なポリマー構造を探索する。また、樹脂／金属界面の接着およびその劣化機構を QM/MM 計算で解明し、ポリマー材料を用いたマルチマテリアル化の促進に貢献する。

2. 令和4年度（報告年度）の実施内容

2-1. 当該年度（令和4年度）の事業実施計画

(1) 共重合ポリマーへの有機不純物の吸着

エチレン酢酸ビニルなどの共重合ポリマーを対象とし、疎水性および親水性を系統的に幅広く変えた有機不純物の吸着を全原子 MD シミュレーションによって解析し、吸着を支配する分子間相互作用成分を吸着自由エネルギーの成分分割によって解明する。

(2) セルロース誘導体への水、ガス、および、有機成分の吸収

セルロースおよびその誘導体を検討対象として、そこへの水やガスの吸収を全原子 MD シミュレーションと自由エネルギー計算によって解析し、セルロースの置換基および集合様態が吸収自由エネルギーに及ぼす影響を明らかにする。

(3) 樹脂／無機接着界面の水分子による劣化

Al／エポキシ系樹脂および SiO₂／フッ素系樹脂を対象として、電子レベルでの自由エネルギー計算と QM/MM 型ハイブリッドシミュレーションによって、接着界面の劣化を引き起こす変形と化学反応のカップリングを解明する。

(4) プロジェクトの全体推進

本事業を効率的かつ効果的に推進するため、プロジェクト推進会議を適宜開催し、参画各機関の連携・調整を実施する。具体的には、プロジェクト全体の管理・調整業務（会計・総務・連絡・調整等）、全サブテーマに共通的な課題の推進支援業務を行うとともに、本事業で得られた成果や知見についての広報普及・アウトリーチ活動の一環として少なくとも年1回の成果報告会もしくはシンポジウムを開催する。

2-2. 実施内容（成果）

(1) 共重合ポリマーへの有機不純物の吸着

分離膜の表面への不純物の吸着（ファウリング）による分離能の低下や人工血管への生体関連分子の吸着による生体適合性の低減など、ポリマー材料の吸着特性はその機能の発現や長寿命化と強く関連している。ポリマー界面への吸着能は、水素結合や排除体積効果のような分子間相互作用によって規定されるため、全原子モデルを用いた解析を行うことが望ましい。そこで、共重合体や長鎖分岐系のような複合的なポリマー系における有機不純物の吸着挙動を分子動力学 (MD) シミュレーションによって全原子レベルで解析した。ポリマーの界面系は、構造の不均一性（凹凸）や多様性が高く緩和が遅いため、アニーリングを行なった後に10~100 ナノ秒オーダーのMDを数十本走らせて平均を取る方が、マイクロ秒オーダーの長時間MDを行うよりも再現性良く計算結果が得られることを、多様なポリマー系に対して示した。初期配置を変えたパラメータ並列による計算が、計算資源の効率的利用につながることを意味する。

無機界面にポリマーをグラフトしたブラシ系における吸着挙動の全原子解析を行った。有機分子の吸着性は、ポリマー種の疎水性/親水性と相関することが多いが、ブラシ系の場合、グラフト密度（単位面積あたりの鎖の数）によって機能を調整することができる。そこで、図1に示す通り、poly(2-hydroxyethyl methacrylate) (PHEMA) をポリマー、グラフェンを基板、そして、イソブタン、プロピオンアミド、および、プロピオン酸イオンを吸着分子としてグラフト密度依存性の解析を行った。これらの吸着分子は、ロイシン、グルタミン、および、グルタミン酸のアミノ酸側鎖アナログに相当する。

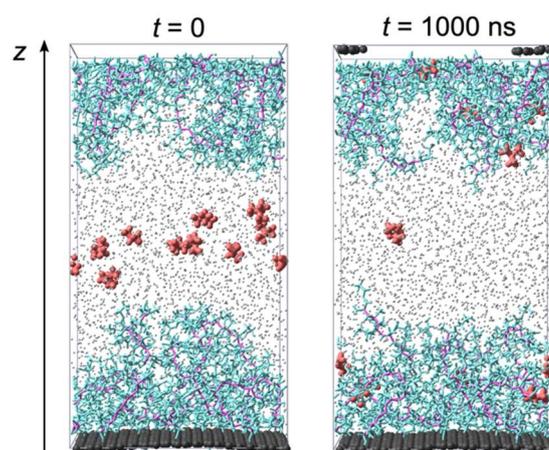


図1. ポリマーブラシへの吸着のMDシミュレーション。基板であるグラフェンの炭素原子を黒、吸着分子であるイソブタンを赤、PHEMAの主鎖と側鎖をそれぞれ紫とシアンで示す。灰色の点は水分子である。図の縦方向をz軸とし、時間tが初期(t=0)および1000 nsのときのスナップショットを図示している。

プロピオン酸イオンは、水溶液中で水とのクーロン相互作用によって強く安定化されるため、グラフェンにも PHEMA にも吸着せずに水溶液中を好む。一方、中性のプロピオンアミドは、グラフェンに吸着したが PHEMA とは弱い引力しか持たず、吸着量はグラフト密度に対して単調に減少した。そして、疎水性のイソブタンは、グラフェンとも PHEMA とも強い van der Waals 相互作用を行い、その吸着量はグラフト密度に対して非単調であった（最初に増加し、その後、減少）。吸着部位や相互作用を解析したところ、基板とポリマー鎖が吸着分子に同時に van der Waals 引力を及ぼすことが非単調なグラフト密度依存性の原因であることが分かった。この機構は、ポリマー鎖との引力だけが考慮された従来の一般的な解釈とは異なっている。これまでの実験研究が吸着分子とポリマー分子の引力相互作用を過大評価していた可能性を示唆する。

(2) セルロース誘導体への水、ガス、および、有機成分の吸収

セルロースは、環境に配慮した材料設計に有用なバイオ由来のポリマーである。置換基の種類によって多様な物性が発現するとともに、アモルファスや結晶といった集合様態によっても異種分子との相互作用は変化する。そこで、アモルファスおよび結晶の状態における小分子の吸収自由エネルギーを計算した。吸収自由エネルギーの計算は全原子モデルで行い、小分子を溶質、ポリマーを溶媒とみなすことで、エネルギー表示溶液理論を用いて吸収自由エネルギーを溶媒和自由エネルギーとして計算した。また、吸収自由エネルギーを溶質-溶媒間の静電相互作用や van der Waals 相互作用、排除体積効果などに分割し、小分子の種類によらず排除体積効果が集合様態の効果に寄与することを見出した。

平衡吸収量は吸収自由エネルギーで決まるが、平衡に至る時間スケールの決定には拡散係数の寄与が大きい。そこで、拡散係数の高速計算手法の開発を行った。しかし、ポリマー媒体に吸収された水の拡散係数を求めるには、数十 ns 以上の長時間 MD を数十本流すことが必要となる。そこで、大規模並列機が得意とする多量の短時間 MD から時間発展の確率モデルを敵対的生成ネットワーク (GAN) によって生成し長時間 MD 無しで拡散挙動を予測する手法である MD-GAN を、疎水性/親水性を広く変えたポリマー系に適用しその妥当性を検証した。

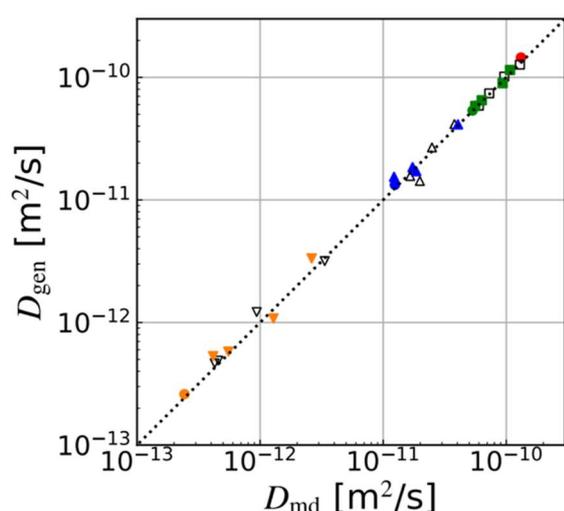


図 2. 疎水性から親水性まで幅広い種類のポリマー（含、共重合体）中における水の拡散係数。横軸が長時間 MD から求めた拡散係数であり、縦軸が MD-GAN によって予測された拡散係数。対角の点線は、長時間 MD と MD-GAN での値が一致する場合である。ポリマーの種類によって拡散係数は 3 桁変わっており、広い領域に渡って良い一致が見られている。

確率モデルを構成する短時間 MD の長さは、水との相互作用が引力的なポリマーほど長いことが分かった。水の溶解自由エネルギーがより負となっているポリマー種では、拡散係数もより小さいことが見出されており、拡散が遅いほど短時間 MD の データを長く用意する必要があることを意味する。このことは、拡散挙動に至るまでの時間スケールと関係している。拡散係数は、平均自乗変位 (MSD) が時間 t に対して線形となる長時間の領域における MSD の t に対する傾きから算出される。しかし、短時間領域では MSD は t に比例せず、比例関係に遷移するまでの「待ち時間」が存在する。そして、一般に、拡散が遅いほど「待ち時間」も長い。MD-GAN では、その入力とする MD データに MSD が線形に遷移する情報が含まれている必要があり、そのため、拡散が遅い場合には、短時間 MD の データも長くなる。図 2 に MD-GAN による拡散係数の予測結果を長時間 MD の結果と比較する。全ての対象について MD-GAN と長時間 MD の一致は良い。様々なポリマー中における水の拡散の予測に成功したとあって良い。

(3) 樹脂／無機接着界面の水分子による劣化

面接着は応力緩和や剛性など多くの点で優れているが、環境からの水分により接着力が次第に低下する現象が問題となっている。本研究では、接着力の低下現象の原因が、特定の官能基や基板表面部位と水分との間でプロトン化あるいは脱プロトン化が生じ、そこを起点として化学ボンドの破壊のバリアエネルギーが低下することにあるとする視点に立って、シミュレーションによる検証を進めた。一般に、接着界面が破壊される際には、界面領域に対して引っ張り応力やずり応力が印加される。これまでに、アルミニウムやシリカに対して標準的に用いられる接着剤であるアミン硬化型エポキシ樹脂の分子モデルを扱い、そのアミン基が応力を印加されていない状況で水分によりプロトン化することを、vertical energy gap (VEG) 法を用いた DFT-MD シミュレーションによる対象部位のプロトン化自由エネルギーの計算により示した。この際に用いた VEG 法は、特に応力印加された部位に対して計算が不安定になる問題がある。そこで、応力が印加された状況でも、対象部位のプロトン化自由エネルギーを安定して計算できる新しい DFT-MD シミュレーション法 (H^+ -shift 法) を開発した。次いで、様々な応力を印加したアミン硬化型エポキシ樹脂の分子モデルに H^+ -shift 法を適用した DFT-MD シミュレーションを実施した。その結果、アミン基は引っ張り応力により更にプロトン化しやすくなること、逆に、圧縮応力によってプロトン化しにくくなることを明らかにした。これらのことから、エポキシ接着剤は、引っ張られるとアミン基のプロトン化が進み、プロトン化したアミン基の近傍で化学ボンドの切断バリアエネルギーが下がることを経て破壊が促進されると説明する機構を提案した。

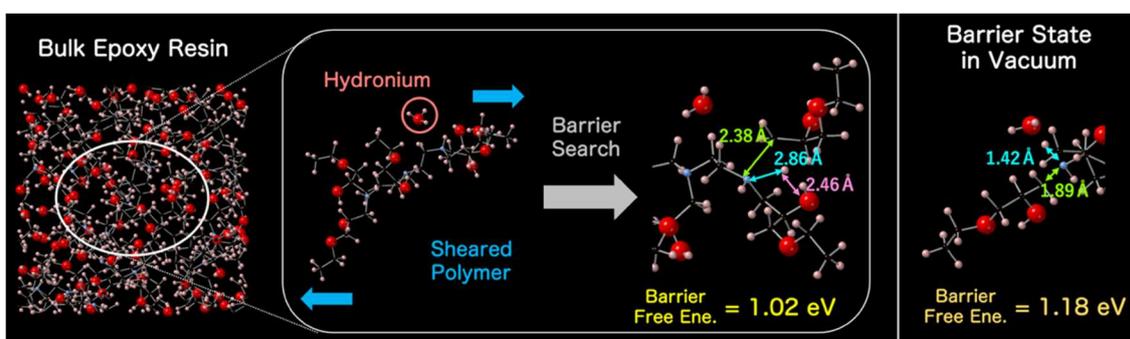


図 3. ずり応力を印加された硬化エポキシ樹脂に水分が侵入した状況の DFT-MD シミュレーション。水分に含まれる H_3O^+ が、プロトン化したアミン基に近づく際には、 1 eV 程度の低いバリア自由エネルギーで、N-C ボンドが切断した。

実際のエポキシ樹脂内では、硬化剤と架橋したエポキシ分子群が複雑に絡まっている。この絡まった硬化エポキシ分子群をモデル化し、これまでに開発したマクロな変形付与法である粗視化粒子変形法を適用することで、ずり応力を印加した硬化エポキシ樹脂を DFT-MD でシミュレートした。さらに、応力印加された硬化エポキシ樹脂に水分を導入した系に対して、ボンド長変化法を用いて化学ボンドの破壊過程を計算した。なお、前述の通り、アミン基はプロトン化している。計算の結果、水分に含まれる H_3O^+ がプロトン化したアミン基に近づく際には、(i) H_3O^+ から解離したプロトンがプロトン化したアミン基に付くプロセス、(ii) H_3O^+ から解離したプロトンがアミン基から 2 つ隣の C に着いている OH 基に付くプロセスを経て、どちらのプロセスでも 1 eV 程度の低いバリア自由エネルギーで N-C ボンドが切断することを見出した (図 3 参照)。

また、高分子微粒フィルムの力学特性を対象とし、その分子レベルからの解明を目指した。フィルムの力学的強度は、① 高分子微粒間貫入距離、および、② 微粒子 1 分子の強度が関係していることが実験から報告されている。①と②を支配している因子を明らかにするために、ガラス転移温度 (T_g) が異なるポリメチルアクリレート (PMA) とポリメチルメタクリレート (PMMA) の 2 種の高分子微粒子を対象に全原子モデルを用いた分子動力学計算を行った。

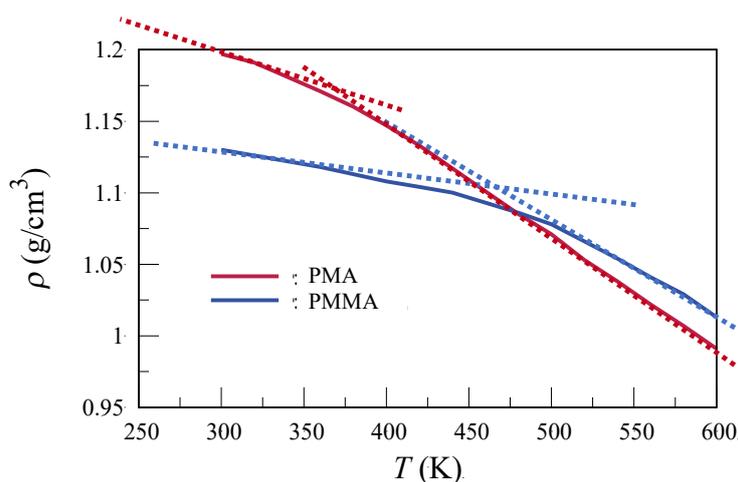


図 4. ポリメチルアクリレート (PMA) とポリメチルメタクリレート (PMMA) の各温度での密度。点線は高温領域と低温領域のフィッティング線。ガラス転移温度 (T_g) はフィッティング線の交わった点に対応する。

図 4 に 600 K から室温まで 20 K/20 ns の速度で高分子微粒を冷却したときの密度を示す。高温領域と低温領域を直線でフィッティングし交わった点が T_g である。図 4 より、PMMA と PMA の T_g は、それぞれ、470 K と 370 K であり、PMA の T_g が PMMA の T_g より低いことが分かる。この結果は実験と符合している。次に、PMA の T_g 以上、PMMA の T_g 以下である 450 K において、PMA および PMMA の 10 量体の貫入自由エネルギープロファイルを計算した (図 5)。PMMA は T_g 以下であるため分子が貫入できない一方で、PMA は密度の低い $r = 8$ nm 領域で最も安定であることが明らかになった。内部でも安定であることも見出され、PMA は互いに貫入しやすいことが示された。

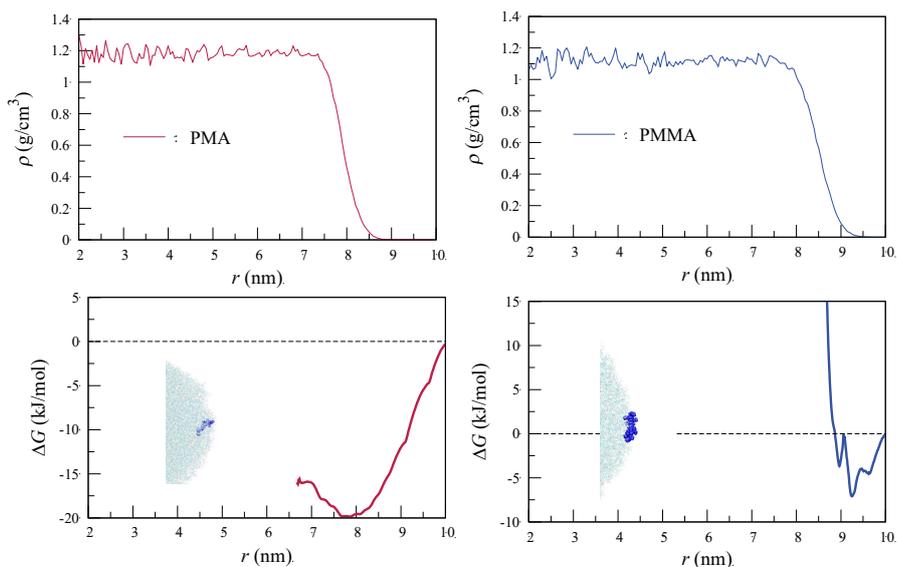


図 5. PMA (左) と PMMA (右) 微粒子の動径密度プロフィール (上段) と 10 量体の貫入自由エネルギープロフィール (下段)。

(4) プロジェクトの全体推進

本プロジェクトの研究を効率的かつ効果的に推進するために、各参画大学の責任者である松林、尾形、泰岡、石山、藤本をメンバーとするプロジェクト推進会議を適宜開催した。サブテーマ「共重合ポリマーへの有機不純物の吸着」は界面特性を主題としており、松林と石山が中心となって他の 3 名が適宜参画する会議を行った。サブテーマ「セルロース誘導体への水、ガス、および、有機成分の吸収」はバイオ由来材料における溶解と拡散が主たる検討対象であり、松林と泰岡が中心となって他の 3 名が適宜参画する形とした。また、サブテーマ「樹脂/無機接着界面の水分子による劣化」では、ポリマー界面の動的特性が主題であり、尾形、石山、藤本を中心として界面の解析に関する議論を行った。3つの全ての場合において、Dropbox のようなファイル共有サービスを用いて、計算設定やデータの共有を図った。会議はオンラインとし、1ヶ月に2回程度の頻度で行った。ファイル共有サービスとオンライン会議システムを用いることで、モデリング手法や計算設定の詳細、さらに、計算結果の解釈とそれに基づいた展開に関わる議論を、各テーマの進展に沿ってリアルタイムで進めることができた。予算は、大阪大学で受け取った後、研究開発委託費として名古屋工業大学、慶應義塾大学、富山大学、および、名古屋大学のそれぞれに配分された。設備備品費や人件費、消耗品費、旅費、電子計算機使用料は各大学での管理とし、広報に関わる手続きは大阪大学で受け持った。材料系ワークショップを 2 回共催し、本研究課題と関連する産学の研究者と意見や情報を交換するとともに、高分子計算機科学研究会などでの講演会を行った。

2-3. 活動 (研究会の活動等)

各研究グループ間の打合わせや情報交換：オンラインにて、月 2 回程度、全部で 23 回

材料系ワークショップの共催 (2 回)：10 月 26 日および 2 月 16 日

高分子計算機科学研究会講座：7 月 29 日

高分子若手研究会：7 月 9 日

マルチスケールマテリアルモデリングシンポジウム：5月29, 30日

成果創出加速プログラムシンポジウム「富岳百景」：12月21日

成果創出加速プログラム研究交流会「富岳百景」：3月7, 8日

2-4. 実施体制

業務項目	担当機関	担当責任者
(1) 共重合ポリマーへの有機不純物の吸着	〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町 1-3 国立大学法人 大阪大学	松林 伸幸 (大阪大学)
	〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉 3-14-1 学校法人慶應義塾 慶應義塾大学	泰岡 顕治 (慶應義塾大学)
	〒930-8555 富山県富山市五福3190 国立大学法人 富山大学	石山 達也 (富山大学)
	〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学	藤本 和士 (名古屋大学)
(2) セルロース誘導体への水、ガス、および、有機成分の吸収	〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町 1-3 国立大学法人 大阪大学	松林 伸幸 (大阪大学)
	〒466-8555 愛知県名古屋市昭和区御器所町 国立大学法人 名古屋工業大学	尾形 修司 (名古屋工業大学)
	〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉3-14-1 学校法人慶應義塾 慶應義塾大学	泰岡 顕治 (慶應義塾大学)
(3) 樹脂／無機接着界面の水分子による劣化	〒466-8555 愛知県名古屋市昭和区御器所町 国立大学法人 名古屋工業大学	尾形 修司 (名古屋工業大学)
	〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町 1-3 国立大学法人 大阪大学	松林 伸幸 (大阪大学)
	〒930-8555 富山県富山市五福3190	石山 達也 (富山大学)

	国立大学法人 富山大学 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉3-14-1 学校法人慶應義塾 慶應義塾大学	藤本 和士 (名古屋大学) 泰岡 顕治 (慶應義塾大学)
(4) プロジェクトの全体推進	〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町 1-3 国立大学法人 大阪大学	松林 伸幸 (大阪大学)

別添1 学会等発表実績

【原著論文および総説】

- [1] Nobuhiro Yasoshima, Tatsuya Ishiyama, Nobuyuki Matubayasi, Adsorption Energetics of Amino Acid Analogs on Polymer/Water Interfaces Studied by All-Atom Molecular Dynamics Simulation and a Theory of Solutions, *J. Phys. Chem. B*, 126, 4389-4400 (2022). DOI: 10.1021/acs.jpccb.2c01297
- [2] Yoshiki Ishii, Nobuyuki Matubayasi, Hitoshi Washizu, Nonpolarizable Force Fields through the Self-Consistent Modeling Scheme with MD and DFT Methods: From Ionic Liquids to Self-Assembled Ionic Liquid Crystals, *J. Phys. Chem. B*, 126, 4611-4622 (2022). DOI: 10.1021/acs.jpccb.2c02782
- [3] Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Surface Area Estimation: Replacing the Brunauer-Emmett-Teller Model with the Statistical Thermodynamic Fluctuation Theory, *Langmuir*, 38, 7989-8002 (2022). DOI: 10.1021/acs.langmuir.2c00753
- [4] Senri Tanaka, Naoki Yamamoto, Kento Kasahara, Yoshiki Ishii, Nobuyuki Matubayasi, Crystal Growth of Urea and Its Modulation by Additives as Analyzed by All-Atom MD Simulation and Solution Theory, *J. Phys. Chem. B*, 126, 5274-5290 (2022). DOI: 10.1021/acs.jpccb.2c01764
- [5] Kento Kasahara, Ren Masayama, Yuya Matsubara, Nobuyuki Matubayasi, Constructing a Memory Kernel of the Returning Probability to Efficiently Describe Molecular Binding Processes, *Chem. Lett.*, 51, 823-827 (2022). DOI: 10.1246/cl.220236
- [6] Takuma Yagasaki, Nobuyuki Matubayasi, Molecular dynamics study of the interactions between a hydrophilic polymer brush on graphene and amino acid side chain analogues in water, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 24, 22877-22888 (2022). DOI: 10.1039/d2cp03112d
- [7] Olivia P. L. Dalby, Steven Abbott, Nobuyuki Matubayasi, Seishi Shimizu, Cooperative Sorption on Heterogeneous Surfaces, *Langmuir*, 38, 13084-13092 (2022). DOI: 10.1021/acs.langmuir.2c01750
- [8] Kazuya Okita, Kento Kasahara, Nobuyuki Matubayasi, Diffusion theory of molecular liquids in the energy representation and application to solvation dynamics, *J. Chem. Phys.*, 157, 244505 (14 pages) (2022). DOI: 10.1063/5.0125432
- [9] Shuji Ogata, Masayuki Uranagase, Yusuke Takahashi, and Tomoya Kishi, Protonation and weakening of an epoxy resin-SiO₂ composite with silane coupling agents under moist conditions, *MRS Commun*, 12 315-321(2022). DOI: 10.1557/s43579-022-00178-5
- [10] Ryo Kawada, Katsuhiro Endo, Daisuke Yuhara, Kenji Yasuoka, MD-GAN with multi-particle input: the machine learning of long-time molecular behavior from short-time MD data, *Soft Matter*, 18, 8446-8455(2022). DOI: 10.1039/D2SM00852A
- [11] Masanori Ishiyama, Kenji Yasuoka, Makoto Asai, Impact of free energy of polymers on polymorphism of polymer-grafted nanoparticles, *Soft Matter*, 18, 6318-6325(2022). DOI: 10.1039/D2SM00311B

- [12] Akie Kowaguchi, Katsuhiko Endo, Paul E. Brumby, Kentaro Nomura, Kenji Yasuoka, Optimal Replica-Exchange Molecular Simulations in Combination with Evolution Strategies, *J. Chem. Inf. Model.*, 62, 6544–6552 (2022). DOI: 10.1021/acs.jcim.2c00608
- [13] Ikki Yasuda, Katsuhiko Endo, Eiji Yamamoto, Yoshinori Hirano, Kenji Yasuoka, Differences in ligand-induced protein dynamics extracted from an unsupervised deep learning approach correlate with protein-ligand binding affinities, *Communications Biology*, 5, 481 (2022). (9 pages.) DOI: 10.1038/s42003-022-03416-7
- [14] Tatsuya Ishiyama, Tahei Tahara, and Akihiro Morita, Why the Photochemical Reaction of Phenol Becomes Ultrafast at the Air-Water Interface: the Effect of Surface Hydration, *J. Am. Chem. Soc.*, 144, 6321–6325 (2022) DOI: <https://doi.org/10.1021/jacs.1c13336>
- [15] Makoto Suzuki, Akira Tsuchiko, Yoshiyuki Tanaka, Nobuyuki Matubayasi, George Mogami, Nobuyuki Uozumi, Satoshi Takahashi, Hyper-mobile Water and Raman 2900 cm⁻¹ Peak Band of Water Observed around Backbone Phosphates of Double Stranded DNA by High-Resolution Spectroscopies and MD Structural Feature Analysis of Water, *J. Phys. Chem. B*, 127, 285–299 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.2c06952
- [16] Himadri S. Sarkar, Takato Mashita, Toshiyuki Kowada, Satoshi Hamaguchi, Toshizo Sato, Kento Kasahara, Nobuyuki Matubayasi, Toshitaka Matsui, and Shin Mizukami, Arylazopyrazole-Based Photoswitchable Inhibitors Selective for Escherichia coli Dihydrofolate Reductase, *ACS Chem. Biol.*, 18, 340–346 (2023). DOI: 10.1021/acscchembio.2c00749
- [17] Ryo Kawada, Katsuhiko Endo, Kenji Yasuoka, Hidekazu Kojima, Nobuyuki Matubayasi, Prediction of Water Diffusion in Wide Varieties of Polymers with All-Atom Molecular Dynamics Simulations and Deep Generative Models, *J. Chem. Inf. Model.*, 63, 76–86 (2023). DOI: 10.1021/acs.jcim.2c01316
- [18] Kokoro Shikata, Takuma Kikutsuji, Nobuhiro Yasoshima, Kang Kim, Nobuyuki Matubayasi, Revealing the hidden dynamics of confined water in acrylate polymers: Insights from hydrogen-bond lifetime analysis, *J. Chem. Phys.*, 158, 174901 (2023). DOI: 10.1063/5.0148753
- [19] Seishi Shimizu and Nobuyuki Matubayasi, Understanding Sorption Mechanisms Directly from Isotherms, *Langmuir*, 39, 6113–6125 (2023). DOI: 10.1021/acs.langmuir.3c00256
- [20] Kazuo Yamada and Nobuyuki Matubayasi, Chain-Increment Approach to the Mutual Miscibility of Polymers with All-Atom Molecular Simulation, *Macromolecules*, 56, in press (2023). DOI: 10.1021/acs.macromol.2c02304
- [21] Sota Hayashi, Naoki Uemura, Masayuki Uranagase, and Shuji Ogata, Pressure-assisted decomposition of tricresyl phosphate on amorphous FeO using hybrid QM-CL simulations, *J. Comput. Chem.*, 44, 766–776 (2023). DOI: 10.1002/jcc.27039

- [22] Shuji Ogata and Masayuki Uranagase, Protonation of Strained Epoxy Resin Under Wet Conditions via First-Principles Calculations using the H⁺-shift Method, *J. Phys. Chem. B*, 127, 2629-2638 (2023). DOI: 10.1021/acs.jpcc.3c00401
- [23] Yuta Miura, Yo-ichi Yamamoto, Shutaro Karashima, Natsumi Orimo, Ayano Hara, Kanae Fukuoka, Tatsuya Ishiyama, and Toshinori Suzuki, Formation of Long-Lived Dark States during Electronic Relaxation of Pyrimidine Nucleobases Studied Using Extreme Ultraviolet Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy, *J. Am. Chem. Soc.*, 145, 3369-3381 (2023) DOI: <https://doi.org/10.1021/jacs.2c09803>

【学会発表】

- [1] 松林 伸幸、溶媒和論の普遍化に基づくソフト分子集合系における物質分配機能の全原子解析、ST-CRDS 俯瞰ワークショップ ナノテクノロジー材料分野 区分別分科会 新しい計算物質科学の潮流、2022年4月、TKP市ヶ谷カンファレンスセンター
- [2] 矢ヶ崎 琢磨、松林 伸幸、分子動力学シミュレーションによるポリマーブラシの防汚機構の研究、ダイセル 第9回リサーチセンター研究報告会、2022年4月、オンライン開催
- [3] 四方 志、菊辻 卓真、八十島 亘宏、金 鋼、松林 伸幸、分子動力学シミュレーションによるアクリレートポリマー中の水分子挙動に関する解析、第24回理論化学討論会、2022年5月、金沢商工会議所（金沢市尾山町）
- [4] 向江 謙心、小嶋 秀和、松林 伸幸、小分子のポリマーに対する溶解のMD解析、第24回理論化学討論会、2022年5月、金沢商工会議所（金沢市尾山町）
- [5] 松林 伸幸、ポリマー系における溶解と相溶性の「富岳」による全原子解析、第26回高分子計算機科学研究会講座、2022年7月、オンライン開催
- [6] 石山 達也、生体適合性を有する高分子界面の分子構造研究、旭硝子財団 助成研究発表会、2022年7月、オンライン開催
- [7] Shuji Ogata, Masayuki Uranagase, How Protonation and Deprotonation Affect Weakening of Epoxy Resin and Silane Coupling: First-Principles Simulation Based on Free Energy Calculation, BCS-AMC2022, 2022年8月、オンライン開催
- [8] 小嶋 秀和、松林 伸幸、分子シミュレーションによる共重合体膜中の結晶化の透過性への影響に関する自由エネルギー解析、第71回高分子討論会、2022年9月、北海道大学（札幌市北区）
- [9] 後藤 頌太、金 鋼、松林 伸幸、環状高分子の拡散における動的不均一性、第71回高分子討論会、2022年9月、北海道大学（札幌市北区）
- [10] 川田 稜、遠藤 克浩、泰岡 顕治、小嶋 秀和、松林 伸幸 機械学習を用いた高分子中の水の拡散予測、第71回高分子討論会、2022年9月、北海道大学（札幌市北区）
- [11] 川田稜、遠藤克浩、湯原大輔、泰岡顕治、MD-GANによるポリエチレンの拡散予測—複数粒子情報の入力による学習効率化—、第71回高分子討論会、2022年9月、北海道大学（札幌市北区）
- [12] 吉田昌太郎、藤本和士、分子動力学法による高分子微粒子の物性評価 1、第71回高分子討論会、2022年9月、北海道大学（札幌市北区）

- [13] 吉田昌太郎、藤本和士、大槻主税、分子動力学法による高分子微粒子の物性評価 2、第 71 回高分子討論会、2022 年 9 月、北海道大学（札幌市北区）
- [14] 四方 志、菊辻 卓真、八十島 亘宏、金 鋼、松林 伸幸、アクリレートポリマーにおける結合水の水素結合による分類方法の提案、第 16 回分子科学討論会 2022 横浜、2022 年 9 月、慶應義塾大学（横浜市港北区）
- [15] 川田 稜、遠藤 克浩、泰岡 顕治、小嶋 秀和、松林 伸幸、MD-GAN による高分子膜中の水の拡散予測、第 16 回分子科学討論会 2022 横浜、2022 年 9 月、慶應義塾大学（横浜市港北区）
- [16] 京田奈津実、石山達也、高分子表面のからみあい構造に関する分子シミュレーション研究、第 16 回分子科学討論会、2022 年 9 月、慶應義塾大学（神奈川県横浜市）
- [17] 中村友香、石山達也、セルロースのポテンシャルパラメータ開発を目指した分子シミュレーション研究、第 16 回分子科学討論会、2022 年 9 月、慶應義塾大学（神奈川県横浜市）
- [18] 廣瀬真由、石山達也、分子動力学シミュレーションによる アルコール水溶液表面における分子構造の解明、第 16 回分子科学討論会、2022 年 9 月、慶應義塾大学（神奈川県横浜市）
- [19] Shuji Ogata, Masayuki Uranagase, Moisture-Induced Weakening of Adhesion Bonding: First-principles Calculations of Protonation Free-Energy and Bond-Breaking Barrier Energy, PCM2022, 2022 年 9 月、オンライン開催
- [20] 松林 伸幸、環境適合型機能性化学品、第 9 回「富岳」を中核とする HPCI システム利用研究課題 成果報告会、2022 年 10 月、オンライン開催
- [21] 尾形 修司、高速なシミュレーションによる金属と有機液体との化学反応、第 9 回「富岳」を中核とする HPCI システム利用研究課題 成果報告会、2022 年 10 月、オンライン開催
- [22] 洲上 唯一、石倉 有梨、矢原 和幸、松林 伸幸、原子型分子動力学計算によるゴム系粘着剤と粘着剤付与剤のバルク及び界面における親和性評価、第 9 回「富岳」を中核とする HPCI システム利用研究課題 成果報告会、2022 年 10 月、オンライン開催
- [23] 四方 志、菊辻 卓真、八十島 亘宏、金 鋼、松林 伸幸、アクリレートポリマーにおける結合水の水素結合による分類方法の提案、第 44 回溶液化学シンポジウム、2022 年 10 月、鹿児島大学（鹿児島市郡元 1 丁目）
- [24] 石山 達也、分子シミュレーションが明かす複雑界面の構造とダイナミクス、CSJ 化学フェスタ、2022 年 10 月、タワーホール船堀（東京都江戸川区）
- [25] 山田 一雄、松林 伸幸、chain-increment 法を用いた二成分高分子溶融系の相溶／非相溶性判定のための自由エネルギー計算、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [26] 小嶋 秀和、松林 伸幸、重合体高分子の結晶化の分子吸収性への影響についての自由エネルギー解析、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [27] 八十島 亘宏、松林 伸幸、ポリマー/水界面に吸着するペプチドのエネルギー論的研究、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [28] 後藤 頌太、金 鋼、松林 伸幸、環状高分子溶融体の拡散における動的不均一性、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）

- [29] 坂本 充優、小嶋 秀和、矢ヶ崎 琢磨、松林 伸幸、相転移点の上下における液晶高分子の全原子 MD 解析、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [30] 向井 陵、山田 一雄、松林 伸幸、分子動力学シミュレーションを用いた 2 成分ハイドロゲルの全原子解析、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [31] 四方 志、菊辻 卓真、八十島 亘宏、金 鋼、松林 伸幸、高分子官能基に影響を受けた水分子ダイナミクスに関する分類方法の提案、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [32] 向江 謙心、小嶋 秀和、松林 伸幸、ポリマーに対する小分子の溶解の MD 解析、第 36 回分子シミュレーション討論会、第 36 回分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [33] 尾形 修司、浦長瀬 正幸、プロトン化自由エネルギーの第一原理計算とエポキシ系接着剤の水分弱化予測、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [34] 浦長瀬 正幸、尾形 修司、第一原理計算を用いた力学的変形によるエポキシ樹脂破壊の pH 依存性の評価、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [35] 生田 凌也、尾形 修司、浦長瀬 正幸、柴田 哲男、住井 裕司、DFT-MD シミュレーションによる不凍効果を示す分子のプロトン化起因メカニズム、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [36] 京田奈津実、石山達也、高分子表面のからみあい構造に関する分子シミュレーション研究、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [37] 中村友香、石山達也、セルロースのポテンシャルパラメータ開発を目指した分子シミュレーション研究、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [38] 廣瀬真由、石山達也、アルコール水溶液表面における分子構造の解明、第 36 回 分子シミュレーション討論会、2022 年 12 月、東京工業大学（東京都目黒区）
- [39] 松林 伸幸、ポリペプチドの溶解性の解析と共溶媒を用いた溶解性の制御、データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト「バイオ・高分子ビッグデータ駆動による完全循環型バイオアダプティブ材料の創出」拠点事業 セミナー（理論計算 G）、2022 年 12 月、オンライン開催
- [40] 松林 伸幸、環境適合型機能性化学品、第 2 回 スーパーコンピュータ「富岳」 成果創出加速プログラム シンポジウム「富岳百景」、2022 年 12 月、オンライン開催
- [41] 四方 志、菊辻 卓真、八十島 亘宏、金 鋼、松林 伸幸、血液適合性高分子が影響を与える水分子の水素結合状態に対する MD 解析、化学工学会 第 88 年会、2023 年 3 月、東京農工大学（東京都小金井市）

- [42] Nobuyuki Matubayasi, Exploring diverse classes of solvation through endpoint density-functional for free energy, ACS SPRING 2023、2023年3月、Indiana Convention Center, Indianapolis, Indiana, USA
- [43] 尾形 修司、浦長瀬 正幸、歪んだアミン系硬化エポキシ樹脂の湿潤環境でのプロトン化自由エネルギーに関する第一原理計算、日本化学会第103春季年会、2023年3月、東京理科大（千葉県野田市）