

令和2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3年5月28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	2
2. 令和2年度（報告年度）の実施内容	2
2-1. 当該年度（令和2年度）の事業実施計画	2
2-2. 実施内容（成果）	2
(1) エチレン酢酸ビニル共重合体における水の溶解性	2
(2) アクリル材料と水の親和性	4
(3) 樹脂／無機界面への水分子の拡散	5
(4) プロジェクトの全体推進	7
2-3. 活動（研究会の活動等）	8
2-4. 実施体制	8
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、粘接着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、全原子レベルの分子動力学 (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 (Quantum Mechanics/Molecular Mechanics) 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2年度（報告年度）の実施内容

#### 2-1. 当該年度（令和2年度）の事業実施計画

##### (1) エチレン酢酸ビニル共重合体における水の溶解性

エチレン酢酸ビニル共重合体系における水の溶解性を共重合体の分子構造を網羅的に変えて解析し、共重合の微細構造が水との親和性に与える影響を全原子 MD シミュレーションと自由エネルギー計算で解明する。

##### (2) アクリル材料と水の親和性

アクリル系ポリマーを対象とし、側鎖の炭化水素長や置換基を変えて水との親和性を規定する相互作用成分を探索する。ポリマーの構造探索ではその幅を広げるために、逐次伸長法を用いた混合自由エネルギーの全原子計算から相溶性判定を行う。

##### (3) 樹脂/無機界面への水分子の拡散

Al/エポキシ系樹脂および SiO<sub>2</sub>/フッ素系樹脂を対象とし、樹脂/金属界面近傍に侵入した水分子群の拡散を QM/MM 型のハイブリッドシミュレーションで解析することで、水分拡散度の界面からの距離依存性を明らかにする。

##### (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。

#### 2-2. 実施内容（成果）

##### (1) エチレン酢酸ビニル共重合体における水の溶解性

共重合体の全原子 MD シミュレーションは実施例が少なく、まず、どの程度の MD 計算によって信頼性の高い計算値が得られるかを検討した。その結果、緩和が遅く構造の不均一性・多様性が高いポリマーのアモルファス系では、マイクロ秒オーダーの MD を行うよりも 10 ナノ秒オーダーの MD を 10<sup>2</sup>オーダーの本数走らせて平均を取る方が収束値を早く得られることを見出した。この結果はホモポリマーでも共重合ポリマーでも成り立つ性質である。比較検討を行うべきポリマー構造はしばし

ば  $10^2$  個のオーダーであるため、 $10^4$  オーダーの本数のパラメータ並列による計算がもっとも効率が良いことを示す結果である。

エチレン-酢酸ビニル、エチレン-フッ化ビニリデン、エチレン-アクリルアミドの 3 種類の共重合体への水の溶解自由エネルギー  $\Delta G$  を全原子 MD とエネルギー表示溶液理論の融合手法を用いて解析した。フッ化ビニリデンは酢酸ビニルより疎水性が高く、アクリルアミドは親水性が高い。非エチレン部分の疎水性/親水性を変えて、エチレン-酢酸ビニル共重合体の解析に対する参照とするために、エチレン-フッ化ビニリデンやエチレン-アクリルアミドを検討に加えた。エチレン-酢酸ビニル共重合体の構造を図 1 に例示する。 $l$  がエチレン部、 $m$  が非エチレン (酢酸ビニル) 部の鎖長である。共重合体全体の混合比は  $l:m$  で決まり、重合の微細構造は  $l$  と  $m$  の個別の値で記述される。本研究では、3 種の共重合ポリマーの周期 (ブロック) 体とグラフト体のそれぞれについて、疎水性/親水性の制御のために  $l:m$  の値を 4 通りに変え、各  $l:m$  にて  $l$  と  $m$  の値を 4 通り検討した。

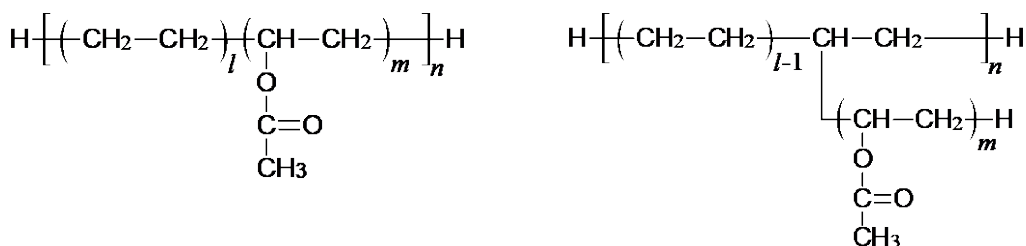


図 1 : エチレン-酢酸ビニル共重合体。左が周期 (ブロック) 共重合体であり、右がグラフト共重合体である。共重合体全体の混合比は  $l:m$  で決定され、重合の微細構造は  $l$  と  $m$  の個別の値で記述される。 $n$  は重合度である。

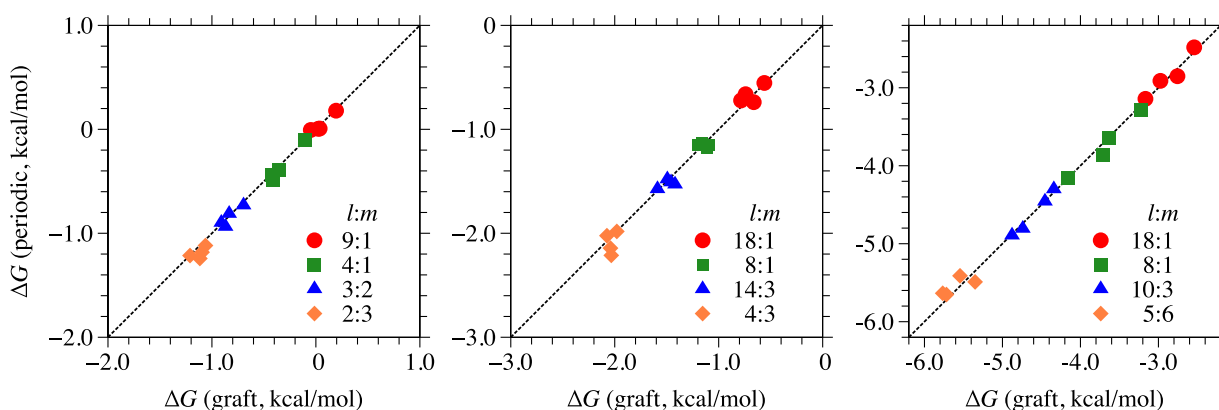


図 2 : エチレン-フッ化ビニリデン (左)、エチレン-酢酸ビニル (真ん中)、エチレン-アクリルアミド (右) の 3 種類の共重合体への水の溶解自由エネルギー  $\Delta G$ 。横軸をグラフト共重合体での  $\Delta G$ 、縦軸を周期 (ブロック) 共重合体での  $\Delta G$  として相関図の形でプロットし、 $l:m$  の値に応じてデータ点の色を変えている。各  $l:m$  では、右上のデータ ( $\Delta G$  の絶対値の小さいもの) ほど、 $l$  および  $m$  の値が小さい。

図 2 に、エチレン-フッ化ビニリデン、エチレン-酢酸ビニル、エチレン-アクリルアミドの 3

種類の共重合ポリマーに対する水の溶解自由エネルギー $\Delta G$ を示す。この図から、周期（ブロック）やグラフトといった大域トポロジーは溶解自由エネルギーに影響を与えないことが分かる。また、水の溶解性に最も強く影響を与える構造特性はエチレン部と非エチレン部の混合比であり、 $m$ が小さくなって非エチレン部が細切れになるほど共重合ポリマーの疎水性が向上する。つまり、 $\Delta G$ を規定する構造因子の重要度は、重合組成 > 微細構造 > 大域トポロジーの順序になっていることが分かった。また、ホモポリマー系（図1左で  $l = 0$  または  $m = 0$  とすることに相当）で、 $\Delta G$ の重合度  $n$  への依存性を解析した。その結果、共重合系で $\Delta G$ が  $l$  や  $m$  の個別の値に依存せず  $l:m$  だけで決まる ( $l, m$ ) の領域は、対応するホモポリマー系で $\Delta G$ が  $n$  に依存しなくなる  $n$  の領域には入っていることが見出された。

ポリマー媒質中における水の透過性は、その溶解性と拡散性の積で決定される。そこで、エチレン-フッ化ビニリデン、エチレン-酢酸ビニル、エチレン-アクリルアミドの共重合体、および、それらのモノマー単位からなる4種のホモポリマー、ポリエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリ酢酸ビニル、および、ポリアクリルアミドにおける水の拡散係数を解析した。ポリマーがアモルファス状態の固体であることを反映して、その中に溶解した水分子の拡散係数の計算にはポリマー種ごとにマイクロ秒オーダー以上の計算が必要となることが分かった。そこで、数ナノ秒オーダーの短時間MDによる多数のトラジェクトリを機械学習手法により処理することで数十ナノ秒以上の長時間のダイナミクス情報を抽出する手法を実装し、ポリエチレンの場合に、長時間MDでの結果と良い一致が得られることを見出した。

## (2) アクリル材料と水の親和性

アクリル系ポリマーは、粘接着剤や生体適合性材料として広く用いられており、機能発現の鍵を水との分子間相互作用が握っている。本研究では、含水高分子系における相互作用に着目して水との親和性を解析した。ポリ(アクリル酸 2-メトキシエチル) (PMEA) に対する水の浸透を全原子 MD で扱い、その妥当性を分光実験との連携によって解析した。含水高分子系における水和構造は、時間分解全反射赤外分光(ATR-IR)法によって捉えることができる。そこで、分子モデリングの成否を含水率の異なる PMEA 系の ATR-IR スペクトルの再現に定め、図3に示す通りのスペクトル計算を行った。図3では、 $3400\text{ cm}^{-1}$ 付近のピーク位置を赤点、 $3600\text{ cm}^{-1}$ 付近のピーク位置を青点で示している。実験スペクトルをみると、(i) PMEA を水に接触させてから 1.86 秒の段階では  $3600\text{ cm}^{-1}$  に最大ピークをもつスペクトルがみられ、(ii) 時間経過とともに  $3400\text{ cm}^{-1}$  のピーク成分が相対的に増大していく様子がわかる。また、(iii)  $3400\text{ cm}^{-1}$  のピーク成分は時間経過とともにレッドシフトしていく様子がわかる。一方、右図のシミュレーションでは、秒単位の浸透現象を MD シミュレーションで再現するのは現実的ではなく、初期構造から一定量の水を含ませた状態で飽和含水率近傍まで含水率を変化させて実験と比較している。シミュレーションの結果をみると、実験で観測された(i)~(iii)のスペクトルの特徴を再現できていることがわかる。実験とシミュレーションの相違点として  $3200\text{ cm}^{-1}$  辺りの成分が実験で観測されているが、これは、実験では  $\text{H}_2\text{O}$  を、シミュレーションでは  $\text{HD0}$  を用いており、実験において  $\text{H}_2\text{O}$  の変角振動( $\sim 1600\text{ cm}^{-1}$ )の倍音がフェルミ共鳴により  $3200\text{ cm}^{-1}$  に表れているためであり、本研究の目的である分子間相互作用の解析には影響を及ぼさない。つまり、本研究の分子モデリングは成功であり、分光実験を再現するレベルでアクリル系ポリマーと水の相互作用の

全原子解析が可能となっている。

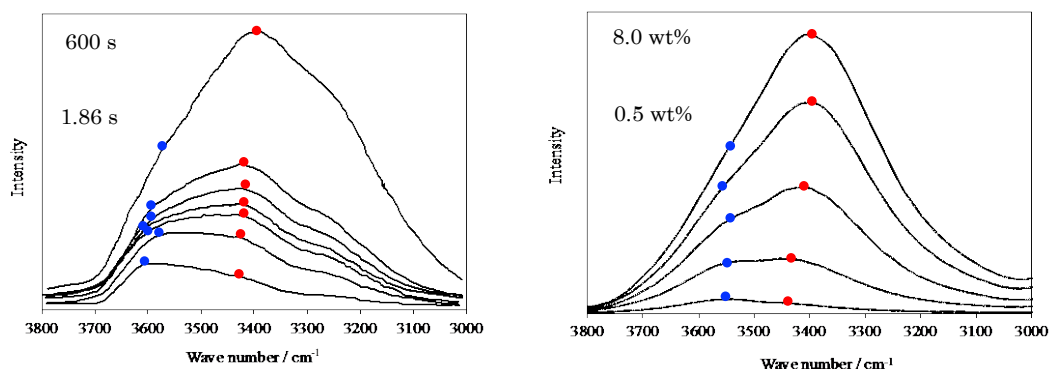


図 3: 含水(H<sub>2</sub>O)高分子系に対する ATR-IR スペクトルの実験結果(Morita et al., Langmuir (2007), 23, 3750) (左)、および、含水(HD0)高分子系に対する ATR-IR スペクトルの MD シミュレーション結果 (右)。3400cm<sup>-1</sup>付近のピーク位置を赤点, 3600 cm<sup>-1</sup>付近のピーク位置を青点で示す。

さらに、大変形状態における相互作用を解析するための基盤として、水に接触したポリメタクリル酸メチル(PMMA)、および、溶媒を変えた参照系としてメタノールに接触させた PMMA の破壊シミュレーションを行った。水分子に比べメタノールは降伏応力を大きく下げることが分かった。破壊することによりポイド(空隙)が PMMA 内に生成されていくが、水の場合と比べると、メタノールの侵入がポイドを安定化することで降伏応力を下げる。また、PMMA は脆性材料であるが、メタノールに接触させると延性的な応力歪曲線を示すことも分子レベルで明らかとなった。マクロで見ることのできない機械特性が分子レベルで発現することを示す結果であり、実験での観測とも定性的に一致することを確認できた。

### (3) 樹脂/無機界面への水分子の拡散

金属と樹脂との接着は湿潤環境で水分が侵入することで強度低下し破壊に至るが、破壊の過程は、接着剤内部での凝集破壊、接着剤と被着材との接触界面破壊、被着材破壊に大別されている。本年度は、水分による凝集破壊、および、接着剤内部と接触界面での水分の拡散に関して、実験状況との比較に留意しつつ、モデル系の構築およびシミュレーションを実施した。

湿潤環境に置かれたエポキシ樹脂をモデル化し、その凝集破壊を化学反応の観点から電子レベルで扱った。エポキシ分子は diglycidyl ether of bisphenol-A (DGEBA)、硬化剤は一般的な diethylene triamine (DETA) とし、5 個の DGEBA と 1 個の DETA とを架橋反応させることでエポキシ樹脂のモデルを作成した。エポキシ樹脂の官能基にはエーテル基とアミン基が含まれる。実験データから、エーテル基やアミン基が水分の存在下では弱くなる可能性が指摘されている。我々は、まず、H<sub>2</sub>O 分子が関与することで、エポキシ樹脂が破壊されやすくなるかどうかを、DFT 計算によって調べた。その結果、エポキシ樹脂に含まれる化学ボンド破壊のバリアエネルギーが、エーテル基では 2.86 eV から 2.30 eV に下がることが分かった。他方、アミン基では化学ボンド破壊のエネルギーは 2.30 eV のままで変化しなかった。しかし、H<sub>2</sub>O 分子が関与しても 2 eV 以上のバリアエネルギーが化学ボンドの破壊に必要とされることが示されており、本計算結果からは、実験で顕著なエポキシ樹脂の弱化を良く説

明できたとは言い難い。

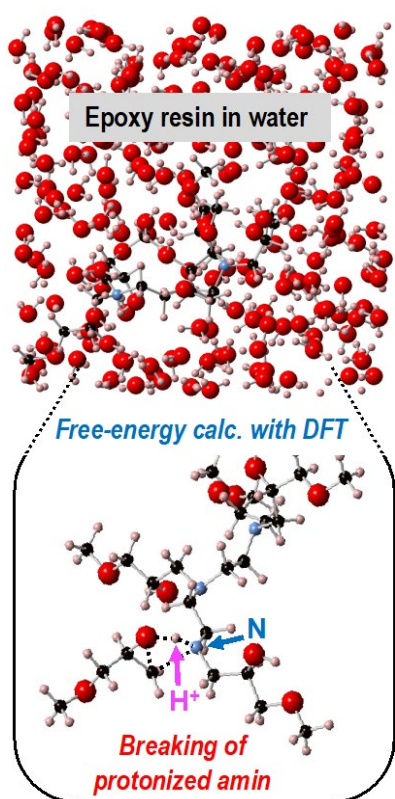


図4：水分に浸したエポキシ樹脂モデルを用い、その硬化剤に含まれている3級アミン基へのプロトン付着の有無を、DFTを用いた電子状態計算による熱力学積分で得た自由エネルギーで調べるシミュレーションの概念図。

そこで、共同研究者との最新の実験データを用いた議論により、エポキシ樹脂と水分との間でのプロトンが移動する可能性をシミュレーションで検討することにした。一般に、水分のpHに応じたプロトン化の状態は、エポキシ樹脂内部での水分拡散が大変遅いため実験測定が困難である。更に、これまで第一原理的な計算で検討されたこともない。我々は、水中に置いたエポキシ樹脂系とそこからプロトンを1個脱離した状態とを与えられた比率で混成したハミルトニアンを用いて原子系のダイナミックスをシミュレートし、各原子配置に対して電子数は同一でプロトンの有無による電子状態計算を二重に行なってそのエネルギー差を求め、更にそれを数千タイムステップほど時間平均した値を混成率に関して積分することで、プロトン脱離過程での自由エネルギー変化を第一原理から得る vertical energy-gap 法を使った (図4 参照)。DFT の計算エンジンとしては、我々がこれまで「富岳」用に最適化を進めてきた DC-RGDFT コードを用いた。計算の結果、エポキシ樹脂に含まれる3級アミン基にプロトンが1個付着している状態が、アミン基のエポキシ樹脂内での位置にも依存するが、中性の水 (pH=7) に浸した際に熱力学的に安定であることを発見した。アルカリ性の水に浸した際にはプロトン付着しない状態が安定であり、pH に依存する。さらに、そのエポキシ樹脂に含まれているアミン基へのプロトン付着により、アミン基のボンド破壊のバリアエネルギーが 2.30 eV から 1.94 eV へ大きく低下することを DFT による計算で見出した。このバリア低下の理由は、付着したプロトンが電子を少し引き寄せ、隣接した化学ボンドに寄与する電子が減少することである。

環境からの水分の侵入経路に関しては、QM/MM 型のハイブリッド法を用い、多数の水分子を侵入させた量子領域をエポキシ樹脂内部と、エポキシ樹脂と酸化被膜付 Al 金属との接触界面に計2個設

定し、水分子群の重心をあらかじめ設定した向きに少しずつ移動させることで、水分子が侵入しやすい経路を調べるシミュレーションを進めた（図5参照）。ここで、エポキシ樹脂のアミン基にはプロトンが付与していない。シミュレーションの結果、界面に平行な方向への水分子群の移動では、接触界面での方が、界面から離れた樹脂内部でよりも水分子が移動しにくいことを見出した。これは、水分子が接触部に比較的強く引き寄せられることを示唆する実験データと矛盾しない。水分のpHに依存したエポキシ樹脂のプロトン化状態を取り入れたシミュレーションの必要性を示している。

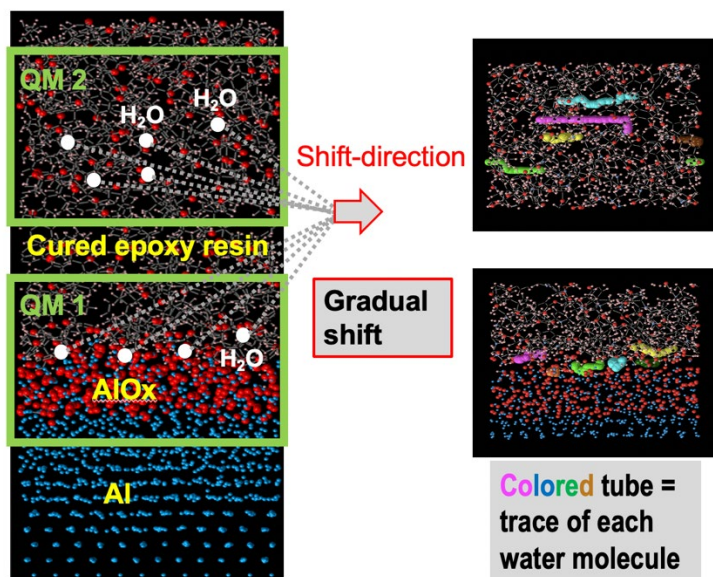


図5：QM/MM型のハイブリッドシミュレーションで得た、エポキシ樹脂と酸化被膜付 Al 金属との界面近傍での水分子群の拡散の様子。QM1 はエポキシ樹脂と酸化被膜付 Al 金属との接触界面。QM2 は、エポキシ樹脂内部に対応する。QM1 内での水分の拡散度は、QM2 内に比べて小さいことがわかる。

#### (4) プロジェクトの全体推進

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。特に、サブテーマ「エチレン酢酸ビニル共重合体における水の溶解性」で必要となった機械学習手法による拡散係数の推算では、松林と泰岡を主として他の3名が適宜参画する形で、オンラインの会議を行った。本年度は、拡散係数の推算に必要なデータのサイズが、1回当たり数十メガバイト程度であり、ファイル転送サービスを用いたデータの共有が可能であった。また、サブテーマ「アクリル材料と水の親和性」および「樹脂/無機界面への水分子の拡散」では、ポリマー界面のモデリングが必要である。モデリング技法の議論のために、尾形、石山、藤本を主とし他の2名が適宜参画する形でオンライン会議を行った。議論内容は主としてシミュレーションサイズなど計算設定に関わるものであり、データ共有も本年度はファイル転送サービスで可能であった。オンライン会議の頻度は平均すると1ヶ月に2回程度であり、オンライン会議システムおよびファイル転送サービスの機動性を活かすことで、計算設定の詳細や計算結果に関する解釈に関する議論を、各シミュレーションの進展に合わせてほぼリアルタイムで行うことができた。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、名古屋大学に配分され、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管理したが、広報に関わる費用および手続きは阪大で一括して受け持った。材料系ワークショップを2回共催し、本課題に関わる化学系・素材系の計算関連の研究者と直接の意見交換を



行なった。

### 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は、月2回程度のペースでオンラインにて行った。さらに、3月15日には大学から参画している各グループが集まった研究会を行った。プログラムは次の通りである。

松林 伸幸（大阪大学）：課題の全体概要と20年度活動のまとめ

松林 伸幸（大阪大学）：ポリマー系における溶解・吸着・相溶性の全原子解析

尾形 修司（名古屋工業大学）：hybridQMCLによるポリマー／金属接着界面の反応機構解析

泰岡 顕治（慶應義塾大学）：機械学習手法との融合によるMD計算の高速化とポリマー系への応用

石山 達也（富山大学）：ポリマー界面の構造モデリングと分光測定との連携

藤本 和士（名古屋大学）：超大規模全原子MDシミュレーションを用いたポリマー系の強度解析

参加者は松林、尾形、泰岡、石山、藤本であり、zoom会議とした。

### 2-4. 実施体制

業務項目	担当機関	担当責任者
(1) エチレン酢酸ビニル共重合体における水の溶解性	〒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) アクリル材料と水の親和性	〒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)
(3) 樹脂／無機界面への水分子の拡散	〒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 〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町 1-3 国立大学法人 大阪大学 〒930-8555 富山県富山市五福3190 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	尾形 修司 (名古屋工業大学)  松林 伸幸 (大阪大学)  石山 達也 (富山大学)  藤本 和士 (名古屋大学)
(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】

- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Thermodynamic stability condition can judge whether a nanoparticle dispersion can be considered a solution in a single phase, *J. Colloid Interface Sci.*, 575, 472-479 (2020). DOI: 10.1016/j.jcis.2020.04.101
- Bin W. Zhang, Nobuyuki Matubayasi, Ronald M. Levy, Cavity Particle in Aqueous Solution with a Hydrophobic Solute: Structure, Energetics, and Functionals, *J. Phys. Chem. B*, 124, 5220-5237 (2020). DOI: 10.1021/acs.jpcc.0c02721
- Yusuke Mori, Kei-ichi Okazaki, Toshifumi Mori, Kang Kim, Nobuyuki Matubayasi, Learning reaction coordinates via cross-entropy minimization: Application to alanine dipeptide, *J. Chem. Phys.*, 153, 054115 (8 pages) (2020). DOI: 10.1063/5.0009066
- Lukman Hakim, Yoshiki Ishii, Kazuhiko Matsumoto, Rika Hagiwara, Koji Ohara, Yasuhiro Umebayashi, Nobuyuki Matubayasi, Transport Properties of Ionic Liquid and Sodium Salt Mixtures for Sodium-Ion Battery Electrolytes from Molecular Dynamics Simulation with a Self-Consistent Atomic Charge Determination, *J. Phys. Chem. B*, 124, 7291-7305 (2020). DOI: 10.1021/acs.jpcc.0c04078
- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Intensive nature of fluctuations: Reconceptualizing Kirkwood-Buff theory via elementary algebra, *J. Mol. Liq.*, 318, 114225 (8 pages) (2020). DOI: 10.1016/j.molliq.2020.114225
- Sebastian Schöttl, Nobuyuki Matubayasi, Dominik Horinek, Solubilization Power of Surfactant-Free Microemulsions, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 22, 22185-22189 (2020). DOI: 10.1039/d0cp02933e
- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Fluctuation adsorption theory: quantifying adsorbate-adsorbate interaction and interfacial phase transition from an isotherm, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 22, 28304-28316 (2020). DOI: 10.1039/d0cp05122e
- Ronald M. Levy, Nobuyuki Matubayasi, Bin W. Zhang, Solvation Thermodynamics from the Perspective of Endpoints DFT, *J. Phys. Chem. B*, 124, 11771-11782 (2020). DOI: 10.1021/acs.jpcc.0c08988
- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Phase stability condition and liquid-liquid phase separation under mesoscale confinement, *Physica A*, 563, 125385 (13 pages) (2021). DOI: 10.1016/j.physa.2020.125385
- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Implicit function theorem and Jacobians in solvation and adsorption, *Physica A*, 570, 125801 (11 pages) (2021). DOI: 10.1016/j.physa.2021.125801
- Lukman Hakim, Yoshiki Ishii, Nobuyuki Matubayasi, Spatial-Decomposition Analysis of Electrical Conductivity in Mixtures of Ionic Liquid and Sodium Salt for Sodium-Ion Battery Electrolytes, *J. Phys. Chem. B*, 125, 3374-3385 (2021). DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c00372

- Seishi Shimizu, Nobuyuki Matubayasi, Cooperativity in micellar solubilization, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 23, 8705–8716 (2021). DOI: 10.1039/d0cp06479c
- T. Ishiyama, Existence of Weakly Interacting OH Bond at Air/Water Interface, *J. Chem. Phys.*, 152, 134703 (10 pages) (2020). DOI: <https://doi.org/10.1063/5.0038709>
- T. Iwahashi, T. Ishiyama, Y. Sakai, A. Morita, D. Kim, and Y. Ouchi, Bi-layering at Ionic Liquid Surfaces: A Sum-Frequency Generation Vibrational Spectroscopy- and Molecular Dynamics Simulation-based Study, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 22, 12565 (2020). DOI: <https://doi.org/10.1039/D1CP00171J>
- T. Ishiyama and K. Kitanaka, Asymmetric Hydrogen-Bonding Structure at Water/Ice Interface, *J. Phys. Chem. C*, 124, 23287–23294 (2020). DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c08173>
- T. Ishiyama, S. Takagi, T. Hirano, L. Wang, and A. Morita, Comment on 'Toward Unraveling the Puzzle of Sum Frequency Generation Spectra at Interface of Aqueous Methanol Solution: Effects of Concentration-Dependent Hyperpolarizability', *J. Phys. Chem. C*, 124, 25160–25162 (2020). DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c06234>
- T. Iwahashi, T. Ishiyama, Y. Sakai, A. Morita, D. Kim, and Y. Ouchi, Bi-layering at Ionic Liquid Surfaces: A Sum-Frequency Generation Vibrational Spectroscopy- and Molecular Dynamics Simulation-based Study, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 22, 12565–12576, (2020). DOI: <https://doi.org/10.1039/D0CP01219J>
- T. Ishiyama, Energy Relaxation Path of Excited Free OH Vibration at an Air/Water Interface Revealed by Nonequilibrium Ab Initio Molecular Dynamics Simulation, *J. Chem. Phys.*, 154, 104708 (15 pages) (2021). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.5144308>

#### 【学会発表】

- 山田 一雄、松林 伸幸：全原子分子シミュレーションを用いたポリマー相溶性計算のための Chain-increment 法の提案、日本物理学会 2020 年秋季大会、2020 年 9 月、オンライン開催
- 後藤 頌太、金 鋼、松林 伸幸：粗視化分子動力学シミュレーションを用いた環状および直鎖高分子メルトにおけるラウスモード解析、日本物理学会 2020 年秋季大会、2020 年 9 月、オンライン開催
- 竹本 健吾、石井 良樹、金 鋼、松林 伸幸：5CB 液晶のネマチック相転移における秩序化の分子動力学解析 日本物理学会 2020 年秋季大会、2020 年 9 月、オンライン開催
- 松林 伸幸：分子集合系における物質分配機能の MD と溶媒和理論による全原子解析 化学反応経路探索のニューフロンティア 2020、2020 年 9 月、オンライン開催
- 石井 良樹、松林 伸幸、渡辺 豪、加藤 隆史、鷺津 仁志：ナノチャネルを形成する自己組織化イオン液晶の全原子分子シミュレーション、第 69 回高分子討論会、2020 年 9 月、オンライン開催
- 石山 達也、アクリレート系高分子と水の相互作用に関するバルク、および界面の分子動力学シミュレーション研究、第 69 回 高分子討論会(招待講演)、2020 年 9 月、オンライン開催
- 藤本和士、石川博章、湯之也、岡崎進、全原子分子動力学計算による、ガラス状高分子の延伸及び圧縮破壊の分子論的研究、第 69 回高分子科学討論会、2020 年 9 月、オンライン開催

松林 伸幸：高分子系における溶解・吸着・相溶性・粘弾性の全原子解析、第 10 回材料系ワークショップ ～「富岳」時代の物質科学シミュレーションの新展開～、2020 年 10 月、オンライン開催

尾形修司：シミュレーションで観るアルミニウム表面-樹脂間の接着のダイナミクス、第 10 回 CSJ 化学フェスタ 2020、2020 年 10 月、オンライン開催

石井 良樹、松林 伸幸、渡辺 豪、加藤 隆史、鷺津 仁志：自己組織化イオン液晶の全原子分子シミュレーション：ナノチャネル構造と分子輸送解析、2020 年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー研究会合同討論会、2020 年 11 月、オンライン開催

後藤 頌太、水野 英如、金 鋼、松林 伸幸：直鎖状高分子と環状高分子のガラス状態における振動状態密度解析 2020 年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー研究会合同討論会、2020 年 11 月、オンライン開催

山田 一雄、松林 伸幸：chain-increment 法を用いたポリマーブレンド相溶性の全原子計算、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

小嶋 秀和、半田 和也、山田 一雄、松林 伸幸：セグメントの集合としてみる共重合体膜の吸水の自由エネルギー解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

石井 良樹、松林 伸幸、渡辺 豪、加藤 隆史、鷺津 仁志：自己組織化イオン液晶の全原子分子モデリング：1D および 3D ナノチャネルの分子輸送機能解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

八十島 亘宏、松林 伸幸：高分子／水界面に対するアミノ酸側鎖及び主鎖の吸着自由エネルギー解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

大隅 理佐、山田 一雄、松林 伸幸：PVA ハイドロゲルの MD シミュレーションを用いた分子レベル解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

阪口 敦哉、山田 一雄、松林 伸幸：疎水および親水ポリマーの微視的集合様態が吸水性に及ぼす影響の解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

後藤 頌太、水野 英如、金 鋼、松林 伸幸：環状高分子メルトの振動状態およびダイナミクスの粗視化分子動力学シミュレーションによる解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

竹本 健吾、石井 良樹、金 鋼、松林 伸幸：5CB 液晶のネマチック相転移における秩序化の分子動力学解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

北中一也、石山達也、水/氷界面における非対称性水素結合構造、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

三浦俊次、平塚将起、山本詠士、石山達也、泰岡頭治、カーボンナノチューブに閉じ込めた水分子の振動解析、第 34 回分子シミュレーション討論会、2020 年 12 月、オンライン開催

松林 伸幸：「富岳」によるポリマー集合系の全原子解析、日本水・蒸気性質協会 2020 年度・第 3 回全体会議、2021 年 1 月、オンライン開催

Shuji Ogata: Large-scale computer simulations about the stability and adhesion of metal-organic interfaces, Conf. Chem. & Nanosci., 2021 年 1 月、オンライン開催

尾形 修司、浦長瀬 正幸：ポリマー／金属接着界面の強度と劣化に関する第一原理的シミュレーション、RIST 第 11 回材料系ワークショップ、2021 年 2 月、オンライン開催

Shuji Ogata: Adhesion and stability of metal-organic interfaces: large-scale computer simulations, Advances in Materials, Physics and Chemistry Science, 2021年2月、オンライン開催

泰岡顕治、Acceleration and analysis of molecular dynamics simulation with machine learning, International Workshop on Machine Learning for Soft Matter 2021, 2021年2月、オンライン開催

藤本和士、全原子分子動力学法による衝撃破壊のマイクロ描像、20-2 高分子学会講演会 高分子材料による接着とその破壊 2021年2月、オンライン開催

山田 一雄、松林 伸幸：全原子モデル分子動力学計算によるポリマーブレンド相溶／非相溶性の解析、日本物理学会第76回年次大会、2021年3月、オンライン開催

後藤 頌太、水野 英如、金 鋼、松林 伸幸：環状高分子ガラスの振動状態密度解析、日本物理学会第76回年次大会、2021年3月、オンライン開催

矢ヶ崎 琢磨、松林 伸幸：ポリマーブラシの分子動力学シミュレーション、衝撃科学共同研究講座報告会、日本物理学会第76回年次大会、2021年3月、大阪大学基礎工学部

石井 良樹、松林 伸幸、渡辺 豪、原田 慈久、加藤 隆史、鷺津 仁志：自己組織化イオン液晶のナノチャンネルにおける水和様態の分子動力学解析、日本化学会 第101春季年会、2021年3月、オンライン開催