

研究課題別評価

1 研究課題名:

アナログ & デジタル融合高分子ナノシミュレーション

2 研究者氏名:

増淵雄一

3 研究のねらい:

本研究は、からみあった高分子液体のダイナミクスを予測するシミュレーション技術を開発する事を目的とした。理論モデルの開発とあわせて、粘弾性測定による検証、DNA を用いた分子運動直接観察系とのリンク、によって、計算対象となる系の拡大をもくろんだ。

熔融プラスチックに代表される濃厚高分子のダイナミクスは高分子材料設計において極めて重要である。しかし材料設計の自由度が大きいこと、分子自体が巨大であること、緩和時間が長大であること、により既存のシミュレーション技術や理論で取り扱える系は限定されたものだった。

高分子のダイナミクスを計算する新規手法として、研究者の増淵は本研究以前の2001年に濃厚高分子のダイナミクスを高速に計算できるプリミティブチェーンネットワークモデルを提案した。高分子液体としてもっとも単純な直鎖単分散系への適用を確認できていたが、現実的な材料への適用可能性は未知であり、理論拡張の必要もあった。また、あらゆる分子シミュレーションにとって本質的な問題として、周期境界条件の利用が適当でないと考えられる系への対応が大きな課題でありブレークスルーが必要だった。

一方、高分子のダイナミクスを研究するモデル系として蛍光顕微鏡によるDNAの単分子観察に関する研究が90年代半ばより報告されはじめていた。DNAに蛍光色素を結合させ、適当な波長の光で励起すると蛍光により単分子のブラウン運動を見ることができる。通常の合成高分子では、ハンドリングできる限界である分子量数百万のものでも分子の広がり数が数百nm程度しかなく、通常の蛍光顕微鏡の回折限界から導かれる分解能に近い。近接場光を用いて分解能を10nm程度まであげて高分子を観察する走査型近接場光学顕微鏡では走査に時間が必要なため分子の運動を観察することはできない。そのような技術的背景からDNAの運動は高分子物理の側面から注目を浴び、直接観察可能な高分子物理のモデル系として特に米国で盛んに研究されてきていた。

高分子系では形態エントロピーの寄与が自由エネルギーにおいて支配的なため物性が分子の形態により決まる。例えば応力は分子の局所配向で決まる、いわゆる応力光学則が成立する。従って理論でモデル化が困難な系を作成してDNAでモデル実験することで、無極性屈曲性高分子の系のシミュレーションの代替が可能と考えた。また代替シミュレーションの結果、系の研究が進めば、新しい理論モデルへ展開できると考えた。

そこで本研究では、1)理論の拡張と結果の検証(デジタルシミュレーション部分)、2)DNA水溶液を用いたモデル実験系の検討(アナログシミュレーション部分)、3)双方のリンクによる新手法の開発、を計画し、シミュレーションで扱える系の拡大をもくろんだ。

4 研究成果:

1)理論の拡張と結果の検証(デジタルシミュレーション部分)

①実在高分子への適用可能性検証

多体のダイナミクスを計算するための分子シミュレーション技術は古くからあり多くの成功をおさめているが、分子量が大きく緩和時間が長い高分子のダイナミクスが実用的に計算できる手法は開発されていなかった。本研究はそれを可能にするために、高分子間の幾何的なからみあいのダイナミクスのみ注目して開発された理論モデル(Y. Masubuchi, J. Takimoto, K. Koyama, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Brownian Simulations of a Network of Reptating Primitive Chains", J. Chem. Phys., 115(9), 4387-4394 (2001))に基づく。このモデルは高分子の

普遍的な性質(分子量に対する拡散定数, 粘度, 慣性半径などのべき依存性)を再現する。さらに定量性を検討するために粘弾性を用いて種々の実在系との定量比較を行った。その結果理論に基づくシミュレーションが種々の高分子の線形粘弾性を定量的に再現することを示した。ここでのパラメータは単位弾性率と単位時間のみであって, 高分子間に働く化学的相互作用はそこに押し込められている。単分散の直鎖高分子系について, 論文投稿は2005年中に済ませており, 2006年はじめに出版が決定されているが未だ印刷に至らない(O.Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F.

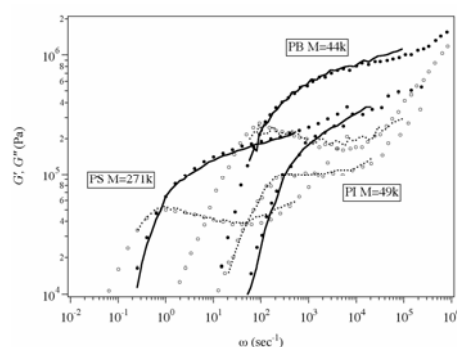


図1 種々の高分子の動的粘弾性予測

Greco and G. Marrucci, "Unit of molecular weight, stress and time of the primitive chain network simulations for polymer melts", J. Non-newtonian Fluid Mech., in print.). 長い高分子と短い高分子の混合物である, 二様分布した高分子系はからみあった高分子のダイナミクスを議論するためにしばしば用いられる系であるが, 他の同種のモデルに対して予測精度が勝ることを示した(Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive Chain Network Simulations for Bidisperse Linear Polymers", AES Technical Reviews International Journal, in print). あわせて成形加工等で重要である高速大変形成条件における高分子の運動予測可能性も検証した。その結果, 4つの基本変形モード(せん断および一軸, 二軸, 平面の各伸長変形)のステップ変形後の応力緩和について, 普遍的な評価関数として知られるダンピング関数を検証したところ二軸伸長以外は実験と良い一致をみた。二軸伸長は実験データも少ないため今後も検証を行う必要がある。(K. Furuichi, C. Nonomura, Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive chain network simulations of damping functions for shear, uniaxial, biaxial and planar deformations", NIHON REOROJI GAKKAISHI 35 (2), 73-77 (2007)). せん断変形においては, モデルが予測する時間範囲において緩和弾性率が実験を定量的に再現することを確認した。併せてからみあった高分子の変形を, 分子レベルのシミュレーションとしてはじめて詳細に検討し報告した。(K. Furuichi, C. Nonomura, Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Entangled polymer orientation and stretch under large step shear deformations in primitive chain network simulations", Rheologica Acta, in print.)

②モデルの拡張と検証

上記①の成果は高分子としては単純な, 化学的構造が均一の直鎖高分子に関するものであった。本プロジェクトではより複雑な様々な系へのモデル拡張を行い成果を得た。まずプロジェクト開始時点で特許化されていた共重合体と分岐高分子について, それぞれ詳細な検討と改良を行い論文化した。(共重合体: Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive Chain Network Model for Block Copolymers", J. Non-Crystal. Solids, 352, 5001-5007 (2006), および Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Biased Hooking for Primitive Chain Network Simulations of Block Copolymers", Korea-Australia Rheol. J. 18(2), 99-102 (2006), 分岐高分子: Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive chain network simulations for branched polymers", Rheol. Acta.46(2), 297-303 (2006).)また, 新たに粒子分散系への拡張を考案し特許化した(固体粒子を分散させた高分子化合物の分子運動解析方法および解析プログラム, JSTより申請中)。このような系において, プラスチック材料として用いられる高分子の分子量で分子計算が可能なのは本手法以外には全く例がなく, 科学的な意義, 工学的な有用性ともに高い。また高分子類似の系として紐状ミセルの計算を行う手法も考案し特許化した(紐状ミセル系の運動およ

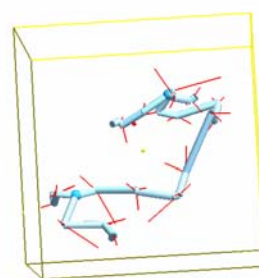


図2 分岐高分子のシミュレーション

びレオロジー解析方法および解析プログラム, 特願2005-015045). その他超臨界二酸化炭素含浸系も視野に入れて研究を行ってきたが, 実験的検証に留まった.

③プログラムのリリース

本プロジェクトで得られた成果(粒子分散系への拡張は除く)を, JST-CREST「多階層的バイオレオシミュレータの研究開発」(研究代表者:土井正男教授)において開発されているシミュレーションプラットフォームOCTA対応版シミュレーターとして2007年3月にリリースした. 株式会社日本総研によるOCTA実用化版である高分子材料シミュレーションパッケージJ-OCTAの2007リリース版にも含まれ, 実用利用に供される.

2) DNA水溶液を用いたモデル実験系の検討(アナログシミュレーション部分)

①DNA分子運動の検討

本プロジェクトでは当初DNA水溶液系を確立されたモデル系として無批判に用いようとしていた. しかし領域会議を通じて様々な疑義が提出されたので, DNAの濃厚水溶液系が無極性屈曲性の合成高分子と同じふるまいを見せるのかを検証した. 直接観察により濃度を変化させて拡散定数や慣性半径をはかり, ポリスチレンで得られている結果および無極性屈曲性高分子の理論から予測される結果と同じ普遍的な法則性に従うことを確認した(日本レオロジー学会第33年会(2006年度)ベストプレゼンテーション賞受賞他). また分子の回転や伸縮の緩和時間を測定して同様の結論を得ている. 論文化を行っていたところ米国の競合先によりほとんど同じ結果(Teixeira RE, Dambal, Richter DH, Shaqfeh ESG, Chu S, MACROMOLECULES 40 (7): 2461-2476 APR 3 2007)が先に提出されたので現在結果を追加している.

②DNA水溶液の粘弾性測定

本プロジェクトでは粘弾性を用いて1)の理論を合成高分子のダイナミクスと比較し検証している. そこでDNA水溶液についても粘弾性を測定し1)の理論と比較した. 粘弾性測定に必要な量のDNAを確保するため, 東京農工大学工学部生命工学科黒田助教のご協力により大腸菌から多量のDNAを取得した. その結果, 平坦部弾性率と緩和時間の濃度依存性が無極性屈曲性高分子の理論から予測される結果と同じ普遍的な法則性に従うこと, および, その2つをパラメーターとして1)の理論モデルの計算結果を適用すると, 妥当な一致を見る事が確認された. 予備的な結果を報告済みである(木下太郎, 惣谷志保里, 黒田裕, 増淵雄一, 「大腸菌由来DNA水溶液の動的粘弾性測定」, 高分子論文集, 64(7),458-463).

③DNAの分子運動解析手法の開発

DNAの蛍光画像から得られる分子の形態を応力光学則に基づいて解析する手法を開発し特許化した(高分子の応力テンソルの時間変化の推算方法, 高分子の3次元構造の構築方法, プログラム, 情報記憶媒体, およびシステム, 特願2006-193770). 応力光学則の考え方に基づき, まず慣性半径の時間自己相関緩和関数から応力緩和を得ることを着想した. しかしこ

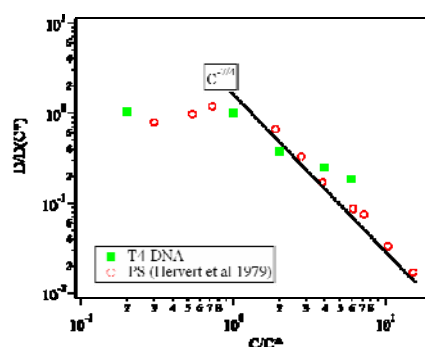


図3 DNA とポリスチレンの拡散定数の濃度依存性

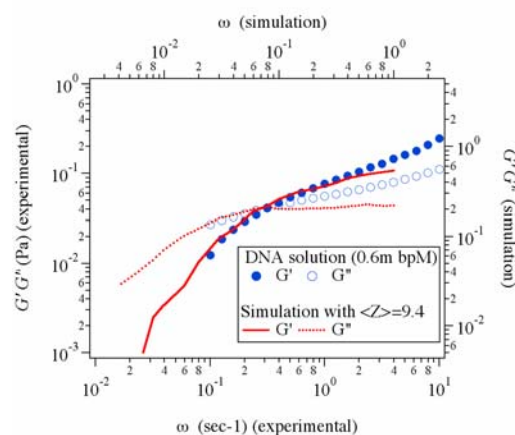


図4 DNAの動的粘弾性とシミュレーション結果との比較

の方法では原理的に高分子の形態変化に含まれる最長緩和モード(あるいは固有振動モード

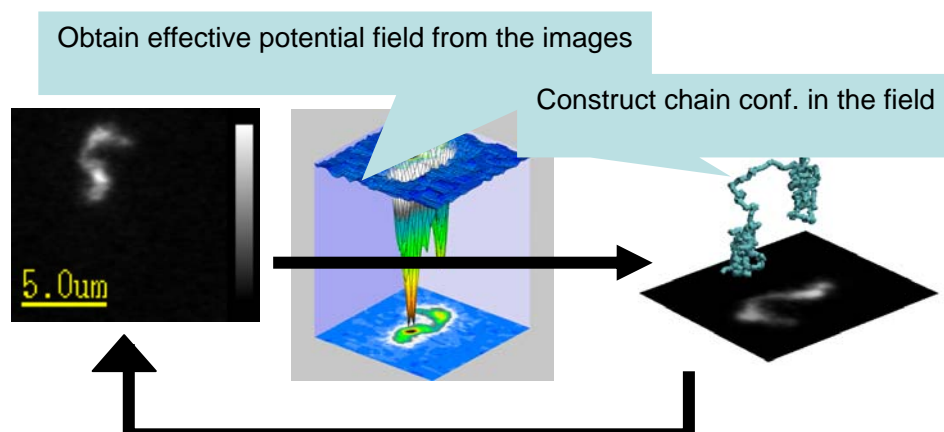


図5 DNAの蛍光画像からのコンフォーメーション取得

のうちでもっとも周波数の低いモード)しか得ることができず、十分とはいえなかった。そこでモンテカルロ法により蛍光画像からDNAのコンフォーメーションを得ることにした。ここでいうコンフォーメーションとは、DNAを無個性なヒモであるとみなしたときのヒモの構造であり、詳細な化学構造は無視した応力光学則で考えられる構造のことをいう。

④ブレンド、粒子分散系、マイクロ流路系での試行

DNAによる無極性屈曲性の合成高分子系のモデル化を目的として、ブレンド、粒子分散系、マイクロ流路系を試行した。本プロジェクトでのDNAを用いた実験系構築と分子運動観察には、1)の理論で扱えない系における実験的シミュレーション(アナログシミュレーション)の構築の目的があった。理論モデルによるシミュレーションではどうしても周期境界条件を適用しなければならない。例えばブレンド系であれば相分離パターンの成長が境界条件で規定される。マイクロ流路では境界条件と同じ周期性を持つ流路しか扱う事ができない。粒子分散系では分散粒子の構造や粒子間の流体相互作用が境界条件に影響される。

ブレンド系ではDNAと相分離することが知られているポリエチレングリコールとの混合液を用いた。相分離は観察されたが、DNAが単分子単位でコイル-グロブユール転移をまず起こし、グロブユール状態のDNAが徐々にパターン形成することがわかった。つまり相分離の動的なパスが想定したものとは異なった。この現象自体興味深く論文をおこなった(川北展史, 増淵雄一, 「濃厚DNA/PEGブレンドにおけるDNA分子の拡散挙動」, 高分子論文集, 印刷中)が、無極性屈曲性高分子ではコイル-グロブユール転移は一般に起きないので、アナログシミュレーションとしての系には不適であった。ポリエチレングリコールの分子量を変えたり、溶液のイオン強度を変えたりすることによって結果が変わる可能性はあるため、実験は継続している。

粒子分散系では親水性、疎水性の相互作用をもつ球状のビーズを分散させた系におけるDNAの運動を調べた。重水を添加してビーズの沈降を防ぎ、ビーズの大きさとDNA分子の大きさの比率、およびDNAの濃度を変えて運動の変化を見ている。1)の理論モデルで開発した粒子分散系への拡張モデルとの比較検討を行っている。

マイクロ流路系の構築では東京農工大学森島准教授の協力を得てPDMSにフォトリソグラフィーによりパターン形成を行った。さらに流路の表面処理を行って観察を行いDNAの運動への影響を調べている。

3) 双方のリンクによる新手法の開発

①DNA蛍光画像からの応力計算

上記2)の直接観察において、③で開発した手法により取得したDNAの分子形態から、1)の理論モデルに基づいて応力を計算する方法を開発した。これは1)の理論モデルによる分子運動

計算の代替としてDNAの蛍光動画像を利用する方法である。2)の③とあわせて特許化した(高分子の応力テンソルの時間変化の推算方法、高分子の3次元構造の構築方法、プログラム、情報記憶媒体、およびシステム、特願2006-193770)。

②自由エネルギーに基づく新理論の構築

上記1)の理論と、2)のDNA蛍光動画像を直接リンクするために場の自由エネルギーを含む新しい理論の構築に着手した。DNAの直接観察に2)の③を用いれば、形態の分配関数を取得できる。そこで1)の動力学に基づく理論とは別に、系の自由エネルギーを書き直せばDNAの直接観察の結果を直接取り入れたり、あるいはデータとしてシミュレーションに生かしたりできると考えた。イリノイ工科大学の J. Schieber 教授との共同研究により自由エネルギーを形式的に書くことはできた(日本レオロジー学会第 34 年会(2007 年度)ベストプレゼンテーション賞受賞)。この自由エネルギーに基づく計算を行うために解析的な積分計算と数値計算を検討している。

5 今後の展開

(1) 今後の研究の展開

本研究で開発した高分子シミュレーターは今後も更なる開発と発展が見込める。理論の発展を進めるとともに、以下の(2)にも述べるが他の計算手法と組み合わせることにより適用できる問題範囲の拡大をめざしていく。また DNA 実験とのリンクにおいて必要となった自由エネルギーに基づくモデルの見直しは学術的にも意義深い課題であるので今後注力する。

本研究で行ったDNAによる高分子系のモデル化は世界的な競争が盛んになっている。従来統計平均で議論されていた高分子個々の運動を個別に見ること、あるいは単なる平均値でなく分布を議論することの重要性が認識されてきており、DNA の可視化実験の結果から新しい理論や実験が提案されだしている。それらは希薄溶液系での孤立DNAに関するものであって、本研究のように濃厚系での分子のからみあい運動を議論したものはまだない。本研究最初のトライアルが失敗に終わったブレンド系も条件の検討を進めれば当初の目的を果たせる見込みはある。粒子系は検討すべき項目(粒子の表面処理、粒子のサイズ、粒子の形状、形状の分布)が多く、データ取得が研究期間内に間に合わなかったが継続する。マイクロ流路系はMEMSなどの関連で最も競争の激しい分野であるので方向性を見極める。DNA を分岐させる技術に応用した分岐高分子のモデル実験も米国で行われているので対象を拡大していきたい。

本研究でもくろんだ高分子シミュレーターと DNA 実験のリンクは緒に就いたばかりであり今後さらに取り組みたい。上述の DNA 実験を進める場合には必ず分子運動の詳細な解析が必要になる。本研究のように分子モデルと組み合わせた取り組みはまだ他所では始まっていないが早晩行われる。開始した研究をできるだけ早期に推進したい。

(2)他の研究事業への展開

さきがけの他領域である「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」で「ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発」を実施した山本量一氏らとともにCREST研究「ソフトマターの多階層/相互接続シミュレーション」を平成 18 年度より行っている。これは本研究で開発してきた高分子シミュレーターを他の計算手法とリンクさせることで計算対象の拡大をもくろむものである。

(3)実用化に向けた展開

上記4-1)-③で述べたように、本プロジェクトで得られた成果シミュレーションプログラム(粒子分散系への拡張は除く)を、JST-CREST「多階層的バイオレオシミュレータの研究開発」(研究代表者:土井正男教授)において開発されているシミュレーションプラットフォームOCTA対応版シミュレーターとして2007年3月にリリースした。株式会社日本総研によるOCTA実用化版である高分子材料シミュレーションパッケージJ-OCTAの2007リリース版にも含まれ、実用利用に供される。

DNA分子運動の解析手法(高分子の応力テンソルの時間変化の推算方法、高分子の3次元構造の構築方法、プログラム、情報記憶媒体、およびシステム、特願2006-193770)につい

ては、現状特に計画はないが、蛍光顕微鏡システムの画像解析プログラムとして実用化できる可能性はある。

6 領域内外での活動とその効果

(1) 領域内の活動とその効果

直接観察実験について多数のありがたいお申し出や励ましを多数いただいた。DNA試料の提供や処理法、観察セルの表面処理などについて、得難いアドバイスを多数いただき、また研究の進展についてご心配いただいた。しかし増淵が研究期間途上で移籍したことや、移籍に関わる東京農工大の他の研究室との連携関係などのため、共同研究まで発展できなかった。

(2) 領域横断的活動とその効果

さきがけの他領域である「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」で京都大学の山本量一氏は「ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発」を実施し、粒子分散系の革新的な計算手法を確立していた。そこで5(2)に述べたように、本研究の高分子計算手法と組み合わせ高次液体中に分散した粒子のダイナミクスを計算可能にし、さらに両手法で欠けている物質の化学的個性を取り入れ、また化学工学的なプロセスシミュレーターと連携させることで、多階層計算を行うための新しい手法の開発をもくろんでCREST研究「ソフトマターの多階層/相互接続シミュレーション」を立ち上げた。

また増淵がさきがけ研究前に参加していたCREST研究「多階層的バイオレオシミュレータの研究開発」のプラットフォームOCTAで本研究の成果物であるプログラムを利用可能とし、両者の接続を可能にした。これにより5(3)に述べたようにOCTAの実用化版への搭載が行われるに至った。

7 研究成果の今後の貢献について

まず科学的な側面について述べる。

本研究で開発してきた高分子ダイナミクスのシミュレーターは、からみあった高分子のダイナミクスを計算できる手法として唯一性の高いものである。高分子系は緩和時間が長いために従来の計算手法では取り扱えなかった問題や解析できなかった現象が多数存在する。例えば本研究でも対象とした分岐高分子では少数の理論モデルは存在するが実験が困難で検証は十分でなく発展が遅れている。分子シミュレーションがあれば相互に補完して発展を見込める。ブレンド、共重合、粒子分散系では理論モデルもなく、唯一本手法だけが高分子のダイナミクスを扱える。本手法を核として他の手法との連携をすすめる試みが新たにCREST研究「ソフトマターの多階層/相互接続シミュレーション」で進行中である。本手法の改良と検証を進めることはこれらの系の解析手段を与え、理論や実験の発展に貢献する。

本プロジェクトで取り組んだDNAの可視化と、可視化画像の解析手法(高分子の応力テンソルの時間変化の推算方法、高分子の3次元構造の構築方法、プログラム、情報記憶媒体、およびシステム、特願2006-193770)も今後必ずインパクトを持つ。DNAを用いた高分子ダイナミクスの可視化は本プロジェクト進行中にも分野として認知があがってきた。日本国内での研究例は少ないが、例えば07年度の米国レオロジー学会年次大会では本研究と同様の立場でDNAを高分子系のモデルと考えて解析する研究や分子シミュレーションの結果をDNAの可視化実験と比較して評価する研究が10件以上発表されている。それらの研究のうちいくつかと解析手法について協議を始めている。

次に実用化の側面について述べる。

高分子ダイナミクスのシミュレーターは化学材料メーカーを中心にすでに民間企業に利用されている。本研究で対象ともくろんだブレンド、粒子分散系、流路などはそれら実用上の問題提起から発案されたともいえる。本研究で開発をすすめたシミュレーターの適用範囲を広げることや、理論モデルを見直すことは、即時にそれらの企業における材料開発に貢献する

8 自己評価:

全体の自己評価は50点である。

理論モデルの発展においては十分な成果を得たので90点の評価である。分岐系、共重合系、二様分布系、非線形粘弾性、などについてモデルの改良と検証を行うことができ、特許として提出していた手法の論文化もできた。粒子分散系やミセル系は実験の遅れもあり特許化に留まっているが、全体としてほぼ当初の目的は果たせた。他の理論モデルと組み合わせることで新たな計算手法を構築しようとする CREST への参加も 07 年度より行っており、さらなる発展をめざす。

一方実験との連携や実験そのものについては、一応の筋道は付けたものの当初予定の成果をあげることができなかつたので40点である。原因は特に実験に対する認識が甘かつたことである。プロジェクト計画時に各種の文献などから確立された事項として認めてよいと考えていた様々な事柄が、領域会議における先生方からのご指摘により再検討する必要があると考え直し、実験系や実験方法、実験項目について、当初予定していたスタートラインよりもかなり後退せざるを得なかつた。また実験を進めるにつれて新たに考えなければならない事柄や検証すべき実験内容が増え、プロジェクトの予定との開きが増していった。前の勤務先である東京農工大での研究室の立ち上げ、学部生中心の十数名の学生の研究指導、期間途中での京大への移籍、などの環境面でも想定外の事柄があつたり元々の見通しが甘かつたりしたため、最後まで遅れを取り返せなかつた。実験関連でも特許出願や論文出版、招待講演など、一応の成果を残したことを勘案しても低い評価とせざるをえない。しかしDNAの直接観察で高分子の運動を代替して考える関連研究は国際的にも発展を続けており、本プロジェクトで特許化した高分子運動の解析法の有用性や、さらに完成できなかつたシミュレーターとの直接連携は決して無価値なアイデアではない。特に相互作用場を通したシミュレーターと実験の連携は学術的に意味の深い課題であり、今後も研究を継続したい。

予算措置、時間、労力のウエイトは実験側に大きいこと、および最終目標に到達できていないことから全体評価は50点とした。

9 研究総括の見解:

高分子シミュレーターの理論拡張の試みはユニークであり、シミュレーションの条件や計算時間を補間するものとして期待したい。DNAを高分子系のモデルとみなして、実験とシミュレーションの融合を図る新手法の開発については、方法論の妥当性にまで戻って議論したため当初計画のように進まなかつたところもあるが、DNAを用いることの妥当性を慎重に検証した成果は評価できる。本シミュレーションは産業的な要望も強いので、3件の特許出願を行ったことは、実用化に向けた取り組みとして評価できる。

10 主な論文等

(1) 論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 国際10, 国内6

OY. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Unit of molecular weight, stress and time of the primitive chain network simulations for polymer melts", *J. Non-newtonian Fluid Mech.*, in print.

Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive Chain Network Simulations for Bidisperse Linear Polymers", *AES Technical Reviews International Journal*, in print.

K. Furuichi, C. Nonomura, Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Entangled polymer orientation and stretch under large step shear deformations in primitive chain network simulations", *Rheologica Acta*, in print.

K. Furuichi, C. Nonomura, Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive

chain network simulations of damping functions for shear, uniaxial, biaxial and planar deformations”, NIHON REOROJI GAKKAISHI 35 (2), 73–77 (2007).

○Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, “Primitive Chain Network Model for Block Copolymers”, J. Non-Crystal. Solids, 352, 5001–5007 (2006).

○K. Horio and Y. Masubuchi, “Pre-averaged sampling on the entanglement kinetics for polymer dynamics”, Macromol. Symp. 242, 140–145 (2006).

○Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, “Primitive chain network simulations for branched polymers”, Rheol. Acta. 46(2), 297–303 (2006).

Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, “Biased Hooking for Primitive Chain Network Simulations of Block Copolymers”, Korea–Australia Rheol. J. 18(2), 99–102 (2006).

Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, “Statistics in entangled polymers from primitive chain network simulations”, Proc. 3rd Int. Conf. Multiscale Materials Modeling, pp 940–942(2006).

Y. Masubuchi, “Molecular Simulations for Entangled Polymer Dynamics and Rheology”, Theories and Applications of Rheology, p5, 9(2), (2005),

川北展史, 増淵雄一, 「濃厚DNA/PEGブレンドにおけるDNA分子の拡散挙動」, 高分子論文集, 64(11), 740–744, (2007).

木下太郎, 惣谷志保里, 黒田裕, 増淵雄一, 「大腸菌由来DNA水溶液の動的粘弾性測定」, 高分子論文集, 64(7), 458–463, (2007).

増淵雄一, 「からみあい高分子のダイナミックスの多体シミュレーションに関する研究」, 日本レオロジー学会誌, 34(5), 275–282, (2006).

増淵雄一, 「計算化学の現状と今後」, 日本の科学者, 41(6), 22–27 (2006).

増淵雄一, 「高分子のからみあいに基づく分子シミュレーション」アンサンブル, 8(2), 6–10 (2006)

増淵雄一, 「ミクロスコピック系のCAE: 分子シミュレーションによる高分子の物性予測」成形加工, 18(7), 489–495 (2006)

(2) 特許出願研究期間累積件数: 3件

発明者: 増淵雄一

発明の名称: 紐状ミセル系の運動およびレオロジー解析方法および解析プログラム

出願番号: 特願2005-015045

出願人: 科学技術振興機構

出願日: 2005年1月24日

発明者: 増淵雄一

発明の名称: 高分子の応力テンソルの時間変化の推算方法、高分子の3次元構造の構築方法、プログラム、情報記憶媒体、およびシステム

出願番号: 特願2006-193770

出願人: 東京農工大学

出願日: 2006年7月14日

発明者: 増淵雄一

発明の名称: 固体粒子を分散させた高分子化合物の分子運動解析方法および解析プログラム

出願人: 科学技術振興機構

出願日: 2007年10月30日(予定, 手続き中)

(3) その他の成果

(3-1) 受賞: 研究期間累積件数: 1件

日本レオロジー学会2006年度奨励賞受賞

「からみあい高分子のダイナミックスの多体シミュレーションに関する研究」

(3-2) 招待講演: 研究期間累積件数: 国際会議 8件 国内会議等 9件

(国際会議招待講演分のみ記載)

○Y. Masubuchi, "Molecular Rheology in DNA solutions", Workshop in Ravello, Ravello, Italy, 2007.

Y. Masubuchi, "Molecular Rheology by Simulation and DNA", Exchanging in Polymer Science Among Asian Famous Universities' Graduate Students, Hangzhou, China, 2007.

Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive Chain Network Simulations for Bidisperse Linear Polymers", AES-ATEMA, Montreal, Canada, 2007.

Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Entangled Polymer Dynamics Described by Primitive Chain Network Model", ICRIS07, Kyoto, Japan, 2007.

○Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci, "Primitive Chain Network Simulations for Branched Polymers", International Workshop on Mesoscale and Multiscale Description of Complex Fluids, Prato, Italy, 2006

Y. Masubuchi, "Entanglement Molecular Weight for Primitive Chain Networks", The PPS-22 Post Symposium - Unsolved Problems in Material Rheology, Yonezawa, Japan, 2006.

○Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci "Primitive Chain Simulations for Entangled Polymers", 5th International Discussion Meeting on Relaxation of Complex Systems, Lille, France, 2005.

○Y. Masubuchi, G. Ianniruberto, F. Greco and G. Marrucci "Primitive chain network simulations", CECAM workshop on modeling and simulation of entangled polymeric liquids, Lyon, France, 2005.

Y. Masubuchi, "Molecular Simulations for Entangled Polymer Dynamics and Rheology",

Korean Rheology Society. Seoul, Korea, 2005