

令和 6 年 4 月 12 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2023

課題番号：16K05659

研究課題名(和文)熱力学量を正確に計算することを目指したOZ理論の改良

研究課題名(英文)A study on the OZ theory to improve the accuracy of thermodynamic quantities

研究代表者

宮田 竜彦(MIYATA, Tatsuhiko)

愛媛大学・理工学研究科(理学系)・講師

研究者番号：70390648

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文): 溶液中での溶質の安定性を議論するのに中心的な役割を果たす熱力学量は溶媒和自由エネルギーである。積分方程式理論は計算コストの低さが長所であるが、理論に含まれる近似の影響で溶媒和自由エネルギーには顕著な誤差が含まれることが分かっていた。本研究では単原子分子系の高精度化から始めて、ボトムアップ的なアプローチで3D-RISM理論の高精度化を目指した。SEBという補正法を提案した。これはLJポテンシャルのパラメータを少し大きくする効果をブリッジ関数として定義したものであり、単原子分子系から多原子分子系まで幅広く利用することができる。3D-RISM理論で求まる水和自由エネルギーの高精度化にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

タンパク質の安定構造やリガンド結合などの予測計算では通常、分子動力学法が使われる。分子動力学法は結果が正確であることが期待される反面、計算コストが大変重く、タンパク質などの複雑な分子の自由エネルギー計算ではスーパーコンピュータが不可欠である。一方、積分方程式理論は計算コストが軽い反面、理論に含まれる近似の影響により計算結果が不正確となる場合がある。本研究成果は溶媒和自由エネルギーに関して、計算コストの軽さと計算結果の正確性を両立し得るものであり、今後は複雑な分子系への応用が期待される。

研究成果の概要(英文): The solvation free energy plays the central role in discussing the thermodynamic stability of solutes in solution. While the integral equation method including the OZ theory has an advantage of low computational cost, the solvation free energy obtained by the method suffers from a significant error coming from the approximation assumed in the theories. This study began with improving the accuracies for monatomic molecular systems, and aimed to improve the 3D-RISM theory through a bottom-up approach. This study has proposed the SEB correction, which is defined as a bridge function to have an effect of enlarging the sigma parameter of the LJ potential. This correction can be widely used not only for monatomic molecular systems but also for polyatomic ones. Furthermore, the SEB is found to improve the accuracy of the hydration free energy obtained from the 3D-RISM theory.

研究分野：物理化学

キーワード：溶媒和自由エネルギー OZ理論 RISM理論 分子動力学シミュレーション closure近似 hybrid closure Lennard-Jones流体 クーロン系

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

タンパク質の水和や分子認識等の理論的解析において 3D-RISM という理論が頻繁に使われており、ドラッグデリバリー等に関する議論まで 3D-RISM 理論で行なわれるようになっていた。3D-RISM 理論は Ornstein-Zernike 積分方程式理論 (以下、OZ 理論) の一種であり、分布関数を記述する理論である。分布関数の一例としては動径分布関数等が挙げられる。分布関数は各種の熱力学量と解析的に結びついているため、分布関数分かれば、さまざまな熱力学量を得ることができる。ただし、分布関数に近似が含まれている場合には、その近似が熱力学量に悪影響を及ぼすことがある。OZ 理論には通常、何らかの近似 (例えば HNC や PY など) が含まれるため、OZ 理論を通して得られる熱力学量は厳密ではなく、状態量であるべき熱力学量が積分経路に依存してしまうという問題が発生し得る。この問題は、thermodynamic inconsistency と呼ばれ、単純液体の理論分野では 1960 年代あるいは 1970 年代にはすでに知られていた[文献①]。

上述の 3D-RISM 理論が登場したのは 2000 年前後であるが、3D-RISM 理論はタンパク質等の非常に複雑な分子系へ比較的容易に適用できるため、今世紀以降、頻繁に用いられてきた。これまでの 3D-RISM 理論の適用成功例の多くは、タンパク質分子周りの水やリガンドの分布関数そのものの計算であった。3D-RISM の分布関数から計算される熱力学量の一例として、溶媒和自由エネルギー (タンパク質等の過剰化学ポテンシャル) が挙げられる。3D-RISM 理論に基づいて溶媒和自由エネルギーの計算も行なわれてきたが、2010 年あたりからその精度への注目が高まった[文献②]。3D-RISM 理論では Kovalenko-Hirata と呼ばれる近似法 (以下、KH 近似) が頻繁に用いられる。KH 近似の下での 3D-RISM 理論 (以下、3D-RISM/KH 理論) は、実験値に比べて溶媒和自由エネルギーを過大評価する傾向のあることが知られていた[文献②]。この過大評価は、LJ 項の過大評価に端を発していることが確かめられた[文献③]。その後、我々のグループにより、1960 年代あたりに知られていた上述の単純液体に対する thermodynamic inconsistency の問題と、溶媒和自由エネルギーの LJ 項過大評価の問題が密接に関連していることが指摘された[文献④]。積分方程式理論の高精度化には通常、ブリッジ関数を用いられる。理論的に厳密な定式化に基づいたブリッジ関数を用いなくとも、例えば LJ ポテンシャルの σ パラメータを少し大きくするという形式のブリッジ関数 (SEB 関数) であっても、溶媒和自由エネルギーの補正方法として十分機能することが示唆されていた[文献④]。

2. 研究の目的

3D-RISM/KH 理論には近似が 2 種類含まれている。すなわち、OZ 方程式側の近似 (RISM 近似) と closure 方程式側の近似 (KH 近似) である。我々のグループで指摘したこと[文献④]は、KH 近似が溶媒和自由エネルギーを過大評価する主要因となり得る点である。closure 方程式側の近似を補正する方法として SEB 法を提案した[文献④]が、本研究ではこの方法を多原子分子へ拡張することを目指す。一方、RISM 近似が溶媒和自由エネルギーにどのような影響を及ぼすかはほとんど明らかとなっていない (埋もれた原子に対する記述が悪いことは知られているが、埋もれていない原子の記述に関して定量的な考察は行われていない)。本研究では、RISM 近似が分布関数や溶媒和自由エネルギー等の熱力学量に及ぼす影響の解明もターゲットとする。

また 3D-RISM 理論で KH 近似がよく用いられる理由のひとつは、数値的な収束性のよさにある。例えば、3D-RISM 理論と HNC 近似の組み合わせは数値的に発散しやすく、取り扱いが極めて困難である。この困難を避けるために KH 近似が多用されてきた。この観点からは、KH 近似の数値的収束性のよさを保持したまま、理論の精度 (近似の精度) を高める方法が望まれる。我々のグループで提案した SEB 補正法[文献④]は形式上、RISM 近似が含まれる場合へもそのまま適用可能である。このことから、3D-RISM 理論における KH 近似の収束性のよさが失われないというメリットが期待できる。

熱力学量の中には動径分布関数の微分で表わされるものもある。例えば圧力の密度微分と関係した等温圧縮率や、圧力の温度微分と関係した圧力係数等が挙げられる。これらの熱力学量の精度を調べるためには、動径分布関数の密度微分や温度微分の精度を知る必要がある。OZ 理論に基づいた動径分布関数の密度微分や温度微分の計算例はあるが、これらの精度についての詳細はほとんど知られていない。本研究では LJ 流体の等温圧縮率と圧力係数の精度について、動径分布関数の微分の精度との関連に着目しつつ調べる予定である。

3. 研究の方法

(1) 3D-RISM 理論で求まる溶媒和自由エネルギーの過大評価の主要因が LJ 項にあるという既存の研究結果から、LJ 単原子分子流体を対象として SEB 補正法の適用可能性について検討する。SEB 補正法では動径分布関数の立ち上がり領域を σ パラメータの調節 (HNC や KH 近似等では σ を大きくする) により補正する。ここでの問題は補正量をどのように決めるかという点である。ひとつは MD 法の動径分布関数に合うように補正量を決める方法であり、もうひとつは圧力方程式と圧縮率方程式の矛盾をなくすように決める方法である。

(2) 多原子分子の場合、SEB の補正量 (σ パラメータを大きくする量) をどのように定めるべきかを検討する。まずは LJ 粒子が 2 個融合した二原子分子の溶質を考え、LJ 単原子分子溶媒中での溶媒和を各種 closure 近似の下で調べる。特に分布関数に見られる誤差が単原子分子溶質のときとどのように異なるのかに注意を払う。

(3) 有機分子系の汎用ポテンシャルモデルでは多くの場合、LJ ポテンシャルとクーロンポテンシャルの重ね合わせが用いられる。このモデルをクーロン系と呼ぶこととする。クーロン系への SEB 補正の適用可能性について検討する。まず、溶媒はモデル溶融塩とし、溶質は部分電荷を有する二原子分子を考える。さらに、3D-RISM による水和自由エネルギー計算への SEB 適用可能性について検討する。

(4) LJ 流体を対象として、動径分布関数の温度微分および密度微分の精度を検討する。前者は圧力係数等と関連する関数であり、後者は等温圧縮率等に関連する。これら熱力学量の精度と動径分布関数の微分の精度との関連を調べる。

4. 研究成果

(1) LJ 単原子分子溶液 (溶媒・溶質ともに LJ 単原子分子からなる無限希釈極限の溶液) を対象として SEB 補正法を適用した。SEB の補正量 (σ パラメータを補正する倍率のことであり、以下では SEB パラメータと呼ぶ) の決定に際し、MD 法を利用する場合、および圧力方程式と圧縮率方程式の一貫性を利用する場合の双方を検討した。前者は SEB パラメータの parametrization であり、以下の(2)および(3)の研究内容で重要な意味を持つ。ここでは後者の「圧力方程式と圧縮率方程式の一貫性」に関する結果を説明する。KH closure の下で LJ 流体の圧力を求めるとき、圧力方程式は過大評価し、圧縮率方程式は過小評価する。SEB パラメータを変化させればこれらの圧力値がともに変化するので、これらが一致するようにパラメータを決めることを試みた。このようにして決めた SEB パラメータを使えば内部エネルギー、圧力、化学ポテンシャルの積分方程式理論による計算値は MD 法の結果によく一致した。

(2) LJ 粒子 2 個が融合した二原子分子を溶質とし、LJ 単原子分子溶媒中での溶媒和を 2 次元 OZ (2D-OZ) 理論で調べた。HNC および KH 近似の下で溶媒和自由エネルギーは過大評価された[文献⑤]。そこで SEB 補正法を適用したところ、溶媒和自由エネルギーの精度は顕著に改善された(図 1)。その際、SEB パラメータ (α とする) の角度依存性の有無を調べるとともに、単原子分子溶質における SEB パラメータ値との比較を行った[文献⑤]。結果の一例を図 2 に示す。SEB パラメータは二原子分子の bond (2 原子を結ぶ方向) から測った角度に依存しない。また、SEB パラメータ値は単原子分子の溶質に対する結果とほぼ一致した。これらのことから、研究成果(1)で単原子分子に対してパラメータ化した SEB 関数を、定量的にもそのまま二原子分子へ適用してよいことが分かった。これは SEB 関数の移植性を意味しており、単原子分子用の SEB パラメータ値が求まっていれば多原子分子用のパラメータ化は不要であることを示唆している。また、同様の SEB の移植性はより複雑な溶質に対して 3D-OZ 理論で計算した結果でも確認できた。さらに、二原子分子溶質に対して RISM 理論を用いる場合の SEB 適用可能性についても調べた。埋もれていない原子に対しては SEB の移植性が確認できた一方、埋もれている原子に対しては SEB による補正ができなかった。SEB は分子間ブリッジ関数に相当するが、埋もれている原子の補正は分子内ブリッジ関数によって補正されるべきである。

(3) LJ ポテンシャルとクーロンポテンシャルを重ね合わせたモデルに対して SEB 補正法が適用可能かどうかを調べた。単純なモデルとして溶媒はモデル溶融塩とした。まず、溶質として部分電荷を有する二原子分子のモデルを考えた。HNC や KH 近似では溶媒和自由エネルギーは過大評価されたが、SEB 適用により溶媒和自由エネルギー

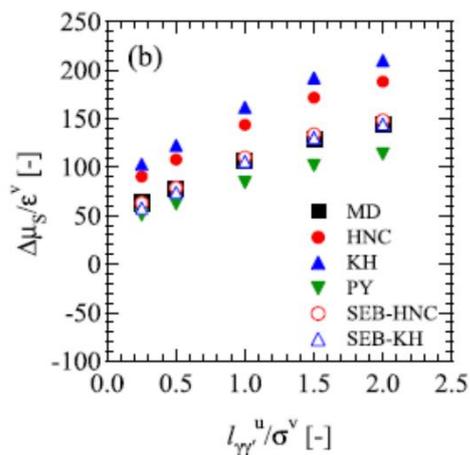


図1 2D-OZ理論による溶媒和自由エネルギー

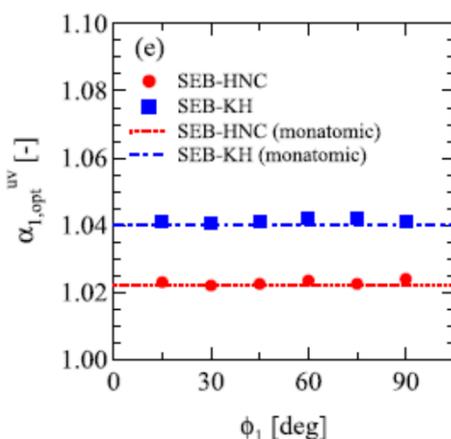


図2 SEBパラメータの角度依存性

一の精度は改善した。また、SEB パラメータの移植性も確認することができた。さらに、モデル溶融塩への水・クロロホルム・四塩化炭素の溶媒和自由エネルギーを 3D-OZ 理論で計算した。SEB 適用により溶媒和自由エネルギーの高精度化が達成されることが分かった。3D-RISM 理論への SEB 補正法の適用も試みた[文献⑥]。結果を図 3 に示す。これは溶媒を水とした場合の結果であるが、SEB の適用により水和自由エネルギーが顕著に改善する。図 3 ではクーロンポテンシャルを含む系も対象とした。これらの結果から、クーロン系に対しても SEB 補正法が有効であることが確認できた。

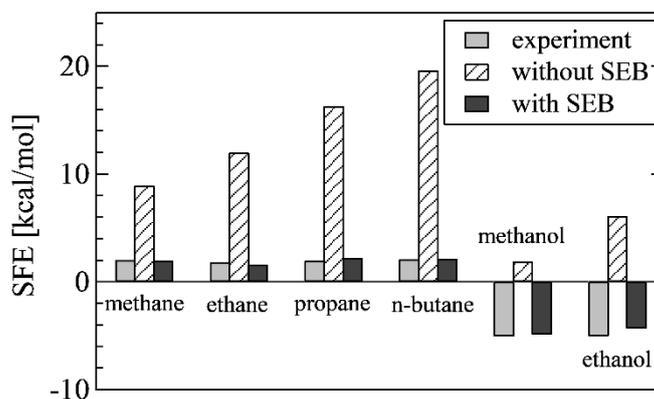


図3 3D-RISM理論へのSEB適用結果

(4) LJ 流体等の溶媒和自由エネルギーの誤差が、主として動径分布関数の立ち上がり領域に起因することがこれまでの研究(例えば研究成果(1))で判明していた。これは動径分布関数の立ち上がり領域がポテンシャルの斥力領域に対応すると同時に、溶媒和自由エネルギー計算のための積分がポテンシャルと動径分布関数の積の形になっていることに起因している(斥力によりポテンシャル値が非常に大きくなる領域での動径分布関数の誤差が最も重要となる)。この観点からは、動径分布関数の温度微分や圧力微分で記述できる圧力係数や等温圧縮率に関しても同様に、斥力領域が重要なのではないかと予想できる。そこで、動径分布関数の温度微分および圧力微分を求め、圧力係数や等温圧縮率の誤差について検討した[文献⑦]。圧力係数の被積分関数の計算例を図 4 に示す。動径分布関数の温度微分の第一ピークのあたりが圧力係数の誤差に最も影響を及ぼすことが確認できた。動径分布関数の密度微分と等温圧縮率との関係も同様であった。

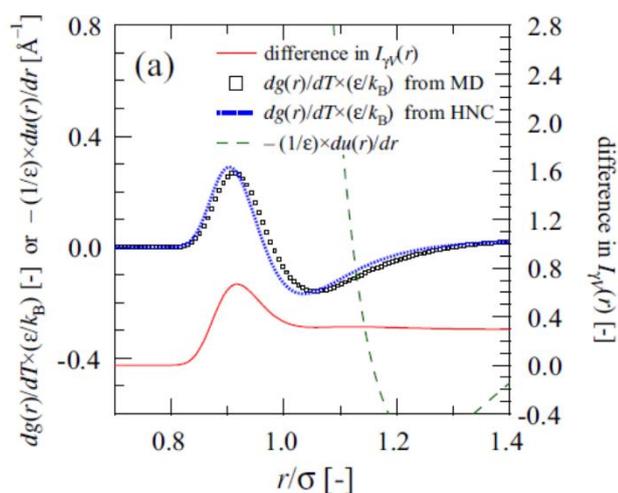


図4 動径分布関数の温度微分が圧力係数に及ぼす影響

(5) 研究成果(2)で言及したように、RISM 理論には埋もれた原子に対する記述がよくないという問題がある。これを解決するための方法論のひとつとして、角度平均 OZ (AAOZ) 計算法の開発を試みた[文献⑧]。AAOZ では角度ごとに単原子分子用の OZ 方程式を解くが、その際のポテンシャルには多原子分子に対応する重ね合わせを仮定することで分子内ブリッジ関数に相当する補正を入れることとなる。計算対象として LJ 二原子分子を溶質として LJ 単原子分子溶媒中での溶媒和を考えた。AAOZ で計算した分子内ブリッジ関数を 2D-OZ 理論で計算したものと比較した例を図 5 に示す。図 5 は埋もれた原子に対する結果であり、AAOZ は 2D-OZ の結果にほぼ完全に一致している。このように AAOZ は埋もれた原子に対してかなり正確な結果を与えることが分かった。その反面、埋もれていない原子に対しては AAOZ の結果はよいとは言えなかった。この点は今後の課題として残っている。

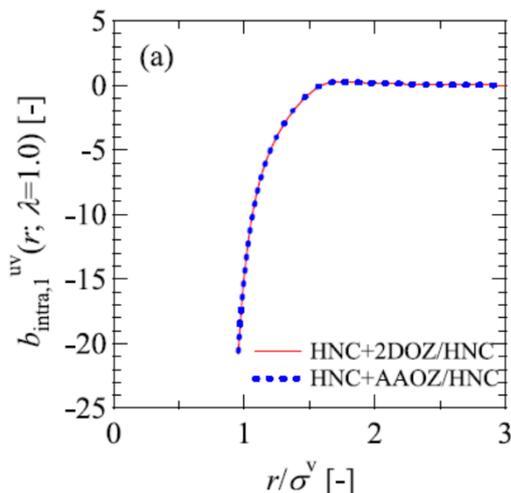


図5 AAOZで計算した分子内ブリッジ関数

(6) 本研究課題を進めていく中で、溶媒-溶媒間相関関数の精度が溶媒和自由エネルギーに顕著に影響することが判明した。そこで、溶媒-溶媒間相関関数を正確に求める方法の開発にも着手した。具体的には、比較的短距離領域での全相関関数を MD 法で計算し、それを正確にフーリエ

変換するために OZ 理論で遠距離へ延伸する方法を検討した (以下、hybrid closure 法と呼ぶ)。OZ 領域の closure 近似としては HNC、KH の他に KGK という近似も用いた。KGK は本研究課題が始まって間もない時期に Kobrynらによって提案されたものである[文献⑨]。HNC、KH、KGK といった closure の違いは hybrid closure 法の精度にほとんど影響を与えず、いずれもほぼ同等の結果を与えた。これまでに LJ 単原子分子溶媒だけでなく、熔融塩モデルに対しても hybrid closure 法を適用し、溶媒-溶媒間相関関数の正確な評価を試みた[文献⑩]。MD 法と OZ 理論を切り替える距離を r_0 として、最適な r_0 について検討した結果の一例を図 6 に示す。図 6 では等温圧縮率の精度でモニターしている。 r_0 が小さすぎる場合は closure 近似の影響を直接受けるため、結果があまり正確ではない一方、大きすぎる r_0 は MD 法における統計誤差の影響を強く受けるため、やはり不正確になる。結論としては、溶媒原子サイズに対して 2~3 倍くらいの距離で切り替えるのが妥当であった。さらに、hybrid closure 法では MD 法の結果を用いて OZ 計算することになるため、MD 法のデータからブリッジ関数を抽出することが可能となる。一例として、低密度での熔融塩モデルに対してブリッジ関数を抽出した結果を図 7 に示す。LJ 流体等に対するブリッジ関数は通常、短距離領域において急激な増加関数である。これはブリッジ関数の Universality Ansatz として知られている[文献①]。本研究で実施した熔融塩モデルの計算において、高密度では Universality Ansatz に合致する結果が得られた。一方、低密度の異種イオン間のブリッジ関数は Universality Ansatz から明確に外れる結果となった (図 7)。クーロン系の低密度条件においては、LJ 流体のような短距離ポテンシャル系で見られたブリッジ関数とは異なる挙動を示すことが示唆された。

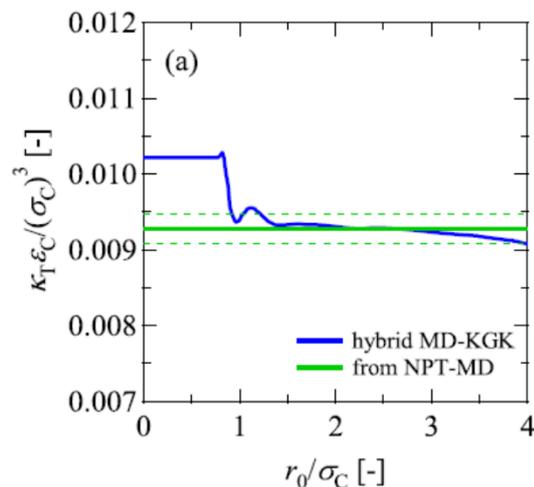


図6 切り替え距離の hybrid closure 法への影響

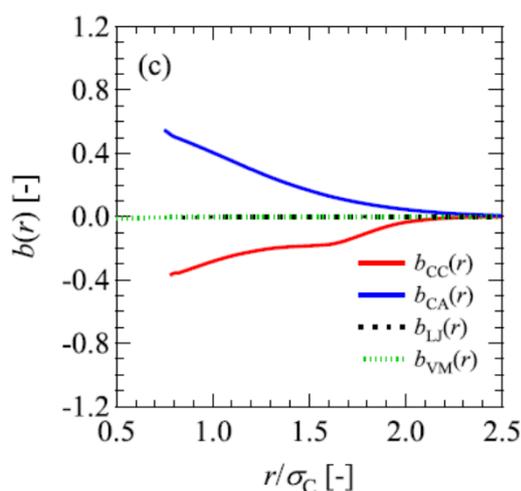


図7 熔融塩モデルで抽出されたブリッジ関数

<引用文献>

- ① Y. Rosenfeld and N. W. Ashcroft, Phys. Rev. A, 20 (1979) 1208.
- ② D. S. Palmer, A. I. Frolov, E. L. Ratkova, and M. V. Fedorov, J. Phys.: Condens. Matter, 22 (2010) 492101.
- ③ J-F. Truchon, B. M. Pettitt, and P. Labute, J. Chem. Theory Comput., 10 (2014) 934.
- ④ T. Miyata and Y. Ebato, J. Mol. Liq., 217 (2016) 75.
- ⑤ T. Miyata and N. Yabuki, AIP adv., 9 (2019) 025310.
- ⑥ T. Miyata, “Molecular Theory of Solution for Solvation Thermodynamics”, in “Molecular Basics of Liquids and Liquid-Based Materials”, K. Nishiyama, T. Yamaguchi, T. Takamuku and N. Yoshida (Ed.) (Springer, Singapore, 2021), pp. 117-168.
- ⑦ T. Miyata and S. Miyazaki, Chem. Phys. Lett., 658 (2016) 224.
- ⑧ T. Miyata, K. Fukuma, and T. Kiuchi, J. Mol. Liq., 388 (2023) 122803.
- ⑨ A. E. Kobryn, S. Gusarov, and A. Kovalenko, J. Phys.: Condens. Matter, 28 (2016) 404003.
- ⑩ T. Miyata, Y. Funahara, S. Omori, and T. Shinjo, AIP Adv., 13 (2023) 115322.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Hikasa Yusuke	4. 巻 12
2. 論文標題 Sigma enlarging bridge correction of three dimensional Ornstein-Zernike theory for solvation free energy of polyatomic solutes immersed in Lennard-Jones monatomic solvent	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 085206 ~ 085206
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0102003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Takeda M., Maruyama K., Akiyama R., Miyata T.	4. 巻 140
2. 論文標題 Integral equation study of effective attraction between like-charged particles mediated by cations: Comparison between IPY2 and HNC closures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Europhysics Letters	6. 最初と最後の頁 17001 ~ 17001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1209/0295-5075/ac94f5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Murata Shohei, Sakamoto Megumi, Sasaki Yasushi	4. 巻 12
2. 論文標題 Accuracy of some useful closure relations in combination with the reference interaction site model theory for fluids of single component diatomic molecules	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 035248 ~ 035248
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0085014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Miyata Tatsuhiko	4. 巻 755
2. 論文標題 Sigma enlarging bridge function for heteronuclear Lennard-Jones diatomic solute solvated in a Lennard-Jones monatomic solvent in terms of the parameter transferability	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 137777 ~ 137777
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2020.137777	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Yabuki Naoya, Leung Jackie	4. 巻 49
2. 論文標題 Transferability of Sigma Enlarging Bridge Function for Lennard-Jones Diatomic Solute Using Monatomic Solvent Correlation Obtained from Molecular Dynamics Simulation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1372 ~ 1375
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200521	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Nishida Shunsuke, Ogasawara Yu	4. 巻 11
2. 論文標題 Extending correlation functions of molecular dynamics simulation by Kovalenko?Hirata and Kobryn?Gusarov?Kovalenko closures for monatomic Lennard-Jones solvent and its application to a calculation of solvation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 025026 ~ 025026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0043388	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Ogasawara Yu, Fujii Takahiro, Yano Daigo, Ebato Yuki	4. 巻 290
2. 論文標題 An assessment of the sigma enlarging bridge function for a Lennard-Jones solution using a solvent-solvent correlation function obtained from molecular dynamics simulation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2019.111167	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Tange Kentaro	4. 巻 700
2. 論文標題 Performance of Kobryn-Gusarov-Kovalenko closure from a thermodynamic viewpoint for one-component Lennard-Jones fluids	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 88 ~ 95
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2018.04.013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uto Takuya, Kodama Yuta, Miyata Tatsuhiko, Yui Toshifumi	4. 巻 190
2. 論文標題 Molecular dynamics simulations of theoretical cellulose nanotube models	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 331 ~ 338
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2018.03.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyata Tatsuhiko, Yabuki Naoya	4. 巻 9
2. 論文標題 A study on the transferability of the sigma enlarging bridge function for an accurate evaluation of solvation free energy: The case of homonuclear Lennard-Jones diatomic solute solvated in a Lennard-Jones monatomic solvent	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 025310 ~ 025310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5087935	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuhiko Miyata	4. 巻 90
2. 論文標題 A Parameterization of Empirical Sigma Enlarging Bridge Correction of Kovalenko-Hirata Closure in Ornstein-Zernike Theory for Lennard-Jones Fluids	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 1095-1104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20170203	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuhiko Miyata and Yuki Ebato	4. 巻 245
2. 論文標題 Correction of Kovalenko-Hirata closure in Ornstein-Zernike integral equation theory for Lennard-Jones fluids	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Molec. Liquids	6. 最初と最後の頁 2-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2017.05.134	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuhiko Miyata and Yuki Ebato	4. 巻 217
2. 論文標題 Thermodynamic significance to correct the location of first rising region in radial distribution function approximately estimated from Ornstein-Zernike integral equation theory for Lennard-Jones fluids	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Molec. Liquids	6. 最初と最後の頁 75-82
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2015.11.054	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuki Ebato and Tatsuhiko Miyata	4. 巻 6
2. 論文標題 A pressure consistent bridge correction of Kovalenko-Hirata closure in Ornstein-Zernike theory for Lennard-Jones fluids by apparently adjusting sigma parameter	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 AIP advances	6. 最初と最後の頁 55111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4950703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuhiko Miyata and Sanae Miyazaki	4. 巻 658
2. 論文標題 Accuracy of Temperature-Derivative of Radial Distribution Function Calculated under Approximations in Ornstein-Zernike Theory for One-Component Lennard-Jones Fluid	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 224-229
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2016.06.049	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata and Yusuke Hikasa
2. 発表標題 Application of the sigma enlarging bridge correction to polyatomic solutes solvated in Lennard-Jones monatomic solvent
3. 学会等名 The 15th Mini-Symposium on Liquids (MSL2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮田竜彦・木内竜大・福間和輝・高橋侑己
2. 発表標題 多原子溶質周りでの単原子LJ溶媒の分布関数を角度平均するための近似法の提案
3. 学会等名 第44回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata
2. 発表標題 Development of concepts and bridge functions to improve the accuracy of solvation free energy for molecular liquids
3. 学会等名 Pacifichem 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata and Tatsuhiro Kiuchi
2. 発表標題 Integral equation theory for describing the solvation of heteronuclear LJ diatomic solute in LJ monatomic solvent
3. 学会等名 The 13th Mini-Symposium on Liquids (MSL2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮田竜彦・坂本萌・佐々木康
2. 発表標題 RISM理論における二原子分子流体の熱力学量の精度に関する研究
3. 学会等名 第42回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata and Naoya Yabuki
2. 発表標題 Accuracy of OZ Theory: Solvation Free Energy of LJ Diatomic Solute in LJ Solvent
3. 学会等名 The 12th Mini-Symposium on Liquids (MSL2018)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata, Takahiro Fujii, Daigo Yano, Yu Ogasawara and Yuki Ebato
2. 発表標題 Sigma enlarging bridge correction for an accurate evaluation of solvation free energy of Lennard-Jones fluids: an attempt to utilize molecular simulation in preparing solvent-solvent correlation function
3. 学会等名 EMLG-JMLG Annual Meeting 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮田竜彦
2. 発表標題 OZ系の積分方程式理論から求まる溶媒和自由エネルギー高精度化の試み
3. 学会等名 研究会「凝縮系の理論化学」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata, Takahiro Fujii, Daigo Yano, Yu Ogasawara and Yuki Ebato
2. 発表標題 SEB correction to improve the accuracy of solvation free energy for LJ fluids: an attempt to prepare solvent-solvent correlation function by MD simulation
3. 学会等名 日本化学会第99春季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata
2. 発表標題 Accuracy of solvation free energy evaluated from Ornstein-Zernike integral equation theory for Lennard-Jones solvent system
3. 学会等名 International Workshop on Stat-Mech of Liquids (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 宮田竜彦・矢吹直哉
2. 発表標題 Ornstein-Zernike型積分方程式理論に基づく溶媒和自由エネルギーの高精度化
3. 学会等名 第66回高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 宮田竜彦・矢吹直哉
2. 発表標題 OZ理論による溶媒和自由エネルギーの精度：LJ 溶媒へのLJ 等核二原子分子の溶媒和について
3. 学会等名 第40回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 宮田竜彦・矢吹直哉
2. 発表標題 Ornstein-Zernike 理論に基づく溶媒和自由エネルギー高精度化の試み
3. 学会等名 第31回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata and Naoya Yabuki
2. 発表標題 Accuracy of solvation free energy evaluated from Ornstein-Zernike integral equation theory
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮田竜彦
2. 発表標題 OZ理論における近似がLJ系の熱力学量に及ぼす影響
3. 学会等名 研究会「分子を使った寄せ木細工」～自己組織化したソフトマテリアルが織りなす「かたち」と機能～（招待講演）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Tatsuhiko Miyata and Yuki Ebato
2. 発表標題 Correction of Kovalenko-Hirata closure in Ornstein-Zernike integral equation theory for Lennard-Jones fluids
3. 学会等名 EMLG-JMLG Annual Meeting 2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 宮田竜彦
2. 発表標題 OZ理論から求まる溶媒和自由エネルギーの高精度化の試み
3. 学会等名 第39回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 宮田竜彦
2. 発表標題 OZ理論における近似が溶媒和自由エネルギーに及ぼす影響：LJ溶媒の場合
3. 学会等名 スーパーコンピューターワークショップ2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 宮田竜彦
2. 発表標題 OZ系積分方程式理論を用いた溶媒和の計算：ミセルへの応用へ向けて
3. 学会等名 高分子学会九州支部フォーラム（招待講演）
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 宮田竜彦・吉田紀生	4. 発行年 2016年
2. 出版社 テクノシステム	5. 総ページ数 4
3. 書名 材料表面の親水・親油の評価と制御設計 第8章 第10節	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------