

令和 2 年 6 月 6 日現在

機関番号：32644

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05522

研究課題名(和文) 氷結および非氷結水溶液の液体からガラス状態への動的階層構造

研究課題名(英文) Dynamically heterogeneous structure from liquid to glass in crystalline and non-crystalline aqueous solutions

研究代表者

新屋敷 直木 (Shinyashiki, Naoki)

東海大学・理学部・教授

研究者番号：00266363

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：様々なたんぱく質、高分子水溶液の、高分子濃度60 wt.%以上の氷結しない水溶液と、高分子濃度が低く氷結する水溶液の10 mHz - 50 GHzの周波数域、室温から-150 °Cの温度域で広帯域誘電分光(BDS)測定を行った。氷結しない水溶液では主に水の局所的な分子運動に起因する緩和と高分子のガラス転移現象に関係する緩和が観測され、これらの緩和の特徴と互いの関係を明らかにした。氷結した水溶液では、不凍水、氷、水和した高分子またはたんぱく質の分子運動による緩和が観測された。さらに氷の緩和が複数存在することを明らかにした。また、水和した溶質の緩和と界面分極の関係を高分子水溶液で明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来得られてきた、氷結しない水溶液の分子運動に関する普遍性・物質依存性に関する知見を、他ではほとんど行われていない氷結水溶液の誘電緩和現象に拡張した。その結果、水の緩和時間の温度依存性の特異的挙動、溶質のガラス転移温度と水分子運動の関係などを、氷結した水溶液で解明した。さらに、水溶液中の氷の分子運動による緩和の特徴を、ゼラチン、球状たんぱく質、高分子水溶液で明らかにした。本研究成果により、低温で水や氷の分子運動をコントロールできる技術が得られる可能性を示した。分子運動速度は物質の経時変化速度を直接左右するため、医療における低温臓器保存、食品の低温・乾燥保存、素材開発などへの利用が期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, the cooperative molecular dynamics of polymer or protein, ice, and uncrystallized water in partially crystallized water mixtures with various proteins and polymers were investigated by means of broadband dielectric spectroscopy (BDS). Three relaxation processes originated from polymer or protein, ice and uncrystallized water were observed at temperatures ranging from immediately below the crystallization temperature, T_c . Below approximately 180 K, relaxation process of ice separates into two or more processes. In partially crystallized mixtures, the relaxation process of uncrystallized water in an uncrystallized phase with polymer or protein and the alpha process of polymer in the uncrystallized phase were observed in 40 and 50 wt % polymer-water mixtures. For mixtures with 30 wt % polymer or less, the relaxation process is attributed not only to the alpha process of polymer but also to interfacial polarization.

研究分野：数物系科学

キーワード：誘電緩和 水溶液 ガラス転移 氷 高分子 ゼラチン 協同運動 階層構造

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

氷結しない低含水率の様々な物質の水溶液で、約 200K 以上の温度域で活性化エネルギーが温度の低下と共に増加する水の緩和時間の温度依存性が、より低温では活性化エネルギー一定に変化する non-Arrhenius / Arrhenius 転移 (non-A / A 転移) が観測された。近年のタンパク質のダイナミクスに関する研究では、NMR、中性子散乱、熱測定を用いたタンパク質の分子運動に関する研究が盛んである。しかし、中性子散乱でタンパク質分子のガラス転移に関する分子運動として解釈されていた平均自乗変位が、実は水分子運動であると指摘され、さらに中性子散乱でも non-A/A 転移が議論されていたが、実際は時間窓の限界による間違いであることが示された。このように時間窓の狭さによる限界は、常にタンパク質のダイナミクスの正確な理解を阻んできたため、広い時間域における水と溶質の分子運動の同時計測の意味は非常に大きい。

申請者らは 15 桁以上の周波数 (時間) 域の広帯域誘電分光法 (Broadband Dielectric Spectroscopy: BDS) を用い、氷結しない含水率 40% 以下の比較的低分子量物質の水溶液で、水と溶質の分子運動による緩和を液体からガラス状態までの広い温度 (80 ~ 298K) 周波数 (10 μ Hz ~ 10 GHz) 範囲で観測した。そこでは、水分子運動の速い緩和と、溶質と水分子のゆっくりとした協同的運動による緩和の 2 種類の分子運動があり、水の緩和の non-A / A 転移が緩和のガラス転移温度で起こる等、緩和と緩和の密接な関係を実験と理論で解明した。

低温で氷結した水溶液は「液体状態の溶質と水の濃厚溶液」と「氷」の 2 相に分離し複雑であることから、分子運動に関する議論はほとんど行われていなかった。氷結した 20 wt% 牛血清アルブミン (BSA) 水溶液の熱測定で、110K、135K、200K にガラス転移が観測された (Kawai, K. 他. *Biophys. J.*, 90, 3732 (2006).) ため、我々は氷結した BSA 水溶液の BDS 測定を行い、「不凍水」、「氷」、「水和タンパク質」の 3 つの緩和を観測し、熱測定で観測されたガラス転移に関する分子運動を確認した。さらに数種類のタンパク質水溶液で、系統的に同様な現象を捉えた。この様な氷結水溶液で観測される不凍水の分子運動と、その低周波数側で観測されるガラス転移に関する分子運動を同時に観測し、両者の関係を示した研究は、我々の BSA やゼラチン水溶液等の BDS 測定を用いた研究のみである。

2. 研究の目的

これまでに得られてきた比較的低分子量の溶質の観測結果と、本研究で観測した合成高分子およびタンパク質水溶液の結果を比較し、下記の事柄を明らかにする。

A) 水の緩和と溶質の緩和を同時に観測し 2 つの緩和の強度の温度依存性を得る。これまでに得られた低分子量分子水溶液の緩和と比較する。

B) より高温でガラス転移が起こる高分子水溶液を用い、ガラス転移温度と non-A / A 転移の関係を調べる。この転移が水の第 2 臨界点 225 K と関係するのか、あるいは水和した溶質分子のガラス転移温度に依存するのかを調べ、いずれとの関係が深いかを明らかにする。

C) 「水の分子運動における特異的な性質とは何か」を水以外の液体を用いた溶液と比較し明らかにする。

D) 「高含水率で氷結した水溶液」と「低含水率の氷結しない水溶液」中の不凍水緩和を比較し、これまでほとんど議論されていなかった氷結した水溶液中の複雑な挙動の普遍性と物質構造依存性を、氷結しない水溶液の知見を基に明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 氷結しない合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 A, B, C の検討)

広い Tg の範囲の高分子水溶液を用い、BDS 測定により non-A / A 転移とガラス転移温度の関係を調べた。合成高分子は poly(vinyl pyrrolidone) PVP、poly(vinylmethyl ether) PVME、電解質高分子の poly(ethylene imine) PEI を用いた。これらの Tg は、それぞれ約 440K、250K、220K と大きく異なる。高分子濃度は PVP 濃度 60 ~ 70 wt.% の PVP 水溶液、PVME 水溶液は PVME 濃度 75% ~ 100 wt.%、PEI 水溶液は PEI 濃度 60 ~ 100 wt.% の氷結しない濃度である。Tg と non-A/A 転移温度を比較すると共に、高分子の緩和と水の緩和の特徴および 2 つの緩和の関係を調べた。

(2) 氷結するタンパク質水溶液の BDS 測定 (研究目的 C, D の検討)

タンパク質水溶液は、濃度 60% 以上の均一な水溶液の調製が困難であり、イオンが多く直流電気伝導の影響で、タンパク質の分子運動による緩和の観測が困難であるが、氷結した水溶液では、水の緩和、タンパク質の緩和、氷の緩和の観測が可能となる。

試料は球状タンパク質で多くの研究で用いられてきた、牛血清アルブミン (BSA)、リゾチウムを用いた。また、球状タンパク質と合成高分子の間の物質としてゼラチンを用いた。BSA とゼラチンは限られた濃度の研究成果があったが、本研究で濃度範囲を広げ濃度依存性を調べた。溶質濃

度 10 wt.% から、均一な水溶液が調整可能な 50 wt.% 程までの水溶液を調製し BDS 測定を行った。また、10 wt.% ゼラチン水溶液では氷の緩和が純水から得た氷の緩和と大きく異なることから、ゼラチン濃度 5~1 wt.% を 1 wt.% 刻みで詳しく調べ、純水の氷からどのように 10wt.% ゼラチン水溶液で観測された氷へと変化するかを調べた。

(3) 氷結する合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 C, D の検討)

上記(1), (2) の様に、氷結しない水溶液は合成高分子のみを、氷結する水溶液はタンパク質のみを用いると、「氷結の影響」あるいは「合成高分子とタンパク質の違い」によるものかが分離できないため、合成高分子水溶液についても氷結する濃度の BDS 測定を行った。試料は上記(1)で使用した PVP、PEI 水溶液 (高分子濃度 10 wt.%~60 wt.%) の BDS 測定を行った。

(4) 水以外の溶媒の合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 C の検討)

様々な水溶液で non-A/A 転移が観測されているが、水以外の水素結合性液体で、non-A/A 転移の有無を調べた。合成高分子として様々な液体に可溶な PVP を用い、propanol、propylene glycol、ethylene glycol を溶媒とした PVP アルコール溶液の BDS 測定を行った。水溶液で凍結しない PVP 濃度 65%の溶液を用い、水溶液との違いを調べた。

4. 研究成果

(1) 氷結しない合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 A, B, C の検討)

氷結しない濃度の PVP, PEI, および PVME 水溶液で、主に水と高分子の分子運動に起因する緩和が全ての高分子水溶液で本研究によってはじめて同時に観測された。低周波側の水和した高分子の緩和のガラス転移温度で、高周波側の水の緩和の緩和時間の温度依存性が変化する non-A/A 転移が観測され、高分子と水の分子運動の速さが何ヶタも異なっているにもかかわらず高分子と水の分子運動が互いに影響を及ぼしていることを明らかにした。

(2) 氷結するたんぱく質水溶液の BDS 測定 (研究目的 C, D の検討)

ゼラチン、牛血清アルブミン (BSA)、リゾチウム水溶液について、たんぱく質濃度 40 wt.%以下の氷結する水溶液の 10 mHz - 50 GHz の周波数域、室温から -150 の温度域の BDS 測定を行った。氷結した水溶液で、不凍水、氷、水和したたんぱく質の分子運動による緩和が観測された。さらに水溶液で複数の氷の緩和の存在を明らかにした。

ゼラチン濃度 1-5wt%のゼラチン水溶液の温度を 123-298 K の間で変化させ、広帯域誘電分光 (BDS) 測定を行った。273 K の水の融点から 220 K の範囲で氷の緩和が一つ観測されたが、225K 以下で氷の緩和が最大 4 つに分離した。これらの緩和の温度・濃度依存性より、ゼラチンの存在によって氷の形成速度に時間がかかり、氷の緩和時間に影響を与えられることがわかった。

BSA 水溶液とリゾチウム水溶液で含水率 90-60 wt.%の水溶液の BDS 測定を 10 mHz - 10 MHz の周波数域、室温から -150 の温度域で行った。両水溶液で不凍水、氷、水和たんぱく質によると思われる 3 つの緩和が観測された。これら球状たんぱく質水溶液でも低温で氷の緩和が複数に分離することが明らかになった。

(3) 氷結する合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 C, D の検討)

poly(vinyl pyrrolidone) PVP, poly(ethylene imine)PEI, poly(vinyl methyl ether) PVME, poly(ethylene glycol)PEG の水溶液について、高分子濃度およそ 60 wt.%以上の氷結しない高分子水溶液と、高分子濃度が低く氷結する高分子水溶液の 10 mHz - 50 GHz の周波数域、室温から -150 の温度域での BDS 測定を行った。

低温で氷結した PEG 水溶液では、不凍水、PEG と共晶を形成する水、水だけで結晶化する水の 3 種類の水が観測された。氷結する濃度の PVP、PVME、および PEI 水溶液では氷結温度以下で不凍水、氷、水和した高分子の分子運動に起因する緩和が観測された。氷結した水溶液で複数の氷の緩和が観測され、不凍水の緩和は低温で氷の緩和の速さと同等になり、強度の大きな氷の緩和に隠れていることが明らかになった。また、これまで水和した高分子の緩和は界面分極が重なっている特徴を示したが、PVP 水溶液で PVP の分子運動と界面分極の関係を明らかにした。

X 線回折測定：低温で氷結する PVP 水溶液とフルクトース水溶液を室温から -170 付近まで急冷し、X 線回折測定を行い、これらの水溶液中に含まれる氷の結晶構造解析を行った。急冷したこれらの水溶液では氷 I_h に加え氷 I_c が存在し、含水率によって変化する I_h と I_c の割合を見積もることができた。

(4) 水以外の溶媒の合成高分子水溶液の BDS 測定 (研究目的 C の検討)

水溶液と比較するため propanol、propylene glycol、ethylene glycol の 65 wt.% PVP 溶液の BDS 測定を行った。PVP 水溶液では PVP の緩和と水の 2 種類の緩和が同時に観測され、速い水の緩和時間は PVP の緩和のガラス転移温度 (T_g PVP) で non-A/A 転移を示した。一方、PVP アルコール溶液でも PVP の緩和が観測された。T_g PVP 以上で 1 つアルコールの緩和が観測され

たが、 T_g PVP 以下で 2 または 3 つの緩和に分離した。アルコール溶液では PVP のガラス転移温度付近ではなく、緩和時間が大きい溶媒の緩和のガラス転移温度付近で、速い溶媒の緩和で non-A/A 転移が現れることがわかった。この結果は水と高分子の協同運動性が、アルコールと高分子の協同運動性と異なることが示唆され、水の他の物質との協同運動性が、水の特異的性質である可能性を示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 14件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 K. Sasaki, K. Bandai, M. Takatsuka, M. Fujii, M. Takagi, R. Kita, S. Yagihara, H. Kimura, N. Shinyashiki	4. 巻 8
2. 論文標題 Heterogeneous solvent dielectric relaxation in polymer solutions of water and alcohols	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Frontiers in Physics	6. 最初と最後の頁 84-1, 84-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3389/fphy.2020.00084	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 Fujii Mitsuki, Sasaki Kaito, Matsui Yurika, Inoue Shiori, Kita Rio, Shinyashiki Naoki, Yagihara Shin	4. 巻 1224
2. 論文標題 Dynamics of Uncrystallized Water, Ice, and Hydrated Polymer in Partially Crystallized Poly(vinylpyrrolidone)-Water Mixtures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 1521-1530
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.9b11552	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 Kaito Sasaki, Masanobu Takatsuka, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara	4. 巻 51
2. 論文標題 Enthalpy and Dielectric Relaxation of Poly(vinyl methyl ether)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Macromolecules	6. 最初と最後の頁 5806-5811
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.macromol.8b00780	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 佐々木海渡, 新屋敷直木	4. 巻 45
2. 論文標題 純水および部分的に氷結した水溶液中の氷の誘電緩和	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 熱測定	6. 最初と最後の頁 124-128
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 藤井慎季, 安川裕生, 高塚将伸, 三澤寿之, 伊藤建, 新屋敷直木	4. 巻 54
2. 論文標題 X線回折法による氷結したPoly (vinyl pyrrolidone)水溶液中の氷の結晶構造に関する研究	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 東海大学紀要 理学部	6. 最初と最後の頁 71-85
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 安川裕生, 藤井慎季, 高塚将伸, 三澤寿之, 伊藤建, 新屋敷直木	4. 巻 54
2. 論文標題 X線回折法による氷結したフルクトース水溶液中の氷の結晶構造に関する研究	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 東海大学紀要 理学部	6. 最初と最後の頁 55-69
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Yasuda Takahito, Sasaki Kaito, Kita Rio, Shinyashiki Naoki, Yagihara Shin	4. 巻 121
2. 論文標題 Dielectric Relaxation of Ice in Gelatin-Water Mixtures	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 2896 ~ 2901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1021/acs.jpcc.7b00149	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 Miyara Masahiko, Takashima Ikeru, Sasaki Kaito, Kita Rio, Shinyashiki Naoki, Yagihara Shin	4. 巻 49
2. 論文標題 Dynamics of uncrystallized water in partially crystallized poly(ethylene glycol)-water mixtures studied by dielectric spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Polymer Journal	6. 最初と最後の頁 511 ~ 518
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1038/pj.2017.15	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 Takahito Yasuda, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara	4. 巻 121
2. 論文標題 Dielectric Relaxation of Ice in Gelatin - Water Mixtures	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 2896-2901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b00149	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 Masahiko Miyara, Ikeru Takashima, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Dynamics of Un-crystallized Water in Partially Crystallized Poly(ethylene glycol) - Water Mixtures Studied by Dielectric Spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Polymer Journal	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/pj.2017.15	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 Kaito Sasaki, Anna Panagopoulou, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara, Apostolos Kyritsis, Polycarpos Pissis	4. 巻 121
2. 論文標題 Dynamics of Un-crystallized Water, Ice, and Hydrated Protein in Partially Crystallized Gelatin-Water Mixtures Studied by Broadband Dielectric Spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 265-272
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b04756	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 該当する

1. 著者名 Andreas T. Stathopoulos, Apostolos Kyritsis, Naoki Shinyashiki, José Luis Gömez-Ribelles, and Polycarpos Pissis	4. 巻 120
2. 論文標題 Effects of Solvent Crystallization in Swollen net-Poly(ethyl acrylate) Relaxation Dynamics	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 13206-13217
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b09922	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 該当する

1. 著者名 Kaito Sasaki, Yurika Matsui, Masahiko Miyara, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, and Shin Yagihara	4. 巻 120
2. 論文標題 Glass Transition and Dynamics of Polymer and Water in Poly(vinyl pyrrolidone)-Water Mixture Studied by Dielectric Relaxation Spectroscopy	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 6882-6889
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b05347	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 Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, and Shin Yagihara	4. 巻 120
2. 論文標題 Dielectric relaxation time of ice Ih with different preparation	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 3950-3953
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b01218	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48件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 11件)

1. 発表者名 小田切李沙, 塚原達也, 藤井慎季, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法による氷結したリゾチーム水溶液の分子運動
3. 学会等名 H2Oを科学する2019, 北海道大学低温科学研究所
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 塚原達也, 小田切李沙, 藤井慎季, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法によるウシ血清アルブミン水溶液の氷結状態における分子運動
3. 学会等名 H2Oを科学する2019, 北海道大学低温科学研究所
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤井慎季, 松井ゆりか, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 誘電分光法による氷結したPoly(vinyl pyrrolidone)水溶液の氷の誘電緩和現象
3. 学会等名 H2Oを科学する2019, 北海道大学低温科学研究所
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 液体からガラス状態のPoly (vinyl methyl ether)水溶液における水と高分子の誘電緩和
3. 学会等名 H2Oを科学する2019, 北海道大学低温科学研究所
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小田切李沙, 塚原達也, 藤井慎季, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 誘電分光法による氷結したリゾチーム水溶液の分子ダイナミクス
3. 学会等名 2019SASシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 塚原達也, 小田切李沙, 藤井慎季, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法による氷結状態のウシ血清アルブミン水溶液の分子運動
3. 学会等名 2019SASシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤井慎季, 萬代健太, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 Poly(vinyl pyrrolidone)-propylene glycol 溶液の高分子とアルコールの誘電緩和
3. 学会等名 2019SASシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木海渡, 高塚将伸, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 ポリビニルメチルエーテルのエンタルピー緩和と誘電緩和
3. 学会等名 東京大学物性研究所短期研究会 ガラス転移と関連分野の最先端研究
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤井慎季, 萬代健太, 高塚将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 Poly(vinyl pyrrolidone)アルコール溶液と水溶液における溶質と溶媒の誘電緩和とガラス転移
3. 学会等名 東京大学物性研究所短期研究会 ガラス転移と関連分野の最先端研究
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高塚将伸, 井上紫央里, 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法によるPoly (ethylene imine)水溶液の液体からガラス状態における高分子と水の分子ダイナミクス
3. 学会等名 東京大学物性研究所短期研究会 ガラス転移と関連分野の最先端研究
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 新屋敷直木, 萬代健太, 高塚 将伸, 佐々木海渡, 喜多理王, 八木原晋
2. 発表標題 高分子溶液中の水とアルコールの誘電緩和とガラス転移
3. 学会等名 東京大学物性研究所短期研究会 ガラス転移と関連分野の最先端研究 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木海渡, 喜多理王, 新屋敷直木, 八木原晋
2. 発表標題 高分子水溶液のエンタルピー緩和と誘電緩和
3. 学会等名 H2Oを科学する・2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Fujii, Y. Yasukawa, M. Takatsuka, T. Misawa, T. Ito, and N. Shinyashiki
2. 発表標題 Structure of Ice in Frozen Water Mixtures of Poly(vinyl pyrrolidone) and Fructose Studied by X-ray Diffraction
3. 学会等名 10th Meeting of Tokai University Micro/Nano Enlightenment (Tune10) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Fujii, Y. Matsui, K. Sasaki, R. Kita, N. Shinyashiki, and S. Yagihara
2. 発表標題 Broadband dielectric spectroscopy of partially crystallized poly(vinyl pyrrolidone)-water mixtures
3. 学会等名 10th Meeting of Tokai University Micro/Nano Enlightenment (Tune10) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木 海渡, 高塚 将伸, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 高分子水溶液の誘電緩和とエイジングによるエンタルピー緩和
3. 学会等名 高分子の物性測定とその応用, 京都工芸繊維大学
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 新屋敷 直木, 萬代 健太, 高塚 将伸, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 八木原 晋
2. 発表標題 溶液中の高分子鎖のガラス転移と水とアルコールの多様な誘電緩和
3. 学会等名 高分子の物性測定とその応用, 京都工芸繊維大学 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 井上 紫央里, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 誘電分光法によるPoly(ethyleneimine)水溶液の分子運動の温度および濃度依存性
3. 学会等名 第55回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤井 慎季, 萬代 健太, 高塚 将伸, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 Poly(vinyl pyrrolidone)アルコール溶液における液体からガラス状態までの高分子およびアルコールの誘電緩和
3. 学会等名 第55回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐々木 海渡, 高塚 将伸, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 ポリビニルメチルエーテル水溶液のエイジングと分子ダイナミクス
3. 学会等名 熱測定討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 安川 裕生, 藤井 慎季, 木村 紗英, 高塚 将伸, 三澤 寿之, 伊藤 建, 新屋敷 直木
2. 発表標題 氷結したFructose水溶液のX線構造解析
3. 学会等名 17 SAS Symposium (29th)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 井上 紫央里, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 誘電分光法による氷結したPoly(ethylene imine)水溶液の氷の緩和現象
3. 学会等名 17 SAS Symposium (29th)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤井 慎季, 萬代 健太, 高塚 将伸, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 誘電分光法によるPoly(vinyl pyrrolidone)アルコール溶液における分子ダイナミクス
3. 学会等名 17 SAS Symposium (29th)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 高塚 将伸, 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 誘電分光測定によるPoly(vinyl methyl ether)水溶液の水と高分子の分子運動とガラス転移
3. 学会等名 17 SAS Symposium (29th)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐々木 海渡, 喜多 理王, 新屋敷 直木, 八木原 晋
2. 発表標題 氷1hの誘電緩和時間
3. 学会等名 氷、水、クラスレートの物理化学に関する研究集会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masahiko Miyara, Ikeru Takashima, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Dynamics of water and ice in poly(ethylene glycol)-water mixtures studied by dielectric spectroscopy
3. 学会等名 Micro/Nano Technology Center International Symposium
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masanobu Takatsuka, Kenta Bandai, Mitsuki Fujii, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Glass Transition and Dynamics of Polymer and Solvents in Poly(vinyl pyrrolidone) Solutions Studied by Broadband Dielectric Spectroscopy
3. 学会等名 Micro/Nano Technology Center International Symposium
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shiori Inoue, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Dynamics in Poly(ethylene imine)-Water Mixtures at Subzero temperatures Studied by Broadband Dielectric Spectroscopy
3. 学会等名 Micro/Nano Technology Center International Symposium
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masanobu Takatsuka, Kaito Sasaki, Naoki Shinyashiki, Rio Kita, Shin Yagihara
2. 発表標題 Glass Transition of Water and Polymer in Poly (vinyl methyl ether)-Water Mixtures by Broadband Dielectric Spectroscopy
3. 学会等名 8th International Discussion Meeting on Relaxation in Complex Systems (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masahiko Miyara, Ikeru Takashima, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Dielectric Relaxation of Water and Ice in Partially Crystallized Poly (ethylene glycol)-Water Mixtures
3. 学会等名 8th International Discussion Meeting on Relaxation in Complex Systems (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kaito Sasaki, Takahito Yasuda, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Glass Transition and Dynamics of Uncrystallized Water, Ice and Hydrated Gelatin Studied by Broadband Dielectric Spectroscopy
3. 学会等名 8th International Discussion Meeting on Relaxation in Complex Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Naoki Shinyashiki, Kenta Bandai, Masanobu Takatsuka, Kaito Sasaki, Rio Kita, Shin Yagihara
2. 発表標題 The non-Arrhenius-Arrhenius transition in polymer solution is the unique to water or not
3. 学会等名 8th International Discussion Meeting on Relaxation in Complex Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 高塚将伸、前田巧、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法によるPoly(vinyl methyl ether)水溶液における水と高分子のガラス転移3
3. 学会等名 日本物理学会第72回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 井上 紫央里、佐々木 海渡、喜多 理王、新屋敷 直木、八木原 晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法による氷結したPoly(ethylene imine)水溶液の分子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第72回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 井上紫央里、松井ゆりか、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 Poly(ethylene imine)水溶液の液体からガラス状態における水と高分子のダイナミクス
3. 学会等名 氷、水、クラスレートの物理化学に関する研究集会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法による細孔中の過冷却水の分子ダイナミクス
3. 学会等名 の名 氷、水、クラスレートの物理化学に関する研究集会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 井上紫央里、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 部分的に氷結したPoly(ethylene imine)水溶液の氷および水の誘電緩和
3. 学会等名 第54回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 前田巧、高塚将伸、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 誘電分光法を用いたPoly(vinyl methyl ether)水溶液の液体構造
3. 学会等名 第54回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 高塚将伸、前田巧、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 液体からガラス状態におけるPoly(vinyl methyl ether)水溶液の水と高分子の誘電緩和
3. 学会等名 第54回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐々木海渡、安田隆人、松井ゆりか、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 高分子水溶液中の氷の誘電緩和時間
3. 学会等名 第54回高分子と水に関する討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Masanobu Takatsuka, Takumi Maeda, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Glass Transition of Water and Polymer in Poly (vinyl methyl ether)-Water Mixtures
3. 学会等名 The 11th SPSJ International Polymer Conference (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Takahito Yasuda, Yurika Matsui, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara
2. 発表標題 Dielectric Relaxation Time of Ice-Ih in Partially Crystallized Polymer Aqueous Mixtures
3. 学会等名 The 11th SPSJ International Polymer Conference (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 井上紫央里、松井ゆりか、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 Poly(ethylene imine)水溶液の液体からガラス状態における分子ダイナミクス
3. 学会等名 28th '16 SAS Symposium
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 木村紗英、安田隆人、井上紫央里、佐々木海渡、新屋敷直木、八木原晋、喜多理王
2. 発表標題 フルクトース水溶液における氷の誘電緩和
3. 学会等名 第3回FCCAシンポジウムFCCAグライコサイエンス若手フォーラム2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 井上紫央里、松井ゆりか、佐々木海渡、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法によるPoly(ethylene imine)水溶液のガラス転移
3. 学会等名 日本物理学会 2016秋季大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 高塚将伸、佐々木海渡、前田巧、喜多理王、新屋敷直木、八木原晋
2. 発表標題 広帯域誘電分光法によるPoly(vinyl methyl ether)水溶液における水と高分子のガラス転移2
3. 学会等名 日本物理学会 2016秋季大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Kaito Sasaki、Takahito Yasuda、Yurika Matsui、Rio Kita、Shin Yagihara、Naoki Shinyashiki
2. 発表標題 Dielectric relaxation time of ice Ih in partially crystallized aqueous polymer mixtures
3. 学会等名 9th International Conference on Broadband Dielectric Spectroscopy and its Applications (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Naoki Shinyashiki, Kaito Sasaki, Rio Kita, Shin Yagihara,
2. 発表標題 Dynamics of water, solute, and ice in partially crystallized aqueous solutions studied by broadband dielectric spectroscopy
3. 学会等名 9th International Conference on Broadband Dielectric Spectroscopy and its Applications (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Masahiko Miyara, Ikeru Takashima, Kaito Sasaki, Rio Kita, Naoki Shinyashiki, Shin Yagihara,
2. 発表標題 Dielectric study of water in partially crystallized poly (ethylene glycol)-water mixtures
3. 学会等名 9th International Conference on Broadband Dielectric Spectroscopy and its Applications (国際学会)
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>RGMS 研究業績 学術論文 http://www.sp.u-tokai.ac.jp/~rgms/pub/articles.html RGMS Research Group of Molecular complex System http://www.sp.u-tokai.ac.jp/~rgms/indj01.html RGMS http://www.sp.u-tokai.ac.jp/~rgms/indj01.html 東海大学大学院総合理工学研究科 研究事例紹介 http://www.u-tokai.ac.jp/academics/graduate/science_and_technology/studycase/</p>
--

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
研究分担者	八木原 晋 (Yagihara Shin) (40191093)	東海大学・理学部・教授 (32644)	