

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 5 月 30 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07873

研究課題名(和文)セルロース系分子の溶解性の分子シミュレーションによる定量化と溶解機構の解明

研究課題名(英文) Understanding and quantification of the solubility of cellulose investigated by molecular dynamics simulation

研究代表者

上田 一義 (Ueda, Kazuyoshi)

横浜国立大学・大学院工学研究院・名誉教授

研究者番号：40223458

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：セルロースは地球上に最も豊富に存在する再生、持続可能な資源である。その実用化に向けての最大の問題点は溶媒などに対する溶解性が不十分なことにある。本研究は、セルロースのオリゴマーを用いて自由エネルギー計算による溶解性の定量化方法の確立と溶解機構の解明を行った。その結果、セルロースオリゴマーが7量体以上で溶解しないという実験結果をよく再現する自由エネルギー計算結果が得られ、溶解性を溶解自由エネルギーから評価することが可能となった。また、セルロースが水に溶解しないことの熱力学的な原因は、固体状態の解離自由エネルギーが溶媒和の自由エネルギーより大きいことが主な要因と考えられることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

セルロースは再生、持続可能な資源であるが、実用化に向けては溶媒などに対する溶解性が低い問題点がある。本研究では、セルロースのオリゴマーを用いて自由エネルギー計算による溶解性の定量化方法の確立と、溶解機構の解明を行った。溶解性はセルロース化学の基礎的な問題でありながら、その機構や溶解性の熱力学的評価は未だ解明されていなかった問題であり、溶解自由エネルギーにより溶解性が精度よく評価できたことは、今後のセルロース科学の基盤情報を与えるものとして学術的意義があるのみならず、今後のセルロースの溶解性向上を検討するうえで、有益な指針を示すものとする。

研究成果の概要(英文)：Cellulose is one of the most abundant renewable resources and the research for the application of it as a future energy and new materials has been performing for long years. However, there still exist some unsolved problems even in the basic properties of it. One of such problem is the solubility of cellulose in water. In this work, molecular dynamics simulation of oligomer cellulose had been performed and the dissolution free energy of cellulose oligomers in water were evaluated.

The results well reproduced the experimental behavior of the solubility of the cellulose oligomers in water. The reason of the low solubility of cellulose oligomers in water was attributed to the large contribution of the sublimation free energy compared to that of solvation free energy. That is, the dissociation of the cellulose from the amorphous solid state is the key for the dissolution of cellulose in water.

研究分野：計算機化学

キーワード：セルロース 分子動力学シミュレーション 溶解自由エネルギー 溶媒和自由エネルギー

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

セルロースは地球上に最も豊富に存在する炭化水素であり、いずれ枯渇する石油等の化石エネルギー資源に対し、再生、持続可能な資源である。しかし、現状では十分な実用の域には達していない。その最大の問題点はセルロースの溶媒などに対する溶解性が不十分なことにある。しかし、溶解の機構や溶解性の熱力学的評価は未だ不明な点が多い。セルロースの水への溶解性を例にとっても、セルロースは分子構造中に水酸基を多く持つにも関わらず、なぜ水への溶解性が低いのか、また、グルコース単位で何量体まで水に溶解するのか、といったことが未だに明確ではなく、定性的な評価にとどまり、熱力学的観点から定量的に溶解性を評価することが出来ていない。これまで長い歴史を持つセルロース研究の基礎基盤の確立の観点からも、また、セルロースの利用の推進という実用面においても、セルロースの溶解性を分子レベルで明らかにすることが必要である。

我々は、これまでにもセルロース誘導体の典型例であるセルロースアセテートを用いて、溶媒の溶媒和構造を基にした溶解性の評価を進めてきた¹⁾。セルロースアセテートは塩化メチレン溶媒に溶解するが、そこに、貧溶媒であるメタノール少量加えるとセルロースアセテートの溶解性がさらに増加することが経験的に知られていた。我々は、この機構を分子動力学シミュレーション法により、溶媒分子のセルロースアセテート周りでの溶媒和構造の観点から検討し、興味深い溶媒和構造を明らかにした。すなわち、メタノールはセルロースアセテートの周りにらせん状に強い溶媒和構造を形成している。一方、塩化メチレンは離散状に小さな球状の溶媒和が分布している。混合溶媒系ではメタノールの溶媒和構造のすきまに塩化メチレンの溶媒和が入り込み、お互いの溶媒和構造を補いあっている様子がわかった。詳細は省略するが、この溶媒和構造が溶解性向上に機能していることが明らかになり、現在、セルロース系のみでなく、ポリイミド等の高分子系の溶解性にも同様の機構が働いていることが我々の研究でわかりつつある。しかし、この機構のみからは定性的に溶解性が向上することは推察できても、各溶媒間で、溶解性の定量的な考察を行うことは困難であった。溶解性の定量的検討は熱力学的には自由エネルギー、特に溶解の過程の自由エネルギーを評価することが必要である。本研究では最近、松林により開発されたエネルギー表示溶媒和自由エネルギーの計算法 (ermod 法)²⁾ をこの問題に適用し、溶解性の定量的評価方法の確立を試みた。

2. 研究の目的

本研究では、セルロースのオリゴマー、及びセルロース誘導体のオリゴマーを用いて ermod 法を基礎とした自由エネルギー計算による溶解性の定量化方法の確立と、分子レベルでの溶媒和構造の検討による溶解機構の解明を行う。これらを同時に明らかにすることにより、溶解機構を含めた溶解性の定量的評価法を確立することを目指す。

セルロースは一般に水に不溶で、グルコース単位で見ると 7 量体あたりから水に溶解しなくなることが実験的に分かっている³⁾。セルロースはグルコース環あたり、3 個の水酸基を含んでいるが、それにもかかわらず水に溶解しない理由については明確ではない。そこで本研究では、セルロースオリゴマーの水への溶解性を分子動力学計算 (MD 計算) とエネルギー表示法 (ermod 法) を組み合わせて求めた自由エネルギーの観点から検討した。

3. 研究の方法

β -グルコースの 2, 4, 6, 8, 10 量体をセルロースオリゴマーモデルとして作成した。それぞれの一本鎖のみの溶質系、水のみ溶媒系、およびオリゴマーの一本鎖を水で満たしたボックスの中心に置いた溶液系を作成し、圧力 1 bar、温度 300.15 K の条件で各系それぞれ 100 ns, 100 ps, 10 ns の分子動力学計算を行った。その後、得られた軌跡を用いて ermod 法により溶媒和自由エネルギー、 ΔG_{hyd} を算出した。なお、計算ソフトには MD 計算に GROMACS-4.5.5 を、ermod 法による計算に ERmod-0.3.4 を、力場パラメーターにはセルロースオリゴマーに charmm36、水分子に TIP3P を用いた。

4. 研究成果

まず、室温の 300K において計算した、各種セルロースオリゴマーを水に溶解させた場合の溶媒和自由エネルギー ΔG_{hyd} を表 1 に示す。溶媒和自由エネルギーはすべてのオリゴマーで負の値を示し、水和状態が熱力学的に安定であることを示している。この値はオリゴマーの長さに依存する

表 1 セルロースオリゴマーの各自由エネルギーの残基数依存性

Number of residues	2	4	6	8	10
ΔG_{hyd} (kcal/mol)	-32.9	-52.3	-72.0	-91.4	-110.7
ΔG_{hyd} per dimer (kcal/mol)	-32.9	-26.2	-24.0	-22.8	-22.1
ΔG_{sub} (kcal/mol)	21.2	52.1	79.5	109.6	142.8
ΔG_{diss} (kcal/mol)	-11.7	-0.2	7.5	18.2	32.1

ため、それぞれ 2 量体あたりの値に換算してその残基数依存性を図 1 に示した。この図を見る

と、残基数が大きくなるにつれて2量体あたりの溶媒和自由エネルギーの値が飽和していくことがわかる。これは残基数の大きいオリゴマーほど水に対して溶解しにくくなることを示している。また残基数6あたりからは溶媒和自由エネルギーが飽和していく様子も観測される。残基数が小さい場合は末端の水酸基の寄与が大きく、6量体付近からはその寄与が少なくなり、高分子性を示すことを表しているものと思われる。

ところで、溶解とは固体状態のオリゴマーが水に溶解する過程であるが、この溶解自由エネルギー ΔG_{diss} を直接計算することは一般に困難である。そこで、固体状態のオリゴマーが一度解離し、その後、水和するという二段階の熱力学サイクルを考え、 $\Delta G_{diss} = \Delta G_{hyd} + \Delta G_{sub}$ から、溶媒和自由エネルギー ΔG_{hyd} と解離自由エネルギー ΔG_{sub} の和として溶解自由エネルギー ΔG_{diss} を求める計算を行った。本研究では解離自由エネルギーの見積もりに、**ermod**法による溶媒和自由エネルギー計算を応用することを試みた。すなわち、**ermod**法を用いてセルロースオリゴマーの固相を溶媒系、セルロースオリゴマーを溶質と見なして溶媒和自由エネルギーを計算した。この計算によって得られる溶媒和自由エネルギーはセルロースオリゴマーをその固相へ挿入する過程に対応する自由エネルギー変化である。したがって、この逆過程が固相から溶質を取り出す過程に対応する解離自由エネルギー変化、 ΔG_{sub} となる。また、この過程の中で考慮されていない固相から気相への並進エントロピー変化 ΔS_{trans} と回転エントロピー変化 ΔS_{rot} の寄与を加えることで解離自由エネルギー、 ΔG_{sub} を見積もった。実際には、固体状態として各セルロースオリゴマーを511分子含むアモルファスモデルを作成し、**ermod**法の溶媒系としてみなし、これに1分子同じオリゴマーを加えた系を溶液系として、圧力1 bar、温度300.15 Kの条件でそれぞれ80 ps、100 psの分子動力学計算を行った。得られた軌跡を用いて**ermod**法により溶媒和自由エネルギー計算の手法で溶質挿入過程の自由エネルギーを算出した。さらに、固相から気相への並進および回転エントロピー変化を加えて解離自由エネルギーとした。その結果を表1に示した。

解離自由エネルギー、 ΔG_{sub} はすべてのセルロースオリゴマーにおいて正の値となり、解離は自発変化ではないことを示している。これはオリゴマーやセルロースの固体が常温常圧において自然に気相へ昇華することはない現実と合致している。また解離自由エネルギーの値は残基数増加に伴って大きくなっており、重合度が高いほどセルロースは解離しにくくなるのがわかる。

上記の解離自由エネルギーに溶媒和自由エネルギーを足し合わせることで溶解自由エネルギー、 ΔG_{diss} を得た。その結果を他の自由エネルギーとともに表1に示した。また、その値の残基数に対する変化の様子を図2に示した。溶解自由エネルギー、 ΔG_{diss} は2、4量体では負の値、6量体以上では正の値をとっており、残基数増加に伴って正に大きくなっていることが分かる。すなわち、溶解自由エネルギーの計算からは、セルロースオリゴマーは6量体以上の高分子になると、水に溶解しなくなることを示している。この結果は7量体以上の長さではセルロースは水に溶解しないという実験結果とも良く一致しており、溶解性を自由エネルギーを用いた計算により評価することが可能になったと考えている。この結果をもとにセルロースの水への溶解性を考察した。表1において、溶媒和と解離の自由エネルギーの大きさを絶対値で比較すると、4量体以下では溶媒和自由エネルギー ΔG_{hyd} の大きさが解離自由エネルギー ΔG_{sub} に勝るものの、残基数の増加とともに解離自由エネルギーの方が大きくなっていることがわかる。このことからセルロースが水へ溶解しない主な原因は、その固相の安定性に由来する解離自由エネルギーが大きいことが原因と考えられる。すなわちこれまでのセルロース結晶に関する研究において明らかにされている、セルロースオリゴマー間に形成される水素結合及びCH/Oなどの相互作用による固相の安定化が、セルロースと水との間に

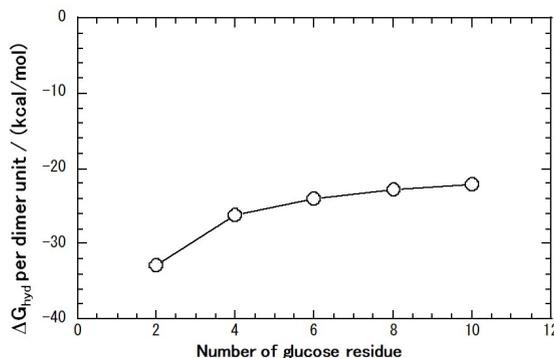


図1:セルロースオリゴマー溶媒和自由エネルギーのオリゴマー残基数依存性

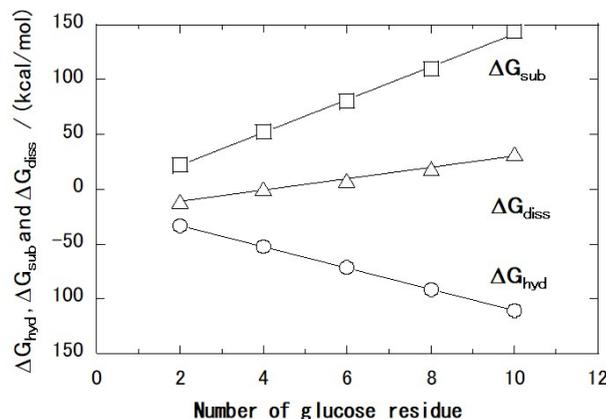


図2:セルロースオリゴマーの溶媒和、解離、および溶解自由エネルギーのオリゴマー残基数依存性

形成される水素結合を主とした相互作用による安定化に比べ大きいものであることが主な原因と考えられる。

また、上記のオリゴマーモデルについて温度を変化させた場合の溶媒和自由エネルギーの計算を行い、セルロースオリゴマーの水和過程に対応するエントロピー変化、 ΔS_{hyd} およびエンタルピー変化、 ΔH_{hyd} を求めた。温度は 280 K, 290 K, 300 K, 320 K, 340 K, 360 K の 6 点で計算した。

結果を図 3 に示した。すべてのセルロースオリゴマーにおいて温度が上がるほど溶媒和自由エネルギーの値が正に大きくなった。すなわち、温度が上がるほどオリゴマーの受ける水和が弱くなることがわかる。溶媒和自由エネルギーの温度変化は良く直線に乗っていることから、この温度範囲では、それぞれのオリゴマーにおいて、溶媒和のエントロピーとエンタルピー変化とがほぼ一定と見なして良いことがわかる。そこで熱力学的関係式、 $\Delta G_{\text{hyd}} = \Delta H_{\text{hyd}} - T\Delta S_{\text{hyd}}$ より、エントロピー変化 ΔS_{hyd} およびエンタルピー変化 ΔH_{hyd} を算出した。その結果を表 2 に示す。算出された水和エントロピー変化は 2 量体のセロビオースが最も大きな負の値を示し、約 $-0.125 \text{ kcal mol}^{-1}\text{K}^{-1}$ であり、エンタルピー変化は $-69 \text{ kcal mol}^{-1}$ 程度であった。これらの値は、グルコース残基数の増加によりわずかではあるが増加し、6 量体付近からは、水和エントロピー変化は約 $-0.104 \text{ kcal mol}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、エンタルピー変化は $-53.6 \text{ kcal mol}^{-1}$ 程度の一定値を示す。これも残基数が小さい場合は末端の水酸基の寄与が大きい、6 量体付近からはその寄与が少なくなり、高分子性を示していると思われる。また、エンタルピー変化の一定値が依然負の値を示すことは長鎖オリゴマーについても水分子と引力的な相互作用が強いことを示していると思われる。

一方、水和のエントロピー変化はすべてのオリゴマーについて負の値を示している。これは、水和によりセルロースオリゴマーの溶液がより秩序だった構造になることを示している。水和エントロピーの自由エネルギーへの寄与、 $-T\Delta S_{\text{hyd}}$ はすべてのオリゴマーで正の値を取る。このことは水和のエントロピーがセルロースオリゴマーの溶解性を低減させる方向への効果を持つことを示している。

以上、本研究ではセルロースの水への溶解性について熱力学的な観点から考察するため、セルロースのモデルとしてセルロースオリゴマーを用いて溶媒和自由エネルギー計算による検討を行った。その結果、セルロースの水への溶解性を計算による溶解自由エネルギーから評価することが可能となった。実験ではセルロースオリゴマーの 7 量体以上で溶解しないという結果が得られているが、自由エネルギー計算によりこれを良く再現する結果が得られた。また、本研究の検討結果からセルロースが水に溶解しないことの熱力学的な原因は、固体状態の解離自由エネルギーが溶媒和の自由エネルギーより大きいことが主な要因と考えられることが分かった。また、水和エントロピーの寄与が溶解に有利な水和エンタルピーの少なくない部分を打ち消していることも要因として寄与していることも明らかとなった。このことから単純にセルロース鎖と強い相互作用をする溶媒というだけがセルロースを良く溶かす溶媒の条件ではないことが裏付けられ、今後のセルロースの溶解性を検討するうえで、有益な指針を示すものと考えられる。

<引用文献>

- ① 上田一義、「次世代のポリマー・高分子開発、新しい用途展開と将来展望」技術情報協会、595-607 (2019).
- ② Matubayasi, N., et al. *J. Chem. Phys.*, **2000**, *113*, 6070.
- ③ A. Isogai, *Cellulose Commun.*, **22**, 209 (2015).

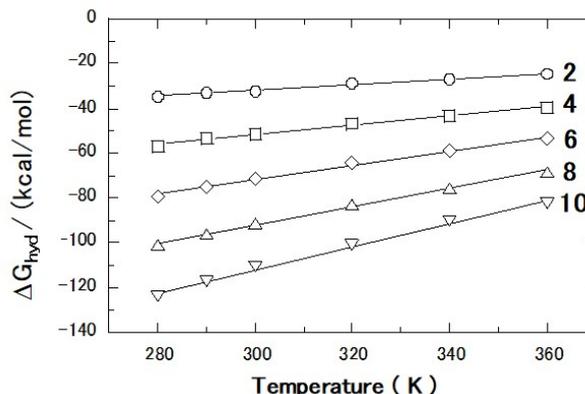


図3:異なる鎖長をもつセルロースオリゴマーの溶媒和自由エネルギーの温度依存性、図中の数字は残基数

表2 セルロースオリゴマーの水和エンタルピーとエントロピー (値は2量体換算)

Number of residues	ΔS_{hyd}	ΔH_{hyd}
	($\text{kcal mol}^{-1}\text{K}^{-1}$)	(kcal mol^{-1})
2	-0.125	-69.5
4	-0.108	-58.2
6	-0.106	-55.8
8	-0.103	-53.9
10	-0.104	-53.6

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計20件（うち査読付論文 20件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sakomura Masaru, Yokokura Yuya, Takagi Yusuke, Ueda Kazuyoshi	4. 巻 10
2. 論文標題 Effect of insertion of bathocuproine buffer layer at grating-structured cathode/organic-layer interface in bulk-heterojunction solar cells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 15144
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1063/1.5129351	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 Kanai Noriko, Honda Takumi, Yoshihara Naoki, Oyama Toshiyuki, Naito Akira, Ueda Kazuyoshi, Kawamura Izuru	4. 巻 27
2. 論文標題 Structural characterization of cellulose nanofibers isolated from spent coffee grounds and their composite films with poly(vinyl alcohol): a new non-wood source	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Cellulose	6. 最初と最後の頁 5017 ~ 5028
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1007/s10570-020-03113-w	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 Mijiddorj Batsaikhan, Matsuo Yuta, Sato Hisako, Ueda Kazuyoshi, Kawamura Izuru	4. 巻 9
2. 論文標題 A Comparative Study on Interactions of Antimicrobial Peptides L- and D-phenylseptin with 1,2-dimyristoyl-sn-glycero-3-phosphocholine	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 2601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.3390/app9132601	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 YABE Makoto, MORI Kazuki, UEDA Kazuyoshi, TAKEDA Minoru	4. 巻 5
2. 論文標題 Development of PolyParGen Software to Facilitate the Determination of Dynamics Simulation Parameters for Polymers Molecular	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan -International Edition	6. 最初と最後の頁 2018-0034
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.2477/jccjie.2018-0034	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 Hayakawa Daichi, Gouda Hiroaki, Hirono Shuichi, Ueda Kazuyoshi	4. 巻 207
2. 論文標題 DFT study of the influence of acetyl groups of cellulose acetate on its intrinsic birefringence and wavelength dependence	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 122 ~ 130
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2018.11.074	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 Kurusu Nobutaka, Asano Erika, Hatayama Yuki, Kurihara Youji, Hashimoto Toru, Funatsu Kei, Ueda Kazuyoshi, Yamaguchi Yoshitaka	4. 巻 -
2. 論文標題 A η^5 -Diketiminato-Based Pincer-Type Nickel(II) Complex: Synthesis and Catalytic Performance in the Cross-Coupling of Aryl Fluorides with Aryl Grignard Reagents	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 European Journal of Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 126 ~ 133
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejic.201801179	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 Daichi Takaki, Kenichi Ogata, Youji Kurihara, Kazuyoshi Ueda, Toru Hashimoto, Yoshitaka Yamaguchi	4. 巻 471
2. 論文標題 Synthesis and reactivity of [M(η^3 -allyl)(η^1 -ta-2-amidinato)(CO) ₂ (phosponium ylide)] (M = Mo, W): Investigation of the ligand properties of phosponium ylides	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganica Chimica Acta	6. 最初と最後の頁 310-315
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.ica.2017.11.019	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 Batsaikhan Mijidorji, Shiho Kaneda, Hisako Sato, Yuki Kitahashi, Namsrai Javkhlantugs, Akira Naito, Kazuyoshi Ueda, and Izuru Kawamura	4. 巻 1866
2. 論文標題 The role of D-allo-isoleucine in the deposition of the anti-Leishmania peptide bombinin H4 as revealed by ³¹ P solid-state NMR, VCD spectroscopy, and MD simulation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 BBA-Proteins and Proteomics	6. 最初と最後の頁 789-798
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.bbapap.2018.01.005	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 Erika Asano, Yuki Hatayama, Nobutaka Kurisu, Atsufumi Ohtani, Toru Hashimoto, Youji Kurihara, Kazuyoshi Ueda, Shinji Ishihara, Hirotaka Nagao, and Yoshitaka Yamaguchi	4. 巻 47
2. 論文標題 Acetylacetonato-based pincer-type nickel(II) complexes: Synthesis and catalysis in cross-couplings of aryl chlorides with aryl Grignard reagents	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 8003-8012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C8DT01295D	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 Yoshiteru Makino, Izuru Kawamura, Takashi Okitsu, Akimori Wada, Naoki Kamo, Yuki Sudo, Kazuyoshi Ueda, Akira Naito	4. 巻 115
2. 論文標題 Retinal configuration of ppR intermediates revealed by photo-irradiation solid-state NMR and DFT	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Biophys. J	6. 最初と最後の頁 72-83
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.bpj.2018.05.030	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 Izuru Kawamura, Hiroki Shirakata and Yumi Ozawa, Batsaikhan Mijiddorj, Kazuyoshi Ueda	4. 巻 4
2. 論文標題 Solid-state NMR characterization of the structure of self-assembled Ile-Phe-OH	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Magnetchemistry	6. 最初と最後の頁 30
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.3390/magnetochemistry4030030	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 Tohru Shibata, Satoshi Shinkura, Atsushi. Ohnishi, Kazuyoshi Ueda	4. 巻 22
2. 論文標題 Achiral molecular recognition of aromatic position isomers by polysaccharide-based CSPs in relation to chiral recognition	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 38
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/molecules22010038	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 Yusuke Murakami, Tohru Shibata, and Kazuyoshi Ueda	4. 巻 439
2. 論文標題 Discrimination between naphthacene and triphenylene using cellulose tris(4-methylbenzoate) and cellulose tribenzoate : A computational study	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Carbohydr. Res	6. 最初と最後の頁 35-43
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://dx.doi.org/10.1016/j.carres.2017.01.003	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 Norisada, Kazushi; Javkhlantugs, Namsrai; Mishima, Daisuke; Kawamura, Izuru; Saito, Hazime; Ueda, Kazuyoshi; Naito, Akira	4. 巻 121
2. 論文標題 Dynamic Structure and Orientation of Melittin Bound to Acidic Lipid Bilayers, as Revealed by Solid-State NMR and Molecular Dynamics Simulation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Part B	6. 最初と最後の頁 1802-1811
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b11207	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 Motoyasu Ozawa, Tomonaga Ozawa, and Kazuyoshi Ueda	4. 巻 74
2. 論文標題 Application of the fragment molecular orbital method analysis to fragment-based drug discovery of BET (bromodomain and extra-terminal proteins) inhibitors	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Graphics and Modelling	6. 最初と最後の頁 73-82
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://dx.doi.org/10.1016/j.jmgs.2017.02.013	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 Hitomi Miyamoto, Dmitry M. Rein, Kazuyoshi Ueda, Chihiro Yamane, and Yachin	4. 巻 24
2. 論文標題 Molecular dynamics simulation of cellulose-coated octane-in-water emulsion	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Cellulose	6. 最初と最後の頁 2699-2711
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi:10.1007/s10570-017-1290-1	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 Daichi Hayakawa, Yoshiharu Nishiyama, Karim Mazeau and Kazuyoshi Ueda	4. 巻 449
2. 論文標題 Evaluation of the hydrogen bond networks in cellulose Ib and II crystals using density functional theory and Car-Parrinello molecular dynamics	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Carbohydr. Res.	6. 最初と最後の頁 103-113
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://dx.doi.org/10.1016/j-carres.2017.07.001	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 Motoyasu Ozawa, Tomonaga Ozawa, Motohiro Nishio and Kazuyoshi Ueda	4. 巻 75
2. 論文標題 The role of CH/ interactions in the high affinity binding of streptavidin and biotin	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Graphics and Modelling	6. 最初と最後の頁 117-124
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://dx.doi.org/doi:10.1016/j-jmgs.2017.05.002	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 Yuya Yokokura, Tomomichi Dogase, Tatsuki Shinbo, Yuya Nakayashiki, Yusuke Takagi, Kazuyoshi Ueda, Khayankhyarvaa Sarangerel, Byambasuren Delgertsetseg, Chimed Ganzorig, and Masaru Sakomura	4. 巻 7
2. 論文標題 Control of indium tin oxide anode work function modified using Langmuir-Blodgett monolayer for high-efficiency organic photovoltaics	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 85321
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://dx.doi.org/10.1063/1.4993693	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 矢部誠、園部智彩、上田一義、武田穰	4. 巻 16
2. 論文標題 反復構造を持つ高分子に対する分子動力学計算のためのパラメータ設定支援プログラムo2pの開発	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Comput. Chem. Jpn	6. 最初と最後の頁 63-69
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI:10.2477/jccj.2017-0013	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4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Yutaka Matsubara, Kazuyoshi Ueda
2. 発表標題 Free energy calculation of the solubility of cellulose oligomers in water : II
3. 学会等名 256th ACS National Meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Noriko Kanai, , Kazuyoshi Ueda, Izuru kawamura
2. 発表標題 Structural Characterization of Cellulose Nanofibers Prepared from Spent Coffee Grounds
3. 学会等名 Applied Nanotechnology and Nanoscience International Conference (ANNIC 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuyoshi Ueda, Yutaka Matsubara
2. 発表標題 Free energy calculation of the solubility of cellulose oligomers in water
3. 学会等名 254th ACS National Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松原 寛, 上田 一義
2. 発表標題 ER法を用いた自由エネルギー計算によるセルロースの溶解性の検討
3. 学会等名 セルロース学会第24回年次大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 上田一義	4. 発行年 2019年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 595-607
3. 書名 次世代のポリマー・高分子開発、新しい用途展開と将来展望	

〔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
--	---------------------------	-----------------------	----