

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：15301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(B））

研究期間：2018～2023

課題番号：18KK0151

研究課題名（和文）多彩な環境応答を示す溶媒誘起力の解明：理論・実験融合研究

研究課題名（英文）Understanding solvent-mediated forces with diverse responses to ions, co-solvents, and temperature

研究代表者

甲賀 研一郎（Koga, Kenichiro）

岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授

研究者番号：10315020

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：溶液中において生起する溶媒誘起力が水溶液の組成変化あるいは溶質分子サイズ変化に対してどのように応答するのかを明らかにする理論的研究を行い、多くの成果を上げた。一例として、なぜリチウム塩はナトリウム塩よりも塩析効果が弱いのかという未解明現象を分子論的に解明した。また、塩析効果と塩誘起相互作用との関係性を溶液の理論に基づき導いた。さらに、疎水性相互作用が溶質分子サイズの増大とともにいかに変化するのかについて、独創性の高い成果を得た。すなわち、浸透第2ビリアル係数の絶対値が溶質分子サイズの6乗に比例して増大することを見出した。これは通常のビリアル係数のサイズ依存性とは質的に異なるものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で明らかになった疎水性溶質に対する塩析効果の微視的機構、塩添加による溶質分子間有効相互作用の変化と塩析効果との関係、疎水性相互作用の溶質分子サイズ依存性の法則は、水溶液中あるいはその他の液体中で生じる溶媒誘起力の学理構築につながる成果である。溶媒誘起力の環境応答機構を分子論的観点から解明することは、機能高分子の創出や生体系での自己集合体デザインなどの技術革新に重要な指針を与えることにつながる。

研究成果の概要（英文）：We carried out theoretical studies of how solvent-induced forces in solution respond to changes in composition or solute molecular size, and obtained a number of highly original results. For example, the well-known but unsolved problem of why the salting-out effect of lithium salts is weaker than that of sodium salts was solved from a molecular theoretical point of view. The relationship between the salting-out effect and salt-induced interactions was derived based on statistical mechanics theory. Unexpected results were also obtained on how the hydrophobic interaction changes with increasing solute molecular size. It was found that the absolute value of the osmotic second virial coefficient increases in proportion to the sixth power of the solute molecular size. This is qualitatively different from the size dependence of the second virial coefficient of gases.

研究分野：理論物理化学

キーワード：疎水効果 イオン添加効果 疎水性相互作用 浸透第2ビリアル係数

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

水は生命現象にとって不可欠な液体であると同時に、他の多くの液体を基準とした場合、異常な性質を示す。それは純粋な水に限らず、多様な溶質を溶かした水溶液の挙動に対しても当てはまることである。水は今も未解明問題を提示し続ける非常に興味深い液体である。

気体や炭化水素などの疎水性溶質の溶解度は温度とともに低下する。これは水和エントロピーが負であることを意味するが、その原因として、疎水性溶質周囲の水分子が水素結合を強化し、ハイドレート構造をとるという「冰山」説が1945年に提案され、広く受容されてきた。ところが近年、この常識が再検討され、水の熱膨張係数が極めて小さい(大気圧下4°Cで0となる)ことこそが負の水和エントロピーの起源であることが示された。このように水を嫌う溶質分子同士あるいは疎水基同士は引力を及ぼし合う。これを疎水性相互作用という。しかし、溶質の溶解度の低さと疎水性相互作用の強さとの関係性は自明ではない。界面活性剤のミセル形成駆動力は主に疎水性相互作用だとされるが、最新実験データは球状ミセルの疎水コア中に想定以上水分子が含まれことや、界面活性剤に依存して球形から大きくずれることを示し、ミセル安定性を単純に疎水効果に帰する定説を検証する必要性が指摘されている。水+溶質の2成分系の相挙動は第3の成分を添加することによって多様に変化する。イオン添加効果に目を向けると、1888年、ホフマイスターはタンパク質を凝集させる能力順に陽イオン・陰イオンを並べ(ホフマイスター系列)、1950年代には、(水の)構造形成イオンと構造破壊イオンという描像が提案され、タンパク質の凝集傾向とバルク水溶液の構造が関連づけられた。しかし近年の先端分光光学実験の結果は、「タンパク質表面へのイオン種毎の吸着能の詳細」によりホフマイスター系列が定まる、と主張している。溶質分子間に働く有効相互作用に対するイオン添加効果はその機構も含め大部分が未解明のまま。このように、溶媒としての水が誘起する多様な現象の機構解明は現代的課題であり、特に望まれることは、多階層にわたる「溶媒誘起力」の普遍的原理の解明である。溶媒中で生起する溶媒誘起力の環境応答機構を解明することは、機能高分子の創出や生体系での自己集合体デザインなどの技術革新に重要な指針を与えることにつながる。

2. 研究の目的

溶質の溶媒和自由エネルギー、2体有効相互作用、多体有効相互作用(自己集合体形成駆動力等)、相分離促進力をまとめて「溶媒誘起力」と呼ぶことができる。この多階層にわたる溶媒誘起力を分子論に基づき理解することが本研究の目的である。

上の課題解決のため、三つの海外研究拠点(コーネル大学、パデュー大学、サンクトペテルブルグ大学)において理論、分子シミュレーション、ラマン分光法を連携させた理論・実験融合型の国際共同研究を実施する。

溶媒誘起力は4階層に分けることができる。第1は溶質の溶媒和自由エネルギー μ^* であり、溶質1分子と溶媒との相互作用によって決まる。イオンや共溶媒の μ^* への効果は溶質分子周囲への選択的吸着・脱離によって決まる。第2階層の力は溶質分子間2体有効相互作用だ。これは平均力ポテンシャル $w(r)$ と呼ばれる。第3階層は、自己集合体形成に関わる多体有効相互作用である。集合体形成自由エネルギー(分散状態から会合体状態への自由エネルギー変化)から、2体有効相互作用 $w(r)$ の和を差し引いたものが多体効果であり、これが協同的か非協同的かについて不明な場合が多い。第4階層の溶媒誘起力はマクロな相分離(ゲル化・凝集等の)駆動力である。以上を踏まえ、次の2つの研究目標に取り組む。

目標1: 4階層の溶媒誘起力(溶媒和自由エネルギー、2体有効相互作用、多体有効相互作用、相分離駆動力)の環境(イオン・共溶媒・温度)応答機構を解明する。

目標2: 異階層の溶媒誘起力の相関の全体像を解明し、その原理を明らかにする。

3. 研究の方法

第一に、イオン添加効果または共溶媒添加効果を取り入れた理論を構築し、溶媒和自由エネルギー μ^* に対する効果と浸透第2ビリアル係数 B に対する効果を計算し、モデルに依存しない普遍性の高い結論を導く。さらに、密度汎関数理論モデルを用い、溶質分子の μ^* と B との相関を網羅的に解析する。状態方程式パラメータは溶解度などの実験値を再現するよう設定する。この方法により、広範な熱力学条件における溶解度と2体有効相互作用の強さとの相関を俯瞰する。イオン添加効果については、分子動力学シミュレーションにより、疎水性溶質のセチェノフ係数を陽イオンおよび陰イオンの直径の関数として求める。さらに、疎水性溶質の浸透第2ビリアル係数を水および塩水溶液において計算する。

第二に、疎水性分子または界面活性剤分子を含む水溶液の全原子分子シミュレーションを実

行し、溶媒和自由エネルギー μ^* 、平均力ポテンシャル $w(r)$ 、浸透第2ビリアル係数 B の評価を行う。疎水性溶質を含む水溶液については、溶質分子サイズの増大とともに $w(r)$ および B が変化するかに着目する。界面活性剤分子を含む水溶液については、様々な濃度に対して、凝集数分布を計算する。

4. 研究成果

イオン特異的効果とは、イオン添加による溶液物性（溶質の溶解度、界面張力、コロイド溶液の曇点など）の変化が、単にイオン濃度とイオン価数だけでは説明できないイオン添加効果のことである。本研究では溶質の溶解度に対するイオン特異的効果および溶質分子間有効相互作用に対するイオン特異的効果に関して理論モデリングおよび分子シミュレーションにより、次のような成果を得た。

溶解度に対するイオン特異的効果はセチェノフ係数 K_s によって測られる。水溶液の電解質（塩）濃度を c 、溶質の溶解度（オストワルド吸収係数）を λ 、純水に対する溶解度を λ_0 とすると、次式が成立する。

$$\frac{\lambda}{\lambda_0} = \exp(-K_s c)$$

K_s が正であれば塩析、負であれば塩溶である。通常、イオン半径が大きいイオン種ほど塩析効果が強いが、 Li^+ と Na^+ については逆転現象が起こることが知られている。我々はメタンを溶質として含む電解質水溶液の分子シミュレーションの結果を解析し、この逆転現象の微視的原因を解明した。具体的には、第一に、セチェノフ係数 K_s の大きさは電解質水溶液の充填率 η と関連しており、充填率はイオンの水和構造によって決まることを指摘した。

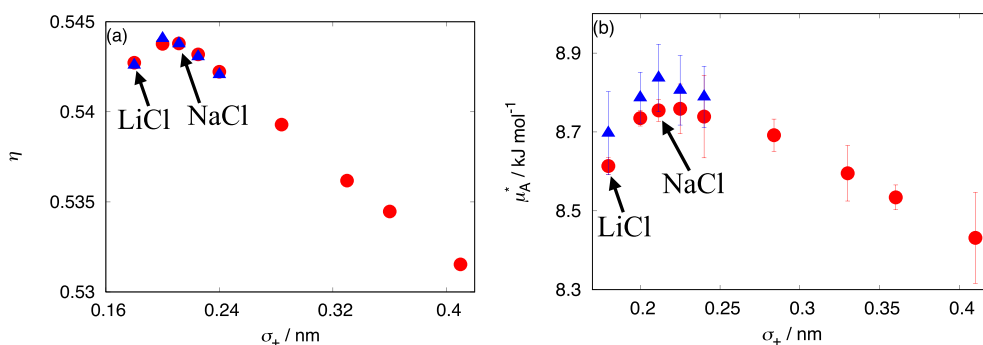


図 1 陽イオンの直径に対する電解質水溶液の充填率 η （左）およびメタンの溶媒和自由エネルギー μ^* （右）の変化。陰イオンは Cl^- に固定している。

図 1 に示したように、陽イオンサイズに対する充填率 η の変化と溶媒和自由エネルギー μ^* の変化（セチェノフ係数の変化）は一致している。第二に、なぜ電解質水溶液の充填率 η の変化が陽イオンサイズに対して非単調な変化を示すのかについて調べた。その結果、まず、「 Li^+ のような小さい陽イオンの場合、陰イオンと対を形成するため非単調な挙動が起こる」という従来の仮説が誤りであることがわかった。次に、陽イオン周りの第 1 水和殻の充填率は陽イオン直径の減少とともに単調に増大するが、第 2 および第 3 水和殻の充填率はバルク水溶液の充填率 η と同じように非単調に変化することがわかった。この成果は学術論文 Katsuto et al., *J. Phys. Chem. B* **125**, 6296-6305 (2021) として発表した。

セチェノフ係数 K_s については多様なイオン種と溶質分子種の組み合わせに対する実験データが整備されている一方、凝集力（溶質分子間有効相互作用）に対するイオン特異的効果を測る標準的指標は存在していなかった。そこで、我々は浸透第 2 ビリアル係数 B の塩濃度依存性がそれに相当する物理量になることを指摘し、SEA (Salt-Enhanced Association) 係数 C_1 を次のように定義した。

$$C_1 = -\left(\frac{\partial B}{\partial c}\right)_{T,p} \quad (c \rightarrow 0)$$

そうして、溶液の統計力学に基づき、SEA 係数とセチェノフ係数との間に次の関係式が成立することを示した。

$$C_1 = C_1^{(1)} + \frac{K_s^2}{2(a+b)} \quad (\text{電解質が } X_a Y_b \text{ 型の場合})$$

右辺第2項にセチェノフ係数の2乗が現れることに注目してほしい。すなわち、第2項は K_s の符号によらず、塩析・塩溶のいずれの電解質でも SEA 係数を大きくする方向に働く。我々は溶媒を誘電体として扱う密度汎関数理論モデルを用いて、上の関係式の妥当性を確認した。以上の研究成果は学術論文 Okamoto et al., *J. Phys. Chem. B* **125**, 12820-12831 (2021) に発表した。今後の課題としては、実験及び分子シミュレーションにより、上記関係式の妥当性を検証することがあげられる。以上の研究成果は独創性の高いものであり、国際学会など高く評価された。

疎水性相互作用は溶液の物理化学における重要な研究課題の一つである。なかでも、溶質分子のサイズの増大とともに疎水性相互作用がいかに変化するか、という問題は未解明であった。これまでの研究から、溶質分子を剛体球モデルで表したとき、大きな溶質分子間に溶媒の不安定性に起因する特殊な引力が働くことが指摘されている。しかし、通常の溶質溶媒引力相互作用をもつ溶質分子について、疎水性相互作用のサイズ依存性を定量的に調べ、報告した例は少ない。本課題では、この問題に関して質的にこれまで全く知られていなかった分子サイズ依存性に関する知見を得ることに成功した。

我々は疎水性相互作用を平均力ポテンシャル $w(r)$ および浸透第2ビリアル係数 B により評価し、メタンから C_{60} までの分子サイズ領域で、それらの溶質分子サイズ依存性を決定した。以下の図2に示したように、溶質サイズの増大とともに、溶質分子間動径分布関数の第1ピークは増大し、 $w(r)$ の第1極小値（溶質分子同士が接する距離における値）は減少する。

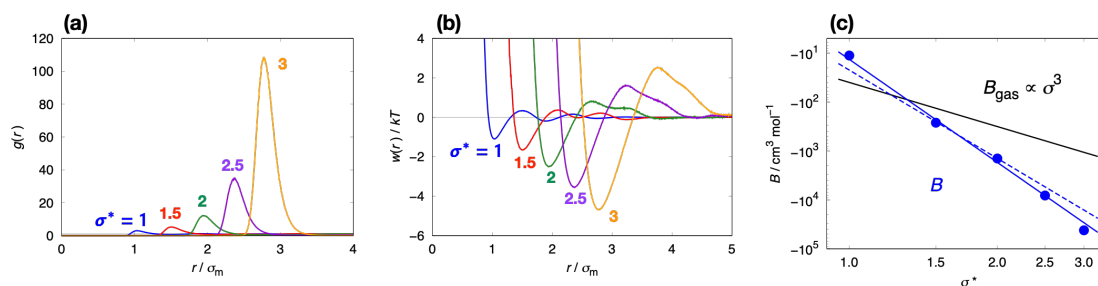


図2 疎水性相互作用の溶質分子サイズ依存性. (a) 溶質分子間動径分布関数, (b) 溶質分子間平均力ポテンシャル, (c) 溶質分子の浸透第2ビリアル係数.

さらに、溶質分子直径の増大とともに、 $w(r)$ の第1極大（ポテンシャル障壁）が増大することが明らかになった。 $w(r)$ から導かれる浸透第2ビリアル係数 B は溶質分子直径に対して極めて強い依存性を示すことがわかった。すなわち、

$$B = A \sigma^\alpha$$

というべき乗則に従うことが明らかになった。べき指数は $\alpha \approx 6$ or 7 である。注意してもらいたいのは、気体の第2ビリアル係数の分子サイズ依存性は分子直径の3乗に比例するということだ。したがって、水溶液中での有効相互作用の強さを与える浸透第2ビリアル係数が分子直径の6乗に比例するという結果は、質的に異なるものである。そしてその原因はすべて溶媒誘起力の溶質分子サイズ依存性にある。本研究成果は Naito et al., *J. Chem. Phys.* **156**, 221104 (2022) および Naito et al., *Faraday Discussions*, **249**, 440–452 (2024) に発表した。

浸透第2ビリアル係数の溶質分子サイズ依存性の問題は疎水性相互作用に限られたものではなく、溶液中のコロイド粒子同士の有効相互作用や水溶液中のタンパク質分子相互作用の強さが溶質分子サイズとともにどのように変化するかという未解明問題の解明に寄与する研究課題である。今後も、様々な溶質および溶媒の組み合わせに関して分子シミュレーションに基づきべき乗則の検証を行う必要がある。さらに、液体の理論に基づき、溶質分子サイズ依存性の普遍的な側面を明らかにすることが課題として残されている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計31件（うち査読付論文 29件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 24件）

1. 著者名 Taira Aoi, Okamoto Ryuichi, Sumi Tomonari, Koga Kenichiro	4. 巻 25
2. 論文標題 Solvation free energies of alcohols in water: temperature and pressure dependences	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 31107 ~ 31117
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CP03799A	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 Nakata Noa, Okamoto Ryuichi, Sumi Tomonari, Koga Kenichiro, Morita Takeshi, Imamura Hiroshi	4. 巻 32
2. 論文標題 Molecular mechanism of the common and opposing cosolvent effects of fluorinated alcohol and urea on a coiled coil protein	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Protein Science	6. 最初と最後の頁 e4763
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pro.4763	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 Mochizuki Kenji, Adachi Yuji, Koga Kenichiro	4. 巻 18
2. 論文標題 Close-Packed Ices in Nanopores	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 347 ~ 354
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.3c07084	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 Naito Hidefumi, Sumi Tomonari, Koga Kenichiro	4. 巻 249
2. 論文標題 How do water-mediated interactions and osmotic second virial coefficients vary with particle size?	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Faraday Discussions	6. 最初と最後の頁 440 ~ 452
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3FD00104K	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 Naito Hidefumi, Okamoto Ryuichi, Sumi Tomonari, Koga Kenichiro	4. 巻 156
2. 論文標題 Osmotic second virial coefficients for hydrophobic interactions as a function of solute size	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 221104 ~ 221104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0097547	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 Indekeu Joseph O., Koga Kenichiro	4. 巻 129
2. 論文標題 Wetting and Nonwetting near a Tricritical Point	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 224501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.129.224501	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 Inoue Sota, Kimura Yasuyuki, Uematsu Yuki	4. 巻 157
2. 論文標題 Ostwald ripening of aqueous microbubble solutions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 244704 ~ 244704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0128696	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 Uematsu Yuki	4. 巻 34
2. 論文標題 Analytic theory of nonlinearly coupled electrokinetics in nanochannels	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physics of Fluids	6. 最初と最後の頁 122012 ~ 122012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0131481	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 Isogai Yasuhiro, Imamura Hiroshi, Sumi Tomonari, Shirai Tsuyoshi	4. 巻 61
2. 論文標題 Improvement of Protein Solubility in Macromolecular Crowding during Myoglobin Evolution	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Biochemistry	6. 最初と最後の頁 1543 ~ 1547
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.biochem.2c00166	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 Okamoto Ryuichi	4. 巻 2022
2. 論文標題 Fluctuating hydrodynamics of dilute electrolyte solutions: systematic perturbation calculation of effective transport coefficients governing large-scale dynamics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment	6. 最初と最後の頁 093203 ~ 093203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-5468/ac8c8d	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 Katsuto Hiroyuki, Okamoto Ryuichi, Sumi Tomonari, Koga Kenichiro	4. 巻 125
2. 論文標題 Ion Size Dependences of the Salting-Out Effect: Reversed Order of Sodium and Lithium Ions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 6296 ~ 6305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c03388	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 Okamoto Ryuichi, Koga Kenichiro	4. 巻 125
2. 論文標題 Theory of Gas Solubility and Hydrophobic Interaction in Aqueous Electrolyte Solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 12820 ~ 12831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c08050	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 Sumi Tomonari, Imamura Hiroshi	4. 巻 30
2. 論文標題 Water mediated interactions destabilize proteins	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Protein Science	6. 最初と最後の頁 2132 ~ 2143
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pro.4168	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 Uematsu Yuki	4. 巻 33
2. 論文標題 Electrification of water interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 423001 ~ 423001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac15d5	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 Uematsu Yuki, Ohshima Hiroyuki	4. 巻 38
2. 論文標題 Electrophoretic Mobility of a Water-in-Oil Droplet Separately Affected by the Net Charge and Surface Charge Density	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 4213 ~ 4221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.1c03145	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 Ryuichi Okamoto, Kenichiro Koga, Akira Onuki	4. 巻 153
2. 論文標題 Theory of electrolytes including steric, attractive, and hydration interactions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 074503-1-19
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0015446	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 Yuji Adachi, Kenichiro Koga	4. 巻 153
2. 論文標題 Structure and phase behavior of high-density ice from molecular-dynamics simulations with the ReaxFF potential	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 114501 ~ 114501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0016565	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 Amano Ken-ichi, Sawazumi Ryosuke, Imamura Hiroshi, Sumi Tomonari, Hashimoto Kota, Fukami Kazuhiro, Kitaoka Haru, Nishi Naoya, Sakka Tetsuo	4. 巻 49
2. 論文標題 An Improved Model-potential-free Analysis of the Structure Factor Obtained from a Small-angle Scattering: Acquisitions of the Pair Distribution Function and the Pair Potential	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1017 ~ 1021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200292	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 Koga Kenichiro, Indekeu Joseph O.	4. 巻 150
2. 論文標題 Three-phase equilibria in density-functional theory: Interfacial tensions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 164701 ~ 164701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5091599	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 該当する

1. 著者名 Shchekin A. K., Koga K., Volkov N. A.	4. 巻 151
2. 論文標題 The effect of a finite number of monomers available for aggregation at nucleation and micellization in a fixed volume	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 244903 ~ 244903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5129160	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 該当する

1. 著者名 甲賀 研一郎	4. 巻 74
2. 論文標題 疎水効果と疎水性相互作用	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 765 ~ 773
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/butsuri.74.11_765	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 Tomonari Sumi and Kenichiro Koga	4. 巻 9
2. 論文標題 Theoretical analysis on thermodynamic stability of chignolin	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5186
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-41518-1	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 岡本隆一、小貫明	4. 巻 74
2. 論文標題 溶媒和効果の物理 密度揺らぎ・ナノバブル・溶質誘起相分離	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 210-214
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 Isogai Yasuhiro, Imamura Hiroshi, Nakae Setsu, Sumi Tomonari, Takahashi Ken-ichi, Nakagawa Taro, Tsuneshige Antonio, Shirai Tsuyoshi	4. 巻 8
2. 論文標題 Tracing whale myoglobin evolution by resurrecting ancient proteins	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 16883
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-018-34984-6	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 -

[学会発表] 計36件(うち招待講演 17件/うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Solute-size dependences of hydrophobic interactions in water and other effective interactions in liquids
3. 学会等名 EMLG-JMLG 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 How to Make Attraction Stronger in Liquids
3. 学会等名 A workshop in celebration of Joseph Indekeu (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 How do water-mediated interactions and osmotic second virial coefficients vary with particle size?
3. 学会等名 Faraday Discussions: Water at Interfaces (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 甲賀研一郎
2. 発表標題 浸透第2ビリアル係数の理論的研究: イオン特異的效果および溶質サイズ依存性
3. 学会等名 分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Osmotic second virial coefficients for hydrophobic interactions: Ion-specific effects and solute- size dependences
3. 学会等名 TSRC Workshop, Hydrophobicity: From Theory, to Simulation, to Experiment (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Two Aspects of the Osmotic Second Virial Coefficient
3. 学会等名 EMLG conference 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 植松祐輝
2. 発表標題 溶液界面の化学物理と流体力学の研究
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 植松祐輝
2. 発表標題 Water-in-Oil型液滴の電気泳動移動度の決定因子
3. 学会等名 第34回散乱研究会 招待講演 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Ion-size dependences of the salting-out effect
3. 学会等名 IUPAC CCCE (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Ion-Specific Effects on Hydrophobicity: Salting-out effect and Salt-Enhanced Association
3. 学会等名 Physical Chemistry Seminar, Purdue University (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Sumi and H. Imamura
2. 発表標題 Liquid-state density functional study on energetics of protein folding stability
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 岡本隆一
2. 発表標題 塩溶液中のガス溶解度と疎水性相互作用
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 植松祐輝
2. 発表標題 水の界面物性計算理論の構築と疎水性界面における帯電メカニズムの解明
3. 学会等名 福井謙一記念センターシンポジウム受賞講演（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 植松祐輝
2. 発表標題 水界面における誘電率と粘性の異常性の起源と電気浸透のための有効理論
3. 学会等名 界面動電現象研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 植松祐輝
2. 発表標題 水界面の帯電について
3. 学会等名 14th Mini-symposium on liquids (MSL2021)（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 甲賀研一郎
2. 発表標題 細孔内準一次元物質のポリモルフィズム：最密充填vs.水素結合
3. 学会等名 日本物理学会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Sumi and H. Imamura
2. 発表標題 Dominant factor in thermodynamic stability of protein
3. 学会等名 The 58th Annual Meeting of the Biophysical Society of Japan (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Koga and J. O. Indekeu
2. 発表標題 密度汎関数理論による臨界終点および三重臨界点近傍の濡れ転移相図
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. K. Shchekin, K. Koga, N. A. Volkov
2. 発表標題 The effect of confinement at nucleation and micellization
3. 学会等名 Okinawa Colloids 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Koga and J. O. Indekeu
2. 発表標題 Is the wetting transition inevitable near the critical endpoint and tricritical point?
3. 学会等名 Okinawa Colloids 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 甲藤寛之, 岡本隆一, 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 水溶液中の疎水性溶質の溶解度に対するイオンサイズ効果
3. 学会等名 分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 足立優司, 甲賀研一郎
2. 発表標題 反応力場モデルが示す水の結晶-プラスチック相転移
3. 学会等名 分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 甲賀研一郎
2. 発表標題 疎水性相互作用の温度応答・イオン種依存性
3. 学会等名 第9回 次世代の物質科学・ナノサイエンスを探る
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryuichi Okamoto
2. 発表標題 Theory for bulk thermodynamic properties of simple electrolyte solutions: Interplay of excluded volume and hydration effects
3. 学会等名 The 13th Mini-Symposium on Liquids (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡本隆一
2. 発表標題 イオン固有効果の連続場理論
3. 学会等名 第9回ソフトマター研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡本隆一、甲賀研一郎、小貴明
2. 発表標題 電解質溶液の連続場理論: 排除体積・水和とイオン固有効果
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質の熱力学的安定性と溶媒効果
3. 学会等名 第99回日本化学会春季大会 特別企画 分子を集める・分子を数える 「分子統計化学」を駆使したソフトマテリアル・溶液の機能構築 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質の熱力学的安定性と溶媒効果
3. 学会等名 応用物理学会 M&BE 研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Sumi and S. Klumpp
2. 発表標題 Is F1-ATPase an ideal rotary molecular motor with nearly 100% efficiency?
3. 学会等名 The 13th Mini-Symposium on Liquids MSL2018 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質折り畳みのエネルギー論と溶媒効果
3. 学会等名 計算生命科学研究会 ~多体問題から生命システムへ~ (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質折り畳みのエネルギー論
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質の熱力学的安定性における主要因
3. 学会等名 第13回分子科学討論会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 墨智成, 甲賀研一郎
2. 発表標題 タンパク質構造安定性のエネルギー論
3. 学会等名 分子シミュレーション討論会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenichiro Koga
2. 発表標題 Interfacial tensions near the critical endpoints and the tricritical point of three-phase equilibria: Mean-field density-functional model
3. 学会等名 Soft Matter Physics: From the perspective of the essential heterogeneity (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryuichi Okamoto
2. 発表標題 Density fluctuations and solute-induced phase separation in a fluid mixture composed of a binary solvent and a nonionic hydrophobic solute : Ouzo effect
3. 学会等名 Soft Matter Physics: From the perspective of the essential heterogeneity (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡本隆一, 甲賀研一郎, 小貫明
2. 発表標題 混合溶媒における疎水性溶質添加効果-密度揺らぎ、溶質誘起相分離-
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 公益社団法人 日本化学会：甲賀研一郎（分担）	4. 発行年 2021年
2. 出版社 丸善出版	5. 総ページ数 1534
3. 書名 化学便覧 基礎編 改訂6版	

〔産業財産権〕

〔その他〕

岡山大学理論物理化学研究室 http://phys.chem.okayama-u.ac.jp/
--

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	岡本 隆一 (Okamoto Ryuichi) (10636385)	岡山大学・異分野基礎科学研究所・特任講師 (15301)	
研究分担者	墨 智成 (Sumi Tomonari) (40345955)	岡山大学・異分野基礎科学研究所・准教授 (15301)	
研究分担者	望月 建爾 (Mochizuki Kenji) (40734554)	信州大学・学術研究院繊維学系・助教 (13601)	

6. 研究組織（つづき）

	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	植松 祐輝 (Uematsu Yuki) (30830111)	九州工業大学・大学院情報工学研究院・准教授 (17104)	

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4件

国際研究集会 The 13th Mini-Symposium on Liquids	開催年 2019年～2019年
国際研究集会 The 14th Mini-Symposium on Liquids	開催年 2021年～2021年
国際研究集会 The 15th Mini-Symposium on Liquids	開催年 2022年～2022年
国際研究集会 The 16th Mini-Symposium on Liquids	開催年 2023年～2023年

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