

1. はじめに

高分子とは、ポリエチレンやポリエステルのような分子量の大きい重合体、あるいはタンパク質などの巨大分子のことである¹⁾。我々の身近なところにも、プラスチック、ゴム、繊維、接着剤、塗料などとして多くの高分子がある。高分子は、低分子に比べて単に分子量が大きいと言うだけでなく、低分子には見られない特徴をもつ。例えば、高分子溶液や溶融体の粘性が著しく高いことや粘弾性の性質を示すこと²⁾、ゴムが柔らかく非常によく伸びること、あるいは高分子結晶に見られる折り畳み構造などがそうである。これら高分子特有の性質は、何も低分子と比べて化学結合や分子間相互作用の本質が異なるわけではなく、高分子が屈曲性のある長い分子構造を持ち、熱運動によって自由にその形を変えることができることに起因する。溶液や溶融体中の高分子はランダムコイル状の形態をとり、互いに絡み合った状態で存在している (Fig. 1)。高分子の柔軟性と相互作用が低分子に見られない特徴を作り出すのである。

これまでの高分子の分子論では、熱運動の単位としてセグメントという概念を導入し、セグメントをばねで結合したビーズ - ばね模型で高分子を表してきた (Fig. 2)。そして、Flory³⁾ に代表されるように統計力学を用いて高分子の形や大きさを論じてきた。あるいは、レプテーションモデル⁴⁾ のように高分子性をモデル化して、その分子運動を記述してきた。高分子の分子論では、巨大な分子の運動と分子どうしの相互作用に起因する現象を扱う必要があり、系が非常に複雑であるため、

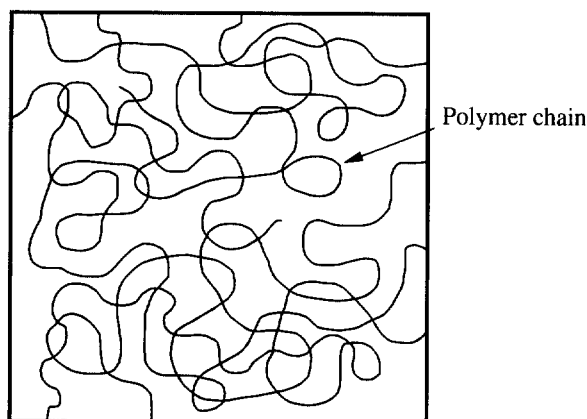


Fig. 1 Random-coil model for polymer solutions and polymer melts.

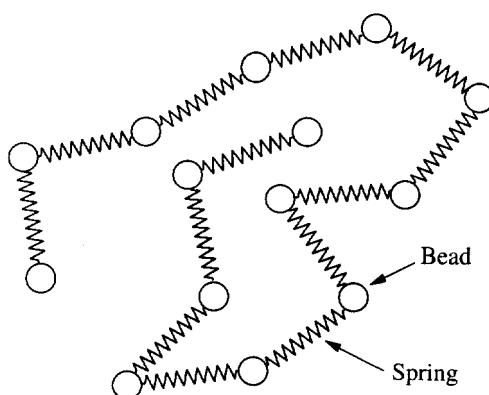


Fig. 2 Beads-spring model.

キーワード

高分子, 分子動力学法, 分子設計支援システム, 高分子結晶, 拡散, 高分子溶液, ガラス転移温度, 粘弾性, エントロピー弾性

モデル化された一般則として現象を把握してきたのは当然である。

ところが最近、高分子の分子構造をできるだけ忠実にモデル化して計算を行い、高分子の個性を捕らえようという動きが起こっている。高分子超電導体、導電性高分子、高分子触媒などの機能性高分子が注目されており、これらの高分子の分子設計や研究開発にはモデル化された分子論ではなく、分子構造を厳密に考えた取り扱いが必要になってきたからである。また、これと同時に、これまでモデル化した一般則として扱われてきた分子論を、分子レベルで捕らえているいろいろな物性を計算しようとする動きも見られる。

このように高分子を対象とした計算が盛んに行われるようになった背景には、コンピュータ性能の飛躍的な向上に伴って、これまでせいぜい液体や金属の結晶しか扱えなかった分子シミュレーションが高分子の分野においても可能になってきたことがある。さらに、高分子分野の新しい流れに拍車を掛けたのが、分子設計支援システムと呼ばれる高分子を対象としたコンピュータソフトである。化学・コンピュータメーカーがこの分野に力を入れており、数社から既にシステムとして販売されている。このシステムを利用すれば、グラフィックワークステーションを使って画面上に絵を描くような感覚で分子モデルを作成し、分子構造や分子運動などを計算することができる。これまで、計算といえば研究者が独自にモデルと方法を考へて、プログラムを作成して行なってきたのであるが、このようなシステムを使えば分子シミュレーションにあまり知識の無い人でも計算を行なうことができるようになっている。

高分子を対象としたシミュレーションでは、回転異性状態 (RIS) 近似を使ったコンフォメーション計算、モンテカルロ (MC) 計算、分子動力学 (MD) 計算がよく使われる。あるいは高分子の電子状態を調べるために分子軌道 (MO) 計算を用いる場合もある。それぞれの方法には一長一短があり、問題に応じて選択すべきであるが、ここでは高分子の動的挙動の解析に特に優れている分子動力学法について解説し、最近の応用例の中から主なものを紹介する。先に述べたように、高

分子の物性は分子運動に起因するところが大きいので、分子運動を直接扱う分子動力学法は高分子物性の計算に特に有効であり、それによって得られる知見も多くある。

2. 分子動力学法

2.1 原理

分子動力学法⁵⁻⁷⁾は、既に液体や金属結晶の分野で確立されており^{8,9)}、高分子を扱う場合も基本的には同じである。高分子を構成する個々の原子についてニュートンの運動方程式を立て、これを数値積分することによって注目している系の動的な構造を計算する方法であり、熱力学量、輸送係数、分光学的諸量などを計算することができる。例えば、 N 個の原子からなる系を考えると、質量 m の原子 i の運動方程式は

$$\frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \frac{\mathbf{F}_i}{m} \quad (i = 1, 2, 3, \dots, N) \quad (1)$$

$\mathbf{r}_i$; 原子 i の位置座標

$\mathbf{F}_i$; 原子 i に働く力

t ; 時間

と書ける。各原子に働く力 $\mathbf{F}$ は共有結合および非結合原子間のポテンシャルから求める。高分子の場合には多数の原子が共有結合で結ばれているため、結合軸回りの回転ポテンシャルなど多くの相互作用を考えなければならない点が液体や金属結晶の場合に比べて計算を複雑にしている。原子間のポテンシャルについては次節で詳しく述べる。

実際の高分子材料は膨大な数の高分子が集めた系であり、シミュレーションでそれを忠実に再現することはできない。そこで、周期境界条件を用いた基本セルの中に数百から数万個程度の原子を入れた系を考へてシミュレーションを行う (Fig. 3)。すなわち、基本セルの周囲にレプリカを配置し、基本セル内の原子には基本セルだけでなく、レプリカからの力も考慮する。もちろん、Fig. 3 では2次元の場合を示しているが、3次元の場合には3次元的に配置する。また、基本セルの外に原子が出たときには、レプリカから対応する原子が基本セル内に入ってくるようにし、基本セル中の原子数を一定に保つ。このような周期境界条件の下で運動する系が、現実のマクロな系の熱力学的

性質などをよく表すことが確認されている。

与えられた初期の構造に対して、原子の初速度をマクスウェル分布に従うように決めて、後は式(1)を数値積分して原子の運動を追跡する。このとき、対象とする系の保存量を変えることによって、定エネルギー、定温、定圧、定温・定圧のアンサンブルを扱うことができる。

2.2 原子間ポテンシャル

高分子を対象とした計算では、ポテンシャルエネルギー E として分子内の共有結合に基づくもの E_{val} と結合していない原子間に働くもの E_{nb} を考える。

$$E = E_{val} + E_{nb} \quad (2)$$

そして、結合原子間のポテンシャルは、結合の伸縮 E_B 、結合角の変角 E_A 、結合のねじれ E_T 、結合の反転 E_I に分けられ、

$$E_{val} = E_B + E_A + E_T + E_I \quad (3)$$

非結合原子間のポテンシャルはvan der Waals相互作用 E_{vdw} 、静電相互作用 E_Q 、水素結合 E_{hb} に分けられる。

$$E_{nb} = E_{vdw} + E_Q + E_{hb} \quad (4)$$

さらに、結合の伸縮と結合角の変角などの交差項を考慮する場合もある。通常、各ポテンシャルを記述するためのパラメータは、低分子についての基準振動解析実験や分子軌道計算から求められる¹⁰⁾。

高分子は曲がりくねったランダムコイル状の形態をしており、そのコンフォメーションは無数にある。高分子がその形を自由に変わることができ

るのは各結合軸回りに回転できるからである。1,4-シスポリブタジエンについてC-C軸回りのコンフォメーションエネルギー(E_T)を描くとFig. 4のようになる。これから分かるように、全く自由に回転できるわけではなく、5~10kcal/mol程度のエネルギー障壁があり、安定なコンフォメーションが存在する。この結合軸回りの回転のポテンシャルが高分子の場合には特に重要である。

2.3 計算できる諸量

分子動力学計算の結果から直接得られるのは原子の座標と速度である。したがって、動径分布などの構造が簡単に求められる。温度、圧力、内部エネルギーなどの熱力学量もこれらのデータを使って求めることができる。また、エントロピー¹¹⁾、および自由エネルギー¹³⁾を求めることもできる。さらに、拡散係数や粘性係数などの動的諸量、原子運動に起因するスペクトルといった分光学的諸量も計算することができる⁵⁾。

2.4 分子設計支援システム

分子動力学計算が可能な分子設計支援システムとしては、Discover (米国BIOSYM社)、MOLGRAPH (ダイキン工業)、PolyGraf (米国Molecular Simulation社)、SYBYL (米国TRIPOS社)などが現在、市販されている。システムの基本的な機能はどれも同じであり、高分子のコンフォメーションサーチや電荷分布の計算など分子動力学計算以外の機能も備えている。これらのシステムを用いれば次章で紹介するようなシミュレーションの大半は可能である。

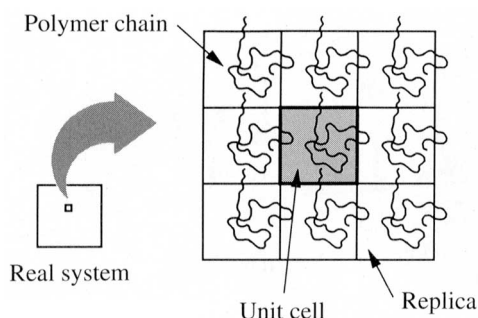


Fig. 3 Periodic boundary condition.

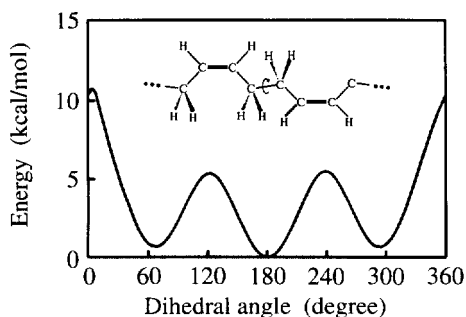


Fig. 4 Conformational energy of 1,4-cis polybutadiene calculated by PolyGraf.

3. 高分子の研究例

高分子を対象とした分子動力学計算が可能になってきたとはいえ、扱う原子の数も時間領域も限られている。厳密な分子モデルを用いればより実際の現象に近い計算を行なうことができるが、計算機の容量・時間ともに莫大なものとなる。高分子の物性は分子運動に支配される部分が大きいので、短い時間領域の動的挙動（分子内コンフォメーション転移など）に起因する現象については計算例も多いが、長時間領域の緩和現象などはまだ厳密に扱うことはできない。分子構造の一部を簡略化した分子モデルや平均場を用いた近似などを導入して研究者が工夫しながら計算しているものも多い。分子動力学計算を高分子の物性解析あるいは分子設計に応用した最近の例を紹介する。

3.1 高分子結晶

高分子結晶では分子運動も緩やかであり、大きな構造の変化も起こらないため結晶構造を計算したものや¹⁴⁻¹⁹⁾、欠陥の発生と伝搬²⁰⁻²³⁾、結晶の融解現象²⁴⁻²⁸⁾を計算した研究例が多くある。

計算された結晶構造が正しいことを確認できた例として、Wendoloskiら¹⁹⁾の行った研究がある。ナイロン66結晶について室温と融点近傍で計算を行い、²H NMRによる実験と比較している。その結果、室温の結晶構造については実験結果と定量的に一致し、融点付近の構造も定性的に一致することを確認できた。同時に、結晶中のメチレン基の振動が融点近傍で急激に大きくなることや230 以下ではアミド基が水素結合によって動けなくなっていることを観察し、シミュレーションによって結晶中の高分子の運動を詳細に解析できる点など分子動力学計算の有用性を強調している。

市販のソフトを使った研究例もある。例えば、Poonら¹⁵⁾は分子動力学プログラムCHARMM²⁹⁾（米国Molecular Simulation社）を用いて種々の芳香族ポリイミドについて結晶構造を計算している。PMDA-ODA(pyromellitic dianhydride oxydianiline)の結晶表面は0.722nmのうねりをもつが、モノマーが剛直な分子構造をもつPMDA-PDA (pyromellitic dianhydride *p*-phenylene diamine) では平坦な表面構造をもつことを明らかにした。そして、結晶

密度はそれぞれ1.515g/cm³、1.712g/cm³とPMDA-ODAの方が小さいことを計算している。

部分的にモデル化した高分子を用いた例として、Sumpterら²⁰⁾の行った結晶中の欠陥形成に関する研究がある。彼らは、3700個のCH₂グループからなる12.6nmの高分子結晶を用いて、欠陥の形成とその運動について20psの計算を行った。Fig. 5は320Kにおけるジグザグ鎖からの欠陥形成と伝

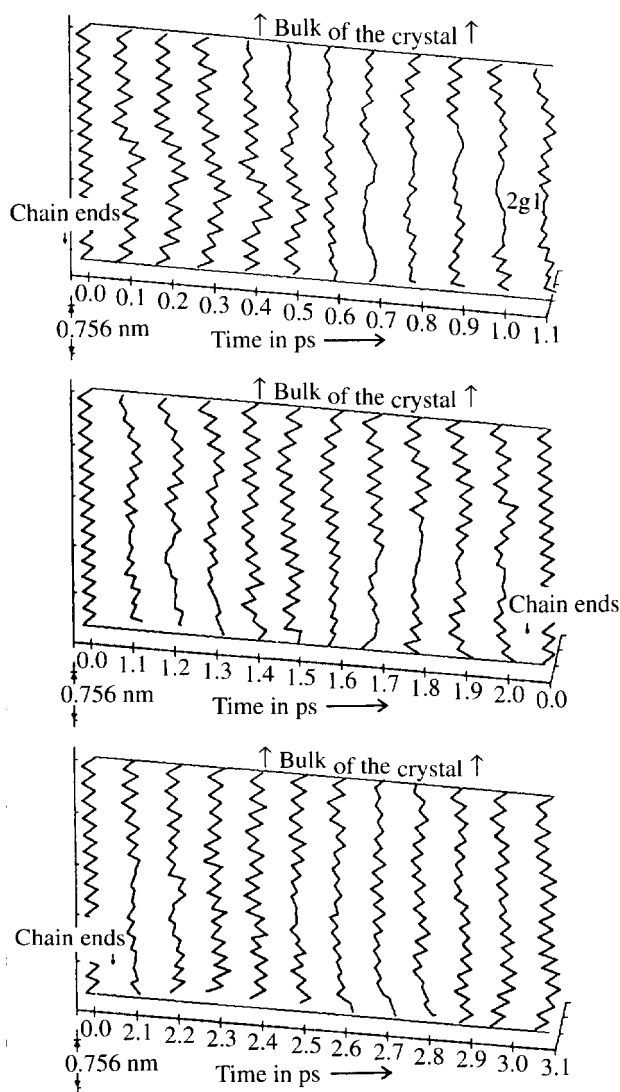


Fig. 5 Time sequence of the bottom 30 CH₂ groups of a PE chain in the crystal model.²⁰⁾

搬の様子を3psにわたって示している。そして、欠陥の形成には16kJ/molの活性化エネルギーが必要であり、伝搬するにはさらに4kJ/molが必要であることおよび欠陥の形成速度が 10^{10} s^{-1} のオーダーであることを報告している。これ以外にも、Sumpterらは高分子結晶の融解や欠陥の形成伝搬過程について多くの計算を行っており、高分子結晶の分野への分子動力学アプローチの先駆的な役割を果たしている^{18, 20-23, 26, 27}。

結晶状態にある高分子が融解するときの挙動について、山本ら²⁸は1本の直線状に伸ばした高分子鎖を用いて分子構造に基づく検討を行っている。Fig. 6に300Kにおけるポリエチレン(重合度100)と1,4-シスポリブタジエン(重合度50)の融解過程の挙動を示す。ポリエチレンでは高分子鎖が2つに折り畳むように丸くなって行くのに対して、ポリブタジエンでは全体が中心に向かって縮んで行く挙動をとっている。分子内に2重結合を持つ

ことによって、分子運動の様子が異なっていることが分かる。

3.2 高分子中の低分子の拡散

高分子中の低分子の拡散は、酸素透過膜など特定の原子を透過させる高分子膜^{30, 31}や、水の吸着性^{32, 33}の研究にとって重要である。アモルファス状の高分子マトリックスを作り、その中に数個から数十個の低分子を入れて計算を行い、拡散係数を求めた報告が多い³⁴⁻⁴¹。これは、高分子の分子運動は扱わずに構造を固定しておき、低分子の運動のみを分子動力学計算で求めるため、比較的小規模の計算で良いためである。シリカガラスの細孔を拡散する高分子を計算した例⁴²もある。

高分子中の低分子の拡散現象は気体中の拡散と異なり、高分子マトリックスの隙間の分布に強く依存する。このことを明らかにするために、Takeuchiら³⁸は600個の CH_2 グループからなる高

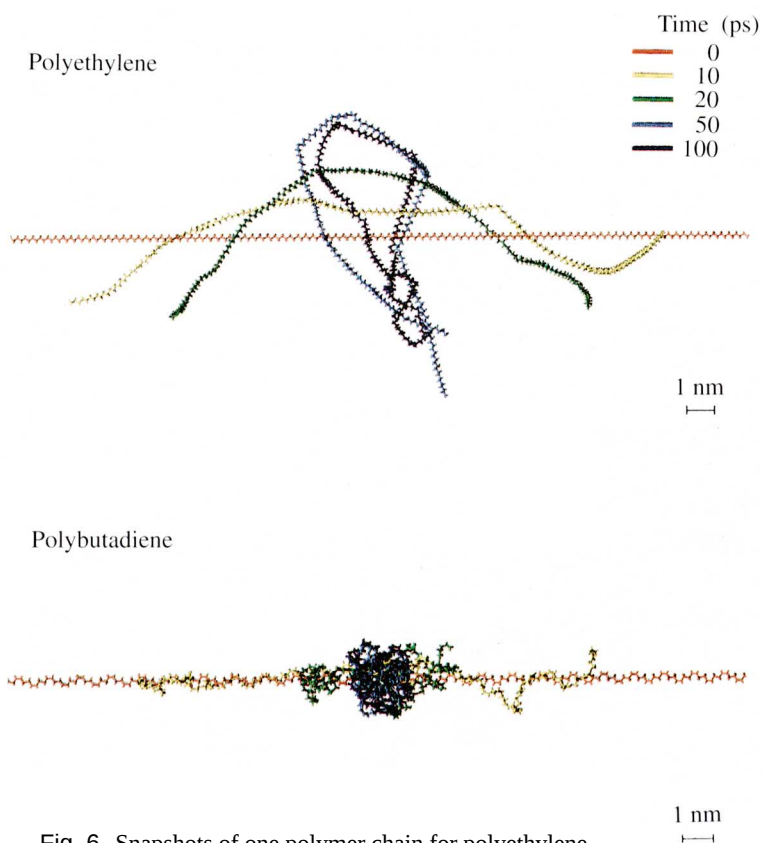


Fig. 6 Snapshots of one polymer chain for polyethylene and polybutadiene at 300K.

分子モデル(Fig. 7)を考え, その中に10個の酸素分子を入れて計算を行っている。このとき, 高分子にも結合のねじれと非結合原子間のポテンシャルを与えて, 300Kで熱運動させている。Fig. 8に見られるように, 拡散係数 D は最近接鎖間で利用できる自由体積 v_f で整理できること示し, 拡散に対する自由体積分布の重要性を明らかにしている。

高分子膜 (ポリジメチルシロキサン) 中のヘリウム原子とメタン分子の拡散を比較した研究もある (Sokら³¹⁾)。彼らは, メタン分子ではジャンプ拡散の性格を持つことを明らかにし, ジャンプは空孔のサイズと形の揺らぎによって引き起こされることを示している。そして, 化学ポテンシャルを計算したところ, メタンの拡散係数はヘリウムより小さいにもかかわらず, ジャンプ運動により高分子膜をよく透過することを明らかにしている。この傾向は実験結果と一致しており興味深い現象である。

また, 非晶質ポリイソブチレン中の酸素分子の拡散について, 酸素分子の自乗変位から拡散係数を求めたところ, 数ナノ秒の時間スケールにおいてEinstein拡散と異なる異常な拡散を示すことを明らかにしたMüller-Platheら³⁵⁾の研究例もある。



Fig. 7 Two dimensional projection of the MD cell. The length of edges of the cell is about 2.5 nm.³⁸⁾

3.3 高分子溶液および溶融体

高分子溶液や溶融体では高分子どうしの絡み合いが物性に大きく影響する。多数の高分子が絡み合った状態でモデル化し, その分子運動を計算することは容易ではない。簡略化したモデルや小規模な計算によって, 高分子溶液⁴³⁻⁴⁷⁾, 溶融体⁴⁸⁻⁵⁸⁾, 熱分解⁵⁹⁾, ガラス転移⁶⁰⁻⁶³⁾の研究に分子動力学法を応用した報告がある。

Kremerら⁵⁵⁾は重合度5から400の高分子モデルを用いて絡み合いの計算を行なっている。絡み合い長は重合度35の長さに対応し, それ以下の系はRouseモデルで説明でき, それ以上の系ではレブテーションモデルで説明できることを報告している。

高分子のガラス転移温度を計算した研究も有名である。Takeuchiら⁶⁰⁾は無限の長さをもつ CH_2 グループからなるポリエチレンを用いて, ガラス転移温度近傍の局所運動を調べた。体積と温度との関係に屈曲点が現れ, これがガラス転移温度に一致することを明らかにした。また, ガラス転移温度以下においても高分子鎖の移動度は幾分残っており, 小さなステップの連続として起こる回転拡散過程に加えて大きなジャンプ運動も起こっていることを報告している。

ガラス転移温度について, 山本ら²⁸⁾は1本の高分子鎖であってもランダムコイル状になれば高分子の集合体と構造は同じであると考え, 重合度50の一本の1,4-シスポリブタジエン高分子鎖を用い

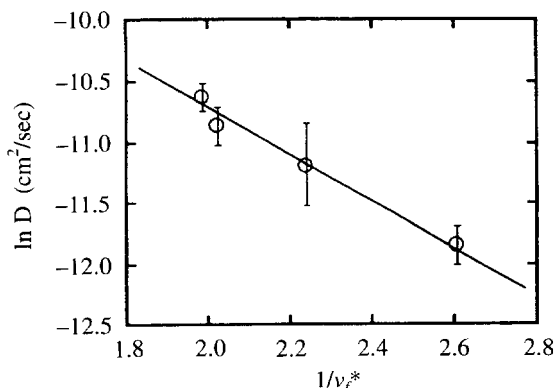


Fig. 8 Dependence of the self-diffusion coefficient of oxygen on the effective free volume fraction.³⁸⁾

て高分子鎖の広がりを表す回転半径を種々の温度で計算した。そして、Fig. 9に示すように回転半径と温度の関係にも屈曲点が現れ、それはポリブタジエンのガラス転移温度(170K)に一致することを確認している。また、Takeuchiらが報告したのと同じように、ガラス転移温度以下において局所的なコンフォメーション転移が起きていることを観察している。

3.4 粘弾性的性質

高分子溶融体や溶液の粘弾性的性質については長時間領域の現象であるため、分子動力学法で直接計算することは困難である。1本の高分子鎖や簡略化したモデルを用いて、粘度^{64, 65)}、応力歪み挙動⁶⁶⁻⁷²⁾、レオロジー特性⁷³⁻⁷⁶⁾、ゴム弾性^{28, 77)}について解析した例が報告されている。

McKechnieら⁷⁰⁾は1000個のCH₂グループからなるポリエチレンを用いて、応力をかけた系で計算を行い、高分子の構造と歪み硬化の関係について系統的に解析している。

高分子特有の性質を計算した例として面白い研究がある。Gaoら⁶⁶⁾は高分子溶融体について応力緩和現象を計算したが(Fig. 10)、このとき高分子の共有結合を全て取り除くことにより単原子分子の液体を作って、高分子溶融体との比較を行っている。Fig.10中の応力 τ および時間 t はともに無次元化した値である。これから両者の緩和プロセ

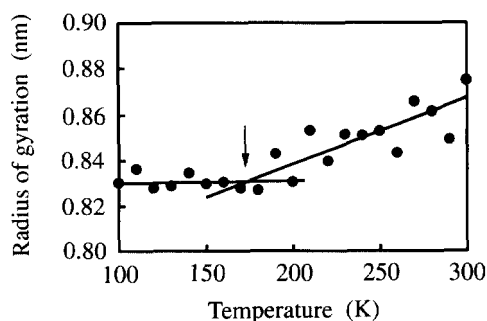


Fig. 9 Temperature dependence of the radius of gyration for polybutadiene ($n=50$).

スは類似のものであるがタイムスケールが大きく異なることが分かる。多数の原子が共有結合で結ばれていることが高分子の応力緩和を特徴づけている。

ゴム弾性は高分子鎖1本のエントロピー弾性によるものと考えられているが、山本ら²⁸⁾は重合度50の1本の1,4-シスポリブタジエン高分子鎖の両末端間距離を拘束した計算を行い、高分子の弾性を計算した(Fig. 11)。直線状に伸ばしたときの両末端間距離は22.5nmである。両末端間距離の小さい領域ではvan der Waals結合によるエネルギー弾性が現れ、拘束力が僅かに大きくなっている。

また、これはBrown動力学と呼ぶ原子に熱揺ら

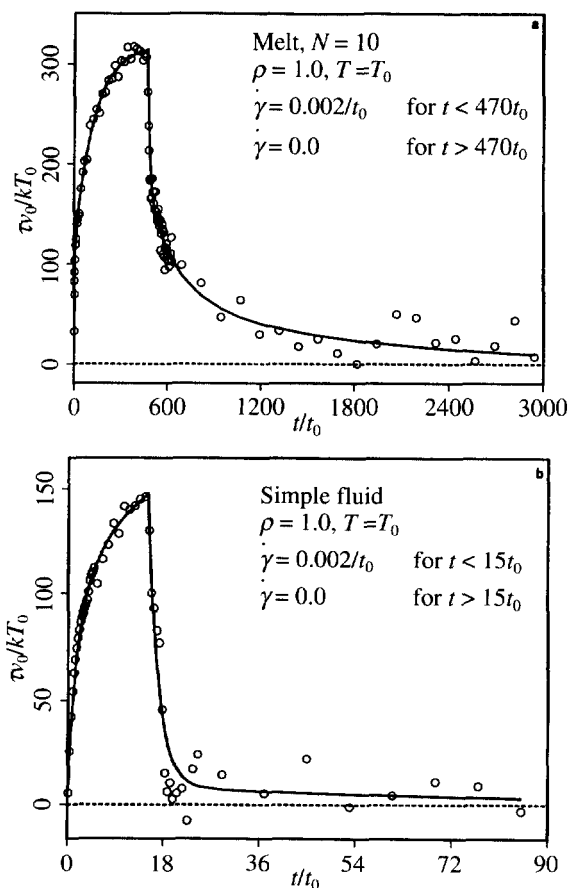


Fig. 10 Loading and unloading stress histories for (a) a polymer melt and for (b) the corresponding simple fluid.⁶⁶⁾

ぎを与えて分子運動を計算する方法であるが、Rudisillら^{6,5)}はビーズ-ばね模型を用いてせん断速度場における固有粘度と第一法線応力差を計算し、せん断速度依存性について考察している。

3.5 その他の応用

巨大DNAを分離するためにゲル電気泳動法が使われているが、その原理を解明する目的で、Deutschら^{7,9)}はゲル電気泳動中のDNAの運動を、 N 個のビーズが結合長 l で連結されたDNAモデルを用いて計算を行なっている。電場にひかれたDNAは伸長と収縮を繰り返しながら運動することを報告している。また、松本ら^{8,0,8,1)}は種々の鎖長、電場強度、ゲル濃度でシミュレーションを行いDNAのダイナミクスについて解析を行なっている。

強誘電性高分子であるポリフッ化ビニリデン(PVDF)やその共重合体は電子材料として注目されている。高橋^{8,2,8,3)}は分子動力学法によりPVDFの常誘電相の可能な構造について計算を行なっている。

その他、高分子液晶の相転移の解析にも分子動力学法が応用されている^{8,4)}。

4. 展望と課題

高分子の物性は分子構造すなわち一次構造だけでなく、多数の高分子鎖が作り出す高次構造にも

影響される。そのため、高分子の物性を理論的に予測することは極めて困難であり、最近の研究例に見られるようにごく限られた問題に対してのみ成功例が報告されているにすぎない。分子動力学法は高分子の複雑性をまともに取り扱うことのできる唯一の方法であろう。しかし、粘弾性の性質のような長時間の緩和現象までまともに計算することは現在の計算機および計算技術の延長線上では事実上困難であり、両者ともにブレークスルーが必要であろう。

高分子の分野でシミュレーションが行われるようになってきたとはいえ、まだまだ限られた問題へ応用されているにすぎない。今後、より複雑な問題、長時間の現象に対しては高分子の個性を損なわない程度のモデル化によって計算が可能になっていくものと考ええる。

5. おわりに

以上のように高分子の分野において分子動力学法がどのように使われ、何に应用されているかを見てきた。高分子の分野におけるシミュレーションはまだ未熟な段階である。しかし、高分子を対象とした分子動力学計算によって、実験では容易に知ることのできない細部の分子レベルの情報を得ることができることなど、その有用性が実証されつつある。そして、少しずつ成功例も報告されてきており、また国内外の市場もこの分野に力を入れていることを考えると将来は明るいように感じられる。

参 考 文 献

- 1) 高分子学会編：高分子科学の基礎，(1978)，東京化学同人
- 2) 小野木重治：化学者のためのレオロジー，(1982)，化学同人
- 3) Flory, P. J. : Statistical Mechanics of Chain Molecules, (1969), John-Wiley, New York
- 4) Doi, M. and Edwards, S. F. : The Theory of Polymer Dynamics, (1976), Oxford University Press, Oxford
- 5) 上田顯：コンピュータシミュレーション - マクロな系の中の原子運動 - , (1990), 10, 朝倉書店
- 6) 岡田勲, 大澤映二：分子シミュレーション入門, (1989), 37, 海文堂
- 7) 矢部孝, 川田重夫, 福田昌宏：シミュレーション物理入

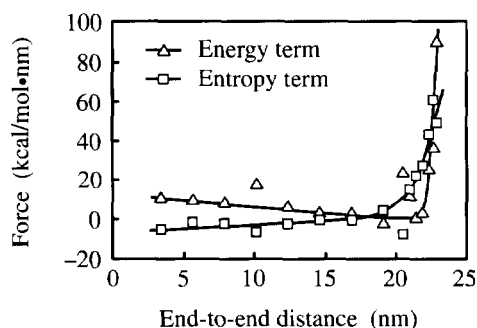


Fig. 11 Energy and Entropy contributions to the constrained force for polybutadiene ($n=50$) at 300K.

- 門 - 超粒子モデルの世界 -, (1989), 77, 朝倉書店
- 8) 田中實, 山本良一 : 計算物理学と計算化学 - 分子動力学法とモンテカルロ法 -, (1988), 海文堂
 - 9) 堂山昌男, 山本良一 : 計算材料科学, (1987), 海文堂
 - 10) Mayo, S. L., Olafson, B. D. and Goddard III, W. A. : J. Phys. Chem., 94(1990), 8897
 - 11) Karplus, M. and Kushick, J. N. : Macromolecules, 14(1981), 325
 - 12) Levy, R. M., Karplus, M., Kushick, J. and Perahia, D. : Macromolecules, 17(1984), 1370
 - 13) Nola, A. D., Berendsen, H. J. C. and Edholm, O. : Macromolecules, 17(1984), 2044
 - 14) Karasawa, N. and Goddard III, W. A. : Macromolecules, 25(1992), 7268
 - 15) Poon, T. W., Silverman, B. D., Saraf, R. F., Rossi, A. R. and Ho, P. S. : Phys. Rev. B, 46(1992), 11456
 - 16) Sesé, G., Catlow, C. R. A. and Vessal, B. : Mol. Simul., 9(1992), 99
 - 17) Zhan, Y. and Mattice, W. L. : Macromolecules, 25(1992), 1554
 - 18) Noid, D. W., Sumpter, B. G. and Wunderlich, B. : Polym. Commun., 31(1990), 304
 - 19) Wendoloski, J. J., Gardner, K. H., Hirschinger, J., Miura, H. and English, A. D. : Science, 247(1990), 431
 - 20) Sumpter, B. G., Noid, D. W. and Wunderlich, B. : Macromolecules, 25(1992), 7247
 - 21) Noid, D. W., Sumpter, B. G. and Wunderlich, B. : Macromolecules, 24(1991), 4148
 - 22) Sumpter, B. G., Noid, D. W. and Wunderlich, B. : J. Chem. Phys., 93(1990), 6875
 - 23) Noid, D. W., Sumpter, B. G., Varma-Nair, M. and Wunderlich, B. : Makromol. Chem. Rapid Commun., 10(1989), 377
 - 24) Noid, D. W., Pfeffer, G. A., Cheng, S. Z. D. and Wunderlich, B. : Macromolecules, 21(1988), 3482
 - 25) Wunderlich, B. : International Meeting on Polymer Science and Technology, Rolduc Polymer Meeting (5th) Limburg, (1991), 111
 - 26) Sumpter, B. G., Voth, G. A., Noid, D. W. and Wunderlich, B. : J. Chem. Phys., 93(1990), 6081
 - 27) Sumpter, B. G., Noid, D. W., Wunderlich, B. and Cheng, S. Z. D. : Macromolecules, 23(1990), 4671
 - 28) 山本智, 松岡孝明, 高橋秀郎, 倉内紀雄 : 第6回分子シミュレーション討論会講演要旨集, (1992), 59
 - 29) Brook, B. R., Brucoleri, R. E., Olafson, B. D., States, D. J., Swaminathan, S. and Karplus, M. : J. Comp. Chem., 4(1983), 187
 - 30) Smit, E., Mulder, M. H. V., Smolders, C. A., Karrenbeld, H., van Eerden, J. and Feil, D. : J. Membrane Sci., 73(1992), 247
 - 31) Sok, R. M., Berendsen, H. J. C. and van Gunsteren, W. F. : J. Chem. Phys., 96(1992), 4699
 - 32) Kawaguchi, M. and Takahashi, A. : Adv. Colloid Interface Sci., 37(1992), 219
 - 33) Vallés, J. L. and Halley, J. W. : J. Chem. Phys., 92(1990), 694
 - 34) Krishna, P. V. and Boyd, R. H. : Macromolecules, 26(1993), 679
 - 35) Müller-Plathe, F., Rogers, S. C. and van Gunsteren, W. F. : Chem. Phys. Lett., 199(1992), 237
 - 36) Müller-Plathe, F. : J. Chem. Phys., 94(1991), 3192
 - 37) Müller-Plathe, F. : Chem. Phys. Lett., 177(1991), 527
 - 38) Takeuchi, H., Roe, R.-J. and Mark, J. E. : J. Chem. Phys., 93(1990), 9042
 - 39) Takeuchi, H. : J. Chem. Phys., 93(1990), 4490
 - 40) Takeuchi, H. : J. Chem. Phys., 93(1990), 2062
 - 41) Takeuchi, H. and Okazaki, K. : J. Chem. Phys., 92(1990), 5643
 - 42) Guo, Y., Langley, K. H. and Karasz, F. E. : J. Chem. Phys., 93(1990), 7457
 - 43) Depner, M. and Schürmann, B. L. : J. Comput. Chem., 13(1992), 1210
 - 44) Pierleoni, C. and Ryckaert, J.-P. : J. Chem. Phys., 96(1992), 8539
 - 45) Forester, T. R. : Mol. Phys., 73(1991), 1335
 - 46) Depner, M., Schürmann, B. L. and Auriemma, F. : Mol. Phys., 74(1991), 715
 - 47) Luque, J., Santamaría, J. and Freire, J. J. : J. Chem. Phys., 91(1989), 584
 - 48) Smith, G. D., Jaffe, R. L. and Yoon, D. Y. : Macromolecules, 26(1993), 298
 - 49) Leisen, J., Werth, M., Boeffel, C. and Spiess, H. W. : J. Chem. Phys., 97(1992), 3749
 - 50) Kremer, K. and Grest, G. S. : J. Chem. Soc. Faraday Trans., 88(1992), 1707
 - 51) Duering, E. R., Kremer, K. and Grest, G. S. : Phys. Rev. Lett., 67(1991), 3531
 - 52) Mansfield, K. F. and Theodorou, D. N. : Macromolecules, 24(1991), 6283
 - 53) Kremer, K. and Grest, G. S. : Liquids, 3(1991), SA295
 - 54) Kremer, K. and Grest, G. S. : J. Phys. Condens. Matter, 2(1990), SA295
 - 55) Kremer, K. and Grest, G. S. : J. Chem. Phys., 92(1990), 5057
 - 56) Bitsanis, I. and Hadzioannou, G. : J. Chem. Phys., 92(1990), 3827
 - 57) Skolnick, J., Yaris, R. and Kolinski, A. : J. Chem. Phys., 88(1988), 1407
 - 58) Biller, P. and Petruccione, F. : J. Chem. Phys., 92(1990), 6322
 - 59) Nyden, M. R. and Noid, D. W. : J. Phys. Chem., 95(1991), 940
 - 60) Takeuchi, H. and Roe, R.-J. : J. Chem. Phys., 94(1991), 7458
 - 61) Takeuchi, H. and Roe, R.-J. : J. Chem. Phys., 94(1991), 7446

- 62) Sylvester, M. F., Yip, S. and Argon, A. S. : AD Rep., (1989), 4
- 63) Rigby, D. and Roe, R.-J. : J. Chem. Phys., 87(1987), 7285
- 64) Skolnick, J. and Yaris, R. : J. Chem. Phys., 88(1988), 1418
- 65) Rudisill, J. W., Fetsko, S. W. and Cummings, P. T. : Comput. Polym. Sci., 3(1993), 23
- 66) Gao, J. and Weiner, J. H. : Macromolecules, 25(1992), 1348
- 67) Weiner, J. H. : PB Rep., (1988), 11
- 68) Heyes, D. M. and Melrose, J. R. : Spec. Publ. R. Soc. Chem., 74(1989), 57
- 69) Gao, J. and Weiner, J. H. : J. Chem. Phys., 91(1989), 3168
- 70) Mckechnie, J. I., Haward, R. N., Brown, D. and Clarke, J. H. R. : Macromolecules, 26(1993), 198
- 71) Clarke, J. H. R. and Brown, D. : Mol. Simul., 3(1989), 27
- 72) Bønski, S. and Brostow, W. : J. Chem. Phys., 95(1991), 2890
- 73) Cummings, P. T. and Evans, D. J. : Ind. Eng. Chem. Res., 31(1992), 1237
- 74) Rudisill, J. W. and Cummings, P. T. : J. Non Newtonian Fluid Mech., 41(1992), 275
- 75) Zylka, W. : J. Chem. Phys., 94(1991), 4628
- 76) Denlinger, M. A. and Hall, C. K. : Mol. Phys., 71(1990), 541
- 77) Gao, J. and Weiner, J. H. : J. Chem. Phys., 90(1989), 6749
- 78) Weiner, J. H. : PB Rep., (1987), 4
- 79) Deutsch, J. M. and Madden, T. L. : J. Chem. Phys., 90(1989), 2476
- 80) 松本充弘, 土井正男 : 第6回分子シミュレーション討論会講演要旨集, (1992), 91
- 81) Yagi, M., Matsumoto, M. and Doi, M. : Computer Aided Innovation of New Materials II, Ed. by Doyama, M., Kihara, J., Tanaka, M. and Yamamoto, R., (1993), 311, Elsevier Science Publishers B. V., North-Holland
- 82) 高橋伸幸 : 第6回分子シミュレーション討論会講演要旨集, (1992), 31
- 83) Takahashi, N. : Computer Aided Innovation of New Materials II, Ed. by Doyama, M., Kihara, J., Tanaka, M. and Yamamoto, R., (1993), 299, Elsevier Science Publishers B. V., North-Holland
- 84) Fukutomi, S., Ichikawa, I., Yoshida, M. and Shiga, A. : Computer Aided Innovation of New Materials II, Ed. by Doyama, M., Kihara, J., Tanaka, M. and Yamamoto, R., (1993), 1373, Elsevier Science Publishers B. V., North-Holland

著 者 紹 介



山本智 Satoru Yamamoto
 生年 : 1963年。
 所属 : 高分子加工研究室。
 分野 : 粒子分散材料・高分子材料のコンピュータ解析に従事。
 学会等 : 日本燃焼学会, 高分子学会, 日本化学会会員。