

トポロジカル材料科学に基づく革新的機能を有する材料・デバイスの創出  
2019年度採択研究代表者

2021年度 年次報告書
-----------------

出口 哲生

お茶の水女子大学 基幹研究院  
教授

高分子弾性のホモロジー的トポロジー理論の構築と環状混合デバイス

## § 1. 研究成果の概要

高分子弾性体の大変形はムーニー・リブリンの式で記述されるが、しかし、この式を実現する微視的模型は知られていない。立方格子型ネットワークにおいてループ間の絡み合い数を保存するトポロジー的拘束条件下で一軸伸長させたところ、応力・歪曲線がこの式を実現する例が見出された。この結果は環状混合ソフトマテリアルの解析やネットワーク力学特性の設計等で重要である。

環状、線状、星形等の種々の分子構造を持つブロックポリマーに対する散逸粒子動力学(DPD)法と自己無撞着場(SCF)理論を用いたマイクロ相分離構造の比較から、両者のパラメタの対応関係を明らかにし、SCFを用いたDPDシミュレーションの初期構造の生成など両手法の協奏によるシミュレーションの効率化の可能性を見出した。

工業的に使われるゴム・エラストマーの構成成分であるポリジメチルシロキサン、ポリスチレン、水素添加ポリイソプレンからなる多環状高分子の合成に成功し、環状混合ソフトマテリアルの調製に活用した。また、多環状高分子の構造が環状混合ソフトマテリアル中でのトラップ効率に与える影響を系統的に調べ、環状ユニット数および環状ユニットサイズの増加に伴ってトラップ効率が上昇することを実験的に確認した。これらの傾向はシミュレーショングループが行った粗視化分子動力学(CGMD)の結果ともよく一致するものであった。

環状混合ソフトマテリアルの相分離構造の動的な3D観察手法を確立するために、マイクロ相分離構造を延伸しながら位相差TEM観察を行い、相分離構造の配向方向によって変形モードが異なることを見出した。さらに、環状混合ゴムの架橋系における環状鎖のトポロジー効果の実験的評価および力学的性質や高次構造の検討のため、合成グループ提供の化学架橋ゴムおよび熱可塑性エラストマーへの環状鎖添加効果を検討した結果、少量の環状鎖の添加により、伸張性や破壊靱性に向上が見られた。

## § 2. 研究実施体制

### (1) トポロジー理論解析・計算科学グループ

① 研究代表者: 出口 哲生 (お茶の水女子大学 基幹研究院 教授)

② 研究項目

- ・ホモロジーの境界演算子を用いた高分子ネットワークの弾性理論の基礎の構築
- ・トポロジカル高分子の諸物性の基礎理論と実験との比較
- ・結び目確率や絡み目生成確率の環状混合ソフトマテリアルへの応用
- ・環状鎖を考えた動的平均場計算法の確立と線状鎖の貫通割合 (自由エネルギー) の評価
- ・疎視化 MD 計算で環状鎖を貫通する線状鎖の本数の数値的評価

### (2) トポロジー高分子材料創製グループ

① 主たる共同研究者: 陣内 浩司 (東北大学 多元物質科学研究所 教授)

② 研究項目

- ・相分離構造の動的な 3D 観察手法の確立
- ・環状混合ゴムの架橋系における環状鎖のトポロジー効果の実験的評価
- ・環状混合ソフトマテリアルの力学的性質や高次構造の検討
- ・環状混合ソフトマテリアルの中の単独環状鎖の散乱実験

### (3) トポロジー高分子合成グループ

① 主たる共同研究者: 佐藤 敏文 (北海道大学 大学院工学研究院 教授)

② 研究項目

- ・トポロジカル高分子の新規合成法の開発
- ・トポロジカル高分子の諸物性評価
- ・環状混合ソフトマテリアルの調製に向けた単環状・多環状高分子の大量合成
- ・環状混合ソフトマテリアルの合成と力学的性質の評価

#### 【代表的な原著論文情報】

- 1) K. Hagita, T. Murashima, M. Ebe, T. Isono and T. Satoh, “Trapping probabilities of multiple rings in end-linked gels”, *Polymer* **245**, 124683 (2022).
- 2) K. Hagita, T. Murashima, M. Ogino, M. Omiya, K. Ono, T. Deguchi, H. Jinnai and T. Kawakatsu, “Efficient Compressed Database of Equilibrated Configurations of Ring-Linear Polymer Blends for Molecular Dynamics Simulations”, *Sci. Data* **9**, 40 (2022).
- 3) K. Hagita, T. Murashima and H. Jinnai, “Demonstration of reinforcement in polymer composite with rings penetrating the diamond-lattice network”, *Polymer* **243**, 124637 (2022).
- 4) Y. Mato, M. Sudo, H. Marubayashi, B. J. Ree, K. Tajima, T. Yamamoto, H. Jinnai, T. Isono, and T. Sato, “Densely Arrayed Cage-Shaped Polymer Topologies Synthesized via Cyclopolymerization Star-Shaped Macromonomers”, *Macromolecules* **54**, 9079-9090 (2021).

- 5) T. Murashima, K. Hagita and T. Kawakatsu, “Viscosity Overshoot in Biaxial Elongational Flow: Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulation of Ring-Linear Polymer Mixtures ” , *Macromolecules* **54**, 7210-7225 (2021).