

2024 年度年次報告書

トランススケールな理解で切り拓く革新的マテリアル

2023 年度採択研究代表者

石井 良樹

北里大学 未来工学部

講師

ハイブリッドソフトマテリアルの集合体物性を切り拓くナノ構造計算化学

研究成果の概要

有機ケイ素化合物は共有結合の安定性が炭素系と比べて低いものの、シロキサン(Si-O-Si)結合がエーテル結合よりも高い安定性を示し、重合すると無機化合物的な性質をもつポリシロキサン($-\text{[Si-O]}_n-$)骨格を形成する。有機ケイ素ポリマーは産業分野での汎用性こそ高いものの、ケイ素原子と有機化合物の間に一般化された分子力場は極めて少ないことから、前年度より量子計算を用いて有機化合物で汎用性の高い一般化 Amber 力場を有機ケイ素ポリマー系へと拡張し、有機ケイ素化合物がもつシロキサン結合の柔らかさを表現可能な Amber 系拡張モデルを新たに構築してきた。本年度はこのモデルを用いて大規模分子シミュレーションを展開し、イオン性のシロキサンポリマーが示すメソ集合形態の再現性と構造・機能について調べた。不均一集合構造とラメラ状のメソ集合構造を形成させたシロキサンポリマーを高温環境から緩和させたところ、水分子を含まない乾燥環境においてラメラ状のメソ集合構造の方が高密度状態を示した。このシロキサンポリマーの膨潤度を上昇させたところ、ラメラ構造と不均一構造の密度が逆転し、不均一構造の方が安定であることが示唆された。このシロキサンポリマーのナノ～メソ構造変化を調べたところ、ラメラ状の集合構造ではイオン性側鎖が反並行方向を向いた構造の方が安定であったのに対して、不均一集合構造では同一に近い方向で安定化している挙動であることが分かり、含水挙動の変化が高分子の一次構造の変化を誘起していることが分かった。次年度はこのシロキサンポリマーがもつマクロな力学機能の特異性をナノ・メソスケールの知見と統合させて解明させるため、体積変化に応じた力学機能解析へと発展させる。さらに本年度は、シクロデキストリン系包接化合物を対象とすることで分子吸着能と力学応答の定量的探索と実験との照合解析¹⁾、さらに自由エネルギー解析を応用した液晶相転移点の新規評価手法²⁾が構築できたことから、次年度にはこれらの議論を統合しつつ、金属有機化合物も対象としたハイブリッドソフトマテリアルの大規模分子シミュレーションによる物性探索へと展開予定である。

【代表的な原著論文情報】

- 1) T. Nakamura, H. Takayanagi, M. Nakahata, T. Okubayashi, H. Baba, Y. Ishii, G. Watanabe, D. Tanabe, T. Nabeshima, “Amide Cyclodextrin That Recognises Monophosphate Anions in Harmony with Water Molecules”, *Chem. Sci.* **16**, 171-181 (2025).
- 2) S. Ogita, Y. Ishii, G. Watanabe, H. Washizu, K. Kim, N. Matubayasi, “Atomistic analysis of nematic phase transition in 4-cyano-4'-n-alkyl biphenyl liquid crystals: Sampling for the first-order phase transition and the free-energy decomposition”, *J. Chem. Phys.* **162**, 054905 (2025).