

2023 年度年次報告書

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

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

主たる共同研究者：

佐藤 敏文（北海道大学 工学研究院 教授）

陣内 浩司（東北大学 多元物質科学研究所 教授）

研究成果の概要

トポロジーのホモロジー理論を応用して、任意のファントムネットワークの弾性率を抵抗距離により厳密に導く方法を発展させ、さらにネットワーク変形時の散乱関数の厳密な計算法を得た。そしてゴムなど高分子メルトの弾性率が架橋密度の非整数べき乗に比例することを理論的に示した。得られた形状因子を圧縮変形されたテトラペグ・ゲルの中性子散乱実験と比較した結果、小角領域の特徴の理論的説明に成功した。

任意のトポロジー構造に対応した自己無撞着場理論 (SCF) のアルゴリズムをまとめ、周期境界下の6分岐ゲルのSCF計算にも成功した。粗視化分子動力学で、多環高分子や θ 構造高分子の貫通状態を解析する計算を実行中である。絡み合う環状高分子について実験から得られた散乱関数からそのマイクロ相分離を予測可能となった他、環状高分子メルトの一本鎖スリップスプリングモデルを構築し、粘弾性挙動の実験との一致を確認した。

2022年度に北大と東北大が共同で発見した、環状高分子が示す特異な粘弾性挙動を機能性材料として特許出願するために、多様なサンプルを作成し、それらの状態を観察した。得られた観察結果を元に特許出願の実施例と比較例を作成した。環状高分子の分子像を明らかにするために、東北大学多元研のクライオ電顕を用いて分子の直接観察を実施した。その結果、多環状高分子と推察される単分子だけでなく、分子が集合したバンドル状態と思われる画像が得られた。

環状混合ソフトマテリアルのバリエーションを拡大するため、新規合成手法を検討した。例えば、多環状ポリアクリレートとアクリレートモノマー、架橋性モノマーの混合物を光ラジカル重合することで、ポリマー鎖の伸長と同時に環状鎖をトポロジカルトラップする手法を確立した。また、得られる材料の物性を動的粘弾性測定により系統的に評価することで、ブリードアウトの懸念がない新規なダンピング材料としての応用を検討した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) M. Ebe, A. Soga, K. Fujiwara, B. J. Ree, H. Marubayashi, K. Hagita, A. Imasaki, M. Baba, T. Yamamoto, K. Tajima, T. Deguchi, H. Jinnai, T. Isono, and T. Satoh, Rotaxane Formation of Multicyclic Polydimethylsiloxane in a Silicone Network: A Step toward Constructing “Macro-Rotaxanes” from High-Molecular-Weight Axle and Wheel Components, *Angew. Chem. Int. Ed.* (2023), Vol. 62, Issue 35, e202304493.
- 2) H. Marubayashi, M. Ebe, A. Imasaki, K. Fujiwara, N. Mashita, K. Hagita, T. Murashima, S. Mori, T. Isono, T. Satoh, H. Jinnai*, Toughening of a Polymer Network by the Addition of a Small Amount of Large-Sized Multicyclic Chains, *Polymer*, **292**, 126607 (2024).
- 3) Y. Tomiyoshi, T. Murashima, T. Kawakatsu, Single-Chain Slip-Spring Simulation for Entangled Ring/Linear Polymer Blends at Low Ring Fractions, *Macromolecules* **56** (23), 9896-9904 (2023).