

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

2020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

高分子鎖の微視的バネ定数が空間的に不均一な場合に高分子弾性のホモロジー的トポロジー理論を拡張した。さらに、面心立方格子など5種類の典型的格子の各々から格子点あるいは辺の上にランダムに欠陥を持つ格子を導き、ネットワーク弾性率を抵抗距離を用いて厳密に数値評価した。その結果、弾性率はほとんどの場合に架橋鎖密度と架橋点密度の差に比例する。ただし一般にネットワーク弾性率はその構造に依存するため、任意のネットワークに関しては今後の課題である。

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の予備検討として、無染色で相分離構造を観察する手法を検討し、位相差透過型電子顕微鏡法が最も有効な手法であることを見出した。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、最新式の万能材料試験機を導入し、合成 G 提供の環状混合ゴムの引張試験を行った。その結果、少量の環状鎖の添加により、伸張性と破壊靱性が向上することが明らかとなった。

トポロジー高分子の多様性を拡張するため、環化重合法に基づく多環状高分子合成を応用することで、かご型トポロジー鎖が高密度に集積した構造体(かご型グラフトポリマー)の合成に挑んだ。また、様々なトポロジーを有する結晶性高分子やブロック共重合体について基礎物性やナノ構造の解析を行い、トポロジーに由来する特異な挙動を見出した。この結果は理論との比較において今後有用な基礎データになると考えている。これに加え、本年度は環状混合ゴムの調製に必要な様々なトポロジーを有するポリジメチルシロキサン (PDMS) のグラムスケール合成を行った。さらに、環状混合ゴムのモデル系となる架橋 PDMS ゴムの合成法最適化を行い、再現性良くゴムを得る条件を確立した。この成果をもとに環状混合ゴムを調製し、材料創製 G に提供した。

## § 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
  - ・回路の抵抗距離と高分子ネットワーク弾性率の関係の解明
  - ・高分子ネットワーク弾性係数の架橋鎖密度や架橋点密度への依存性の解明
  - ・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
  - ・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) Mato, Y., Honda, K., Ree, B. J., Tajima, K., Yamamoto, T., Deguchi, T., Isono, T., Satoh, T., Programmed folding into spiro-multicyclic polymer topologies from linear and star-shaped chains, *Communications Chemistry*, **3**, 97 (2020), DOI: 10.1038/s42004-020-00355-4, IF: 6.581
- 2) Ree, B. J., Satoh, Y., Isono, T., Satoh, T., Bicyclic Topology Transforms Self-Assembled Nanostructures in Block Copolymer Thin Films, *Nano Lett.*, **20** (9), 6520-6525 (2020), DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c02268, IF: 11.189
- 3) Ree, B. J., Mato, Y., Xiang, L., Kim, J., Isono, T., Satoh, T., Topologically controlled phase transitions and nanoscale film self-assemblies of cage poly( $\epsilon$ -caprolactone) and its counterparts, *Polym. Chem.*, **12**, 744-758 (2021). DOI: 10.1039/D0PY01567A, IF: 5.582