

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

2022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

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

ファントムネットワークの弾性率を厳密に導く新しい理論的方法を確立した。ダイヤモンド格子やランダムグラフなど任意のネットワーク構造に対して、キルヒホッフ行列から抵抗距離を求めて導く。結果は架橋点分岐数や架橋鎖の密度だけでなく言わば架橋点の密度にも依存し、従来の公式を拡張する。今後、テトラペグゲル等の実験との比較や、絡み合い弾性模型の拡張による環状鎖混合系への応用を目標とする。

線状鎖の環状鎖への貫通によって、線状鎖が形成するネットワークに環状鎖がトポロジカルに束縛された「環状混合ソフトマテリアル」に対して、計測と計算の両面から力学特性を探索した。その結果、①環状鎖のトポロジー(環状鎖 1 分子あたりの環の数)、②環状鎖の環のサイズ、③線状鎖からなるネットワークの架橋点密度の 3 つの因子により系の力学特性が制御できることを見出した。計算により得られた知見からこれら 3 つの制御因子を最適化することにより、系の強靱化に成功した。

環状混合ソフトマテリアルの創製を目指して各種多環状高分子の大量合成を検討した。特に多環状ポリジメチルシロキサン(PDMS)では、10 g 以上のスケールアップ合成を達成した。多環状 PDMS をロタキサンの形で取り込んだ環状混合系の系統的合成を行った。結晶性ポリエステルからなる *spiro* 型およびかご型の多環状高分子の精密かつ系統的な合成に成功し、高分子トポロジーと慣性半径、流体力学的半径、粘度、結晶化度、平衡融点、密度などの物性との相関を明らかにした。

熱可塑性エラストマー(TPE)に多環構造ポリマーを加えた系のマイクロ相分離構造予測のため、TPE ポリマーと多環ポリマーの混合物のシリンダー構造を SCF 法でシミュレートした。多環ポリマーはシリンダー構造の中心に存在する傾向が強く、力学物性の変化およびリング数が大きい場合にマクロ相分離の可能性が示唆された。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Katsumi Hagita, Takahiro Murashima, Minami Ebe, Takuya Isono, Toshifumi Satoh, Trapping probabilities of multiple rings in end-linked gels, *Polymer*, 2022, **245**, 124683, DOI: 10.1016/j.polymer.2022.124683.
- 2) Minami Ebe, Asuka Soga, Kaiyu Fujiwara, Brian J. Ree, Hironori Marubayashi, Katsumi Hagita, Atsushi Imasaki, Miru Baba, Takuya Yamamoto, Kenji Tajima, Tetsuo Deguchi, Hiroshi Jinnai, Takuya Isono, and Toshifumi Satoh, Rotaxane Formation of Multicyclic Polydimethylsiloxane in Silicone Network: A Step toward Constructing "Macro-Rotaxane" from High-Molecular-Weight Axle and Wheel Components, *Angew. Chem. Int. Ed.* 2023, Accepted.
- 3) Hironori Marubayashi, Minami Ebe, Atsushi Imasaki, Kaiyu Fujiwara, Katsumi Hagita, Takahiro Murashima, Takuya Isono, Toshifumi Satoh, Hiroshi Jinnai, Toughening of a Polymer Network by Adding a Small Amount of Large-Sized Multicyclic Chains, Manuscript in preparation.