

力学機能のナノエンジニアリング
2021 年度採択研究者

2021 年度 年次報告書

玉手 亮多

物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究拠点
独立研究者

超高分子量ポリマーに基づく新奇機能開拓

§ 1. 研究成果の概要

本年度は溶媒と高分子のナノスケールの相互作用が超高分子量ゲルの力学特性に与える影響を調べるため、イオン液体・高分子構造を系統的に変化した超高分子量ゲルに関して検討を実施した。いずれの組み合わせにおいても in situ ラジカル重合において高いモノマー転化率を維持したまま分子量 100 万を超える超高分子量体が生成し、超高分子量ゲルが形成された。このことから、イオン液体系における超高分子量化の一般性を確認できた。

超高分子量ゲルの力学試験を実施したところ、溶媒・高分子構造の違いにより応力-歪み曲線に大きな違いがみられた。ゲルのガラス転移温度と弾性率には相関が存在するが、ナノ相分離構造が存在するイオン液体を溶媒とする系は相関からの乖離がみられた。特に非対称アニオンがナノ相分離する超高分子量ゲルは高い弾性率および破断応力を示した。これは分子量のみならずナノスケールの不均一性が超高分子量ゲルの力学特性に影響を与えることを示唆する。さらに自己修復特性を評価したところ、弾性率と自己修復率に相関が存在することが分かった。しかし興味深いことに、同じ弾性率においても自己修復特性に大きな違いがある組み合わせが見出された。これは、自己修復機能の発現には単純な分子運動性のみならず溶媒-高分子間のマイクロな相互作用の制御が重要であることを示唆する。

メカニズム解明のため、異なる自己修復率を持つ超高分子量ゲルのイオン液体・高分子構造の組合せに対して全原子分子動力学計算を行った。その結果、自己修復性が高い系では自己修復性が低い系と比較して溶媒中の高分子の慣性半径が大きく、さらに短距離の高分子間相関が大きいことが分かった。すなわち、自己修復性の高い系では高分子鎖が広がった形態をとり、さらに近距離に他の高分子鎖が存在しやすいことを示唆する。その結果、界面における絡み合いの再形成が進みやすく高い自己修復性を示したと考えられる。