

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2010

課題番号：19550121

研究課題名（和文） 外部刺激による結晶内微小空間の構造制御とその機能材料への応用

研究課題名（英文） Control of small cavities in polymer crystals by an external stimulus and its application to functional materials

研究代表者

玉井 良則 (TAMAI YOSHINORI)

福井大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：50324140

研究代表者の専門分野：高分子物理化学

科研費の分科・細目：複合化学・高分子化学

キーワード：高分子物性, 計算化学

1. 研究計画の概要

本研究では、外部刺激（温度、結晶に印加する応力、包接されるゲスト分子の種類や数の変化など）による結晶構造変化を分子動力学 (MD) シミュレーションによって再現し、それによって引き起こされる結晶内微小空間の構造変化を定量的に解析する。さらに、ゲスト分子が感じるポテンシャル場が、結晶内微小空間の変化によってどのように変化するかを、MD法、および、量子化学計算により解明する。人為的に結晶構造を変化させることにより微小空間の構造変化を誘起することができれば、結晶内微小空間の機能性を自在にコントロールすることが可能になる。これを実現するためには、どのような外的要因の変化を与えれば、どのような微小空間におけるポテンシャル場の変化が生ずるかを、分子レベルから定量的に解析する必要がある。本研究は、この関係を明らかにするものであり、結晶内微小空間の機能材料としての応用の道を拓くものである。

2. 研究の進捗状況

(1) 計算機環境の整備を進めた。当研究室所有のクラスター型並列計算機の CPU 等の基幹部品を最新のものに入れ替え、計算処理能力の大幅な向上を図った。また、研究代表者が開発した分子シミュレーションプログラム PAMPS を改良し、結晶に任意の応力を印加できるようにした。

(2) シンジオタクチックポリメチルスチレン (s-PMS) に各種有機分子を包接した結晶を対象として、MD シミュレーションにより結晶

構造の安定性を調べた。ゲスト分子の占有率や温度を変え、結晶が安定に存在できる領域を明らかにした。

(3) s-PMS 系の包接結晶について、結晶内微小空間の構造をクラスター解析の手法を用いて詳細に調べた。特に s-PMS/テトラヒドロフラン (THF) 系の包接結晶中に比較的大きなキャビティーが存在し、かつ、結晶の安定性も高いことが示された。

(4) 結晶に応力を印加した場合の結晶内微小空間の変化を調べた。応力下においては、特に大きなキャビティーを安定に存在させることは難しいことが示された。大きなキャビティーに対して応力による構造変化が可能となる領域を探索中である。

(5) 二酸化炭素の分離を念頭に置き、結晶内微小空間における気体分子の透過挙動の解析を進めた。溶解度および拡散係数を定量的に計算し、検討を進めている。

3. 現在までの達成度

②概ね順調に進展している。

(理由)

研究計画調書に記載した研究計画・方法の各項目を着実に実行しており、当初のタイムスケジュールに沿った研究進展状況である。研究成果に関しては、学会発表を積極的にやっているが、論文発表がやや遅れている状況にある。

4. 今後の研究の推進方策

最終年度を迎えるにあたり、これまでに得られた基礎データをもとに、研究の目的に沿った取りまとめの方向性を考える。論文発表を進めるとともに、二酸化炭素分離を始めとする各種応用の可能性について、集中的に検討する。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① 玉井良則, 福田光完, 高分子と水に関する分子動力学シミュレーション, 高分子, 58巻, 70-73 (2009) 査読無
- ② 田中正人, 玉井良則, インバートガラスの永久高密度化に伴う構造変化—分子動力学法による特異な高密度化現象の解明, 福井大学大学院工学研究科研究報告, 57巻, 1-9 (2009) 査読無

[学会発表] (計6件)

- ① 玉井良則, 高分子結晶中のキャビティーを利用した気体分離, 第23回分子シミュレーション討論会, 2009.12.1, 名古屋工業大学 (名古屋市)
- ② 玉井良則, 福田光完, ポリメチルスチレン包接結晶のゲスト占有率と気体透過性の関係, 第57回高分子討論会, 2008.9.24, 大阪市立大学 (大阪市)
- ③ Y. Tamai, Effects of Guest Clathration on Sorption of Organic Liquids into Crystalline Polymer Membranes, 7th Liquid Matter Conference, 2008.6.27, ルンド大学 (スウェーデン)
- ④ 玉井良則, 福田光完, シンジオタクチックポリメチルスチレン包接結晶における分子キャビティーの安定性, 第57回高分子学会年会, 2008.5.28, パシフィコ横浜 (横浜市)
- ⑤ Y. Tamai, M. Fukuda, Cavity structures in crystalline membranes of clathrate syndiotactic poly(methylstyrene), The 10th Pacific Polymer Conference (PPC10), 2007.12.5, 神戸国際会議場 (神戸市)
- ⑥ 玉井良則, 福田光完, シンジオタクチックポリメチルスチレン包接結晶のキャビティー構造解析, 第56回高分子討論会, 2007.9.19, 名古屋工業大学 (名古屋市)