

平成18年 2月24日

氏名 大橋 秀伯



21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科
応用化学専攻、化学システム工学専攻、
化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成17年度リサーチ・アシスタント報告書

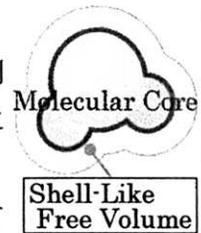
ふりがな 氏名	おおはし ひでのり 大橋 秀伯	生年月日
所属機関名	東京大学大学院工学系研究科	
所在地	東京都文京区本郷7-3-1 工学部5号館7階701号	
申請時点での 学年	博士課程1年	
研究題目	新規ユニバーサル拡散モデルの構築及び生体分子デバイス設計への応用 (プロジェクト名：人工細胞型新規マイクロ・リアクタ・システムの開発)	
指導教員の所属・氏名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻 山口 猛央	

I 研究の成果 (1000 字程度)

(図表も含めて分かりやすく記入のこと)

生体においては分子認識や酵素反応・拡散等の物質移動が協調することで高機能なシステムを実現している。本研究ではこのような生体の特徴を模倣したシステムの提案を行っているが、詳細な機能設計のためには物質移動特性である拡散性の情報は必要不可欠である。このように、拡散性を予測するモデルに対する需要は高い。しかしながら高分子を含む系においては、複雑な高分子構造に起因する理論的扱いの困難さにより、十分な予測性を有する拡散モデルは提案されてこなかった。

これに対し本研究では、高分子中の気体分子及び溶媒分子の拡散性を予測するモデルの提案を既に行っている。本モデルの基礎概念は、Figure 1 に示すような拡散分子のまわりに存在する空間「shell-like free volume : $v_{f,shell}$ 」こそが拡散分子が真にアクセスできる空間であり、この量によって



拡散性が表現されるというものである。本モデルは拡散分子周りの高分子・溶媒を均一と見做す自由体積モデルである。本年度はこの

Figure 1 Schematic Image of "Shell-Like Free Volume"

概念を用いて高分子水溶液中における溶質分子の拡散性予測へのモデル拡張を試みた。広範な適用範囲を持つ Einstein-Stokes 式 $D_{solute} = RT / 6\pi\eta R_{solute}$ (媒体粘度 η と溶質拡散性 D_{solute} を結びつける式) を用いれば広範な溶質分子に対する応用性の高いモデルを構築できると考え、高分子水溶液の粘度を介したモデルの提案を Figure 2 のように行った。

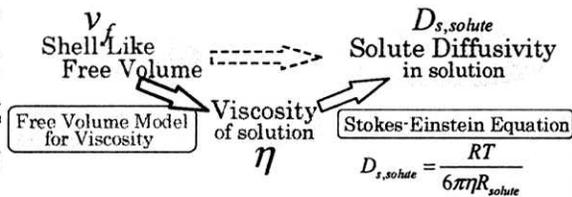


Figure 2 Scheme for Prediction of Solute Diffusivity in Polymer Solution

本溶質拡散性予測モデル実現のためには、まず自由体積モデルを用いて高分子粘度を表現する必要があるため、粘度の起源である分子摩擦と分子拡散の等価性について理論的考察を行った。この結果、ミクロなブラウン運動を記述する Langevin 及び Fokker-Planck の両方程式から、拡散現象と摩擦現象はミクロな分子衝突の観点から見て等価であり、本研究の shell-like free volume のモデルによって摩擦係数 ζ を $\zeta = \zeta_0 \exp(-v^* / v_{f,shell})$ の形で記述できることがわかった (ζ_0 は前因子、 v^* は分子コア体積)。高分子の粘度は高分子のつながりに起因する「構造因子」と「1セグメントあたりの摩擦係数」の積として表されるが、現在までの高分子物理の研究は高分子鎖絡み合いなどの「構造因子」の説明のみに終始しており「1セグメントあたりの摩擦係数」の表現にはほとんど注意が払われてこなかった。高分子粘度を「予測」する目的のためには摩擦係数の表現も同等に重要であり、本モデルによる摩擦係数の記述はこれに対し大きな寄与を与えるものと期待される。本アプローチにより高分子粘度予測モデルの提案が可能になり、同時に高分子水溶液中の溶質拡散性予測モデル構築も可能になると考えている。

氏 名 大橋 秀伯

II (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む。)

共著の場合、申請者の役割を記載すること。

(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

著者： Hidenori Ohashi, Yoshie Hiraoka, and Takeo Yamaguchi

題名： "An Autonomous Phase Transition-Complexation/Decomplexation Polymer System with a Molecular Recognition Property"

掲載誌名： Macromolecules

年月： 掲載決定済み

申請者の役割： 申請者は実験及び論文の執筆を担当した。いくつかの実験を第二著者と共に行った。また第三著者は担当教官である。

氏 名 大橋 秀伯

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文

(共同研究者 (全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

発表者： ○大橋秀伯、山口猛央

題目： 高分子中の物質拡散性を予測する新規自由体積モデルの構築

学会名・場所： 高分子材料開発のための俯瞰的シンポジウム 東京大学山上会館

年月： 2005年7月21日～22日

発表者： ○大橋秀伯、山口猛央

題目： 新規ユニバーサル拡散モデルの構築

学会名・場所： 化学工学会関東支部 50周年記念大会 早稲田大学国際会議場

年月： 2005年8月4日～5日

発表者： ○Hidenori Ohashi and Takeo Yamaguchi

題目： "A Novel Diffusivity Prediction Model for Gas and Solvent Molecules in Polymers"

学会名・場所： The Seventh International Conference on Separation Science and Technology "Between Korea and Japan" Dongyang University, Yeongju, Korea

年月： August 17-19, 2005

発表者： ○Hidenori Ohashi, Hideaki Morito, and Takeo Yamaguchi

題目： "Development of a novel solvent diffusion model in polymer based on free volume theory"

学会名・場所： International Congress on Membranes and Membrane Process 2005 Lotte Hotel Jamsil, Seoul, Korea

年月： August 21-26, 2005

発表者： ○大橋秀伯、山口猛央

題目： 新規なユニバーサル自由体積拡散モデルの構築

学会名・場所： 化学工学会第87回秋季大会 岡山大学 津島キャンパス

年月： 2005年9月15日～17日