

平成 21 年 4 月 20 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18068004

研究課題名（和文） 光子相関解析によるソフトマターダイナミクス

研究課題名（英文） Softmatter Dynamics by Photon Correlation Analyses

研究代表者

柴山 充弘 (SHIBAYAMA MITSUHIRO)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：00175390

研究分野：化学

科研費の分科・細目：複合化学・高分子化学

キーワード：ソフトマター、ダイナミクス、動的光散乱、小角中性子散乱、ゲル化

1. 研究計画の概要

動的光散乱、中性子小角散乱、および中性子スピンエコー法を用いて、代表的なソフトマターの一つである高分子ゲルの構造とダイナミクスについて研究を行う。特に、最近非常に注目されている高性能ゲルの優れた力学物性と構造の関係について詳細に検討する。

2. 研究の進捗状況

(1) コントラスト変調小角中性子散乱による高性能ゲルの構造解析 高分子とクレイとからなる有機無機ナノコンポジットゲルの構造解析に精緻なコントラスト変調(CV-SANS)法を適用し、散乱関数を成分に分解した。その結果、クレイ表面に高分子の吸着層が存在すること、クレイが2次元架橋面として働いていることがわかった。さらに、CV-SANSを延伸NCゲルに適用し、初めて異方性2次元散乱パターンの散乱強度の分解に成功した。延伸に伴い、クレイおよびポリマー鎖が延伸方向に優先配向していくこと、ポリマーとクレイの界面に吸着していたポリマー層の離脱が起こることなどがわかった。この結果より、NCゲルの驚異的な力学物性の発現には、クレイによる補強効果、架橋効果に加え、凝集層の存在が重要であることがわかった。

(2) ポリロタキサンの局所ダイナミクス シクロデキストリン(CD)環状分子にポリエチレングリコール(PEG)を貫通して得られるポリロタキサンのDMSO溶液のコンフォメーションを小角中性子散乱(SANS)、

および中性子スピンエコー法(iNSE)により濃度の関数として評価した。SANSからは、ポリロタキサン濃度が上昇するにつれ、持続長が減少するのに対し、PEGのそれは変化しないことが分かった³⁾。その理由として、CD分子がPEG上を速い速度で動き回っていると推論した。通常の水素化ポリロタキサン(h-PR)に加え、重水素化ポリロタキサン(d-PR)を使ったCV-SANSおよびCV-NSE実験を行い、ポリロタキサンのダイナミクスを詳細に調べたところ、ロタキサン中のCD分子の拡散係数は、CD水溶液のそれに比較して約1/3であることが分かった。これにより、ロタキサン中のCD分子は軸鎖上を一次元運動していると結論した。

3. 現在までの達成度

当初の計画以上に進展している。

(理由)

申請者グループが方法論として確立させたコントラスト変調法を積極的に中性子散乱および中性子スピンエコー法に活用したこと、動的光散乱との相補的利用による高性能高分子ゲルの優れた力学物性をダイナミクスの観点から集中的に研究したことにより、非常に多くの有用な知見を得ることができた。また、中性子スピンエコー法については、約10倍の強度をもつドイツの研究施設を使うことができたことも大きい。研究方法論動的光散乱、中性子散乱実験はほぼ終了し、現在は論文にまとめる作業にある。中性子スピンエコーについては予備実験が終わった段階にある。

4. 今後の研究の推進方策

中性子スピンエコーについて重水素化ポリエチレングリコールを用いてさらに詳細に運動モードの特定を行い、運動モードの完全分離を行う。

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26件)

Miyazaki, S., Endo, H., Karino, T., Haraguchi, K., Shibayama, M., Gelation Mechanism of Poly(N-isopropylacrylamide)-Clay Nanocomposite Gels, *Macromolecules*, 40, 4287-4295, 平成19年(2007), 有

Matsunaga, T., Shibayama, M., Gel Point Determination of Gelatin Hydrogels by Dynamic Light Scattering and Rheological Measurements, *Phys. Rev. E, Rapid Commun.*, 76, 030401-1-030401-4, 平成19年(2007), 有

Shibayama, M., Kawada, H., Kume, T., Sano, T., Matsunaga, T., Osaka, N., Miyazaki, S., Okabe, S., Endo, H., In situ small-angle neutron scattering and rheological measurements of shear-induced gelation, *J. Chem. Phys.*, 127, 144507-1-144507-7, 平成19年(2007), 有

Shibayama, M., Universality and Specificity of Polymer Gels Viewed by Scattering Methods, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 79, 1799-1819, 平成18年(2006), 有

Osaka N., Shibayama, M., Pressure-Induced Phase Transitions of Hydrophobically Solvated Block Copolymer Solutions, *Phys. Rev. Lett.*, 96, 048303-1/-048303-4, 平成18年(2006), 有

[学会発表](計77件)

Shibayama, M., Pressure- and Temperature-induced Gelation of α -Lactoglobulin, Polymer Networks Group meeting, Larnaca, 2008.5.22-26, Cyprus
Shibayama, M., Small-angle Neutron Scattering and Dynamic Light Scattering Studies on High-Performance Polymer-Nanocomposite Hydrogels, 46th Microsymposium of P.M., Prague Nanosrutred Polymers and

Polymer Nanocomposites Main Lecturer, 2007.7.7-13, INSTITUTE OF MACROMOLECULAR CHEMISTRY AS CR, v.v.i.

Shibayama, M., Deformation Mechanisms of High Performance Gels Studied by Small-angle Neutron Scattering, Jülich Soft Matter Days 2006, 2006.11.14-17, Gustav-Stresemann-Institut Bonn, Germany

Shibayama, M., Complementary Use of SANS and DLS Studies for Structure Analysis and Dynamics of Polymer Gels, International Conference on Small-angle Scattering, 2006.7.9-13, Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan

Shibayama, M., Microphase Separation of Gradient Copolymer Aqueous Solutions, International Conference on polymer Physics (PP2006), 2006.6.1-5, Suzhou, China

[図書](計8件)

Shibayama, M., *Soft Matter Characterization, Small-angle Neutron Scattering on Gels* Edited by P. Pecora and R. Borsali, 2008, 783-832

柴山充弘, NTS、ゲル・イノベーション、ゲルの構造と相転移現象・高分子学会編、2008、45-80

柴山充弘, 21世紀の物質科学、分子の紐で作る不思議なソフトマターの世界、2008、171-184

柴山充弘, 高圧力の科学と技術、中性子散乱・光り散乱により高分子水溶液・ゲルの圧力誘起相分離と疎水性相互作用の研究、2007、132-135

柴山充弘, 月刊エネルギー、中性子の産業利用の展開・高分子分野、2006、173-175

[その他]

ホームページ:

<http://shibayama.issp.u-tokyo.ac.jp/mitsu/index.html>