

コントラスト変調中性子散乱法による 多成分系ゲルの精密構造解析

(東京大学物性研究所附属中性子科学研究施設) 遠藤 仁

【はじめに】高分子ゲルは吸水性に優れるが、一般的に軟らかく脆い。この“常識”を覆す優れた力学特性を有する高分子ゲルが、21世紀の日本で相次いで開発された。これらのゲルは多成分ゲルであり、その構造がナノスケールで制御されているという点が機能発現の鍵となっている。本研究に於いては、ナノコンポジット(NC)ゲル[1]とスライドラング(SR)ゲル[2]の基本構成単位であるポリロタキサンに関して、コントラスト変調中性子小角散乱法及びスピネコー法を用いて、その動的静的構造をナノスケールで研究した。

中性子を散乱のプローブとして用いる場合、試料分子の水素原子を重水素で置換する事により、その物理的性質に大きな影響を及ぼす事なく散乱コントラストを大幅に変える、いわゆるコントラスト変調法が可能である。[3] この手法を用いることで多成分系における各成分の散乱寄与を分離し、その構造(弾性散乱から)とダイナミクス(非弾性散乱から)を定量的に評価することが可能となる。

【結果と考察】NCゲルとは、川村理研・原口和敏博士らによって開発された新規物質で、円盤状鈹物ナノ粒子と高分子とからなる無機有機複合体であり、高延伸性等、従来のゲルを遥かに凌ぐ高力学特性を有する[4]。(図1左参照) このNCゲルのナノ構造に関して、コントラスト変調中性子小角散乱法を適用し、円盤状鈹物ナノ粒子が2次元的な架橋面として機能している事を実験的に初めて検証した[5]。

一方、東京大学の奥村泰志博士と伊藤耕三教授が開発したSRゲルとは、ポリロタキサン(線状高分子に環状分子がネックレス状に連なった超分子。軸となる高分子鎖の両末端をかさ高い官能基で置換することで環状分子が抜けないようにしている。)を基本構成単位とし、ポリロタキサン分子間の環状分子を“8の字”架橋することで架橋点が滑車の様に可動するゲルである。(図1右参照) 軸分子の長さ及び環状分子の充填率や架橋濃度を調節することで、NCゲル同様に優れた力学特性を発現する。この系に関して、軸高分子に連なった環状分子の微視的構造を調べる為にコントラスト変調中性子散乱法を用い、ポリロタキサンの静

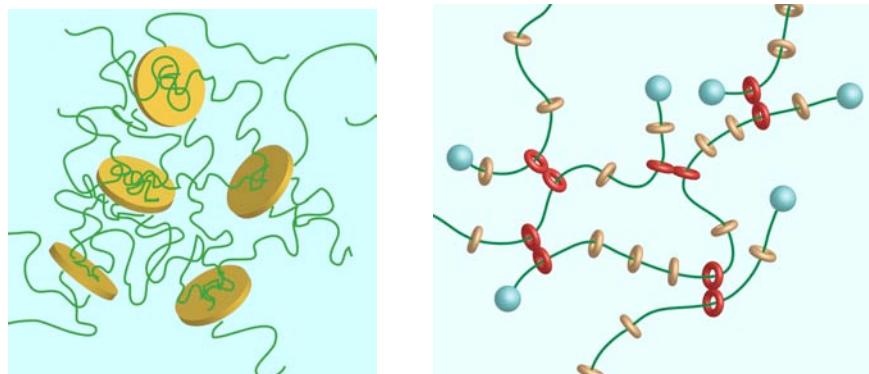


図1 : NCゲル(左)とSRゲル(右)の模式図

的構造を小角散乱から、動的構造を非弾性散乱法の一つである中性子スピンエコー法をそれぞれ使い、環状分子の軸高分子上に於ける分布及びその拡散に関するナノスケールでの時空間情報を得る事を試みた。

本研究に於いては、多成分系からの情報が部分散乱関数として分離されて得られる点に特色がある。部分散乱関数は、一つの成分を反映した **Self-Term** と二成分間の相互作用を直接反映する **Cross-Term** に分けられ、特に **Cross-Term** が実験的に得られる事がコントラスト変調法の利点である。(図2参照) 得られた **Cross-Term** を詳細に解析する事で、多成分系に於ける複雑な相互作用の定量的解釈が可能となる。多成分系では異種成分間の特異的相互作用が新奇な物性を発現させる。NC ゲルに於いては高分子鎖と円盤状鉍物ナノ粒子の相互作用が、ポリロタキサンに於いては環状分子と軸高分子との相互作用が、**Cross-Term** の検証によりそれぞれ明らかとなる。

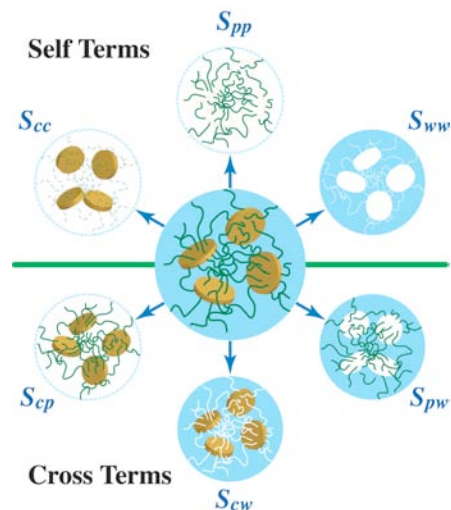


図 2 : NC ゲルにおける部分散乱関数の概念図。

【謝辞】 川村理研・原口和敏博士のグループから NC ゲルの提供及び合成に関するご助言を頂きました。東大新領域の眞弓皓一氏と伊藤耕三先生・NIST の長尾道弘博士とは、SR ゲルの研究を共同で行いました。東大物性研・大坂昇氏・西田理彦氏とは中性子散乱実験を共に行いました。研究の全般に渡り、東大物性研・柴山充弘先生の全面的なご支援・ご指導を頂きました。本研究の遂行にあたって、以上の方々に感謝の意を表します。

【参考文献】

- [1] K. Haraguchi and T. Takeshita, *Adv. Materials* **14**, 1120 (2002).
- [2] Y. Okumura and K. Ito, *Adv. Mater.* **13**, 485 (2001).
- [3] 例えば J. S. Higgins and H. C. Benoit, *Polymers and Neutron Scattering* (Clarendon, Oxford, 1994).
- [4] K. Haraguchi, R. Farnworth, A. Ohbayashi, and T. Takehisa, *Macromolecules* **36**, 5732 (2003).
- [5] H. Endo, S. Miyazaki, K. Haraguchi and M. Shibayama, *Macromolecules* **41**, 5406 (2008).