

PF アクティビティレポート：ユーザーレポートについて

SAXS study of spatial heterogeneity free gel at different deformation conditions

Li Xiang^{1,*}, 辻優依¹, 柴山充弘²

¹ 東京大学物性研究所, 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

² 一般財団法人 総合科学研究機構 中性子科学センター

〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方 162-1 いばらき量子ビーム研究センター内

Xiang LI^{1,*}, Yui TSUJI¹, and Mitsuhiro SHIBAYAMA²

¹ Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba, 277-8581, Japan

² Comprehensive Research Organization for Science and Society (CROSS) Neutron Science and Technology Center

IQBRC Bldg, 162-1 Shirakata, Tokai, Naka, Ibaraki, 319-1106, Japan

1 はじめに

高分子ゲルは固体でありながらも、高い柔軟性や物質透過性などといった特性を持つことから、薬物の徐放化担体や3次元細胞培養の細胞外マトリックスなどの医療応用を始め、おむつや化粧品の吸水・保水材、食品工学など様々な分野で利用されている。ゲルの材料設計を行う上で、ゲルの構造とそれによってもたらされる物性を制御する必要があるが、ゲルの網目構造には種々の不均一性が存在し、一般にゲルの構造は明確に定義することが難しい。

これらの不均一性はゲルの力学物性や光学物性などを低下させ、理論的予測との乖離をもたらす。ゲルの力学的特性の理論的解明は高分子物理における長年の課題であり、これまで様々なモデル予測がなされてきたが、ゲルの不均一性から、構造と力学特性の相関を実験的に検証することは非常に困難であった。

我々の研究グループは最近の研究で、空間不均一性が殆どないゲルの合成に成功した[1]。均一ゲルにおける変形時の散乱ではこれまで不均一性によって阻まれて観測が不可能であった網目の変形にフォーカスした測定が可能であり、マイクロな網目の変形挙動を明らかとすることができる。本課題ではゲルの一軸延伸下でのマイクロな構造変化とマクロな力学物性の相関の解明を目的として PF BL6A を利用して、小角 X 線散乱測定を行った。

2 実験

散乱実験に使用したゲルは N-ヒドロキシスクシンイミドエステル末端を持つ 4 分岐の星形ポリエチレングリコール(PEG)と両末端アミンの直鎖低分子架橋材を末端架橋反応させることで合成される。溶媒は N,N'-ジメチルホルムアミドを用い、濃度は 120 mg/mL とした。

散乱測定は伸長状態のゲルに対して行った。ゲル形状はダンベル型で厚みは 1 mm のものを用いた。延伸倍率 λ は 1.0 (未延伸), 2.7, 4.3, 8.0 の 4 点を測定した。測定波長は 0.15 nm, カメラ長は 2.5 m であった。測定は全て常温、常圧で行った。X 線照射によるサンプルダメージを避けるため、露光時間は 3 秒とした。

3 結果および考察

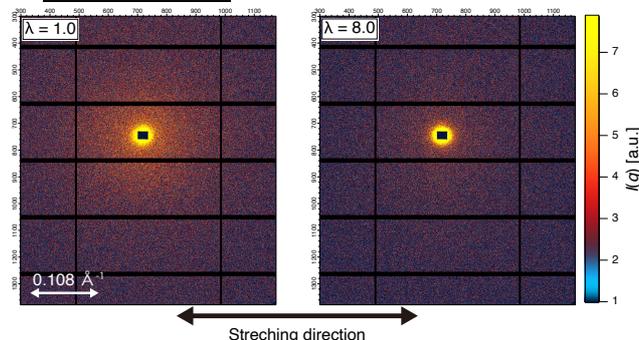


図 1：均一ゲルの未延伸および延伸状態における 2 次元散乱プロファイル、カメラ長は 2.5m

図 1 に均一ゲルの 2 次元散乱プロファイルを示す。左図は未延伸状態、右図は 8 倍延伸状態における結果である。未延伸状態に比べて、延伸状態では延伸に伴うゲルサンプルの厚みが減少し、散乱強度が減少しているが、散乱プロファイルの形状の変化は見られない。これまでのあらゆるゲルはわずかに 1.5-3 倍程度変形で、延伸方向に垂直な方向に異方的な散乱パターン（ノーマルバタフライパターン）、あるいは延伸方向に平行な方向に異方的な散乱パターン（アブノーマルバタフライパターン）が観測された[2][3][4][5]。しかし、当該ゲルでは 8 倍まで延伸しても一切異方的な散乱パターンは観測されていない。詳細な解析結果については現在論文作

成中であるため、現段階ではここまでの発表に留める。

4 まとめ

今回測定を行った均一ゲルでは最大 8 倍延伸下まで散乱プロファイルに変化は見られなかった。この結果はこれまで報告されたあらゆるゲルの結果と異なるものであり、ゲルのマイクロ構造とマクロな力学物性の相関を理解する上で重要な発見である。

参考文献

- [1] X. Li, S. Nakagawa, Y. Tsuji, N. Watanabe, M. Shibayama, *Sci. Adv.*, **2019**, 5, eaax8647.
- [2] J. Bastide, L. Leibler, J. Prost, *Macromolecules*, **1990**, 23 (6), 1821.
- [3] E. Mendes, P. Lindner, M. Buzier, F. Boué, J. Bastide, *Phys. Rev. Lett.*, **1991**, 66, 1595.
- [4] T. Matsunaga, H. Asai, Y. Akagi, T. Sakai, U. Chung, M. Shibayama, *Macromolecules*. 44, 1203–1210, **2011**.
- [5] T. Karino, Y. Okumura, C. Zhao, T. Kataoka, K. Ito, M. Shibayama, *Macromolecules*. 38, 6161–6167 **2005**.

* x.li@issp.u-tokyo.ac.jp