

研究助成研究成果報告書

令和 4 年 3 月 31 日

公益財団法人江野科学振興財団
理事長 江野真一郎 殿

貴財団より助成のありました研究の成果について下記のとおり報告します。

申請者名

Li Xiang 印

記

1.研究課題名

和文

新規超空間均一な高分子ゲルを用いた架橋高分子の構造と力学物性の相関の探求

英文

Investigation of correlation between structure and mechanical property of crosslinked polymers using extremely homogeneous gels

2.申請者名(代表研究者)

氏名 Li Xiang (リ シャン)	ローマ字表記 Li Xiang
所属大学・機関名 北海道大学	英訳表記 Hokkaido University
学部・部課名 大学院先端生命科学研究院	英訳表記 Faculty of Advanced Life Science
役職名 准教授	英訳表記 Associate professor

3.共同研究者（下段 英訳表記）

氏名	所属機関名・学部名・役職
(氏名) (英訳表記) (英訳表記)
(氏名) (英訳表記) (英訳表記)
(氏名) (英訳表記) (英訳表記)

4.英文抄録（300語以内）

Although crosslinked polymer materials are indispensable in modern society, the relationship between crosslinked structures and mechanical properties is still not well understood, and frequently reported discrepancies between theory and reality. One of the reasons for this discrepancy is the structural defects that inevitably occur during the crosslinking reaction. These structural defects cause complex mechanical responses that are difficult to control.

In this study, we deformed an extremely uniform polymer network uniaxially. We measured the structural changes that occurred during the deformation using small-angle X-ray scattering (SAXS) to elucidate the correlation between crosslinked polymers' structure and mechanical response.

To create a uniform polymer gel, we dissolved tetra-branched polyethylene glycol (PEG) with an active ester with a molecular weight of 20k at the end of dimethylformamide (DMF) at the back with a polymer concentration of 10 wt%. The ratio of 4-branched PEG was dissolved in a PEG solution. The PEG solution was gelled within a few minutes, and the reaction finished in about half a day. The resulting gel is clear and colorless and can be stretched much larger than conventional gels with the same crosslink density and molecular weight between crosslinking points.

The gels were deformed to a predefined elongation ratio and measured using small-angle and wide-angle X-ray scattering at the Photon Factory (PF), BL06A, BL10C, and BL15A2, High Energy Research Organization (KEK). Using the custom-made elongation tester, we can extend the gels up to 20 times. The SAXS profiles show unique anisotropic and ordered patterns distinct from the conventional butterfly patterns. These scattering results help explain the homogeneous network structure and provide a basis for understanding materials with complex network structures in general.

5.研究目的

架橋高分子材料は現代社会において必要不可欠な材料であるが、架橋構造と力学物性の関係はいまだに十分に理解されているとは言えず、理論と現実の乖離が頻繁に報告されている。この乖離の原因として指摘されているが、架橋反応途中で否応無しに生じる構造欠陥にある。これらの構造欠陥は複雑な力学応答を引き起こし、材料物性を低下させるだけでなく、その制御をも困難にしている。構造欠陥を抑えることは、架橋構造と力学応答の相関を理解することに繋がり、高機能架橋材料の開発の設計指針を与える。

しかし、架橋反応は確率論的に進むため、構造欠陥は架橋材料の避けられない宿命だと考えられてきた。実際、近年東大の酒井らが開発した、理想網目を持つとされる TetraPEG ゲルでも、空間不均一性を示す顕著な異常小角散乱やスペckルパターンが観測されている。申請者は直近の研究で、古典的な Bond-percolation 理論にヒントを得て、架橋前の高分子に空間的な拘束を掛けることによって、これまでの常識を打ち破る、空間不均一性が全く存在しない高分子ゲルの合成に世界で初めて成功した (Li et al., Science Advances, 5, eaax8647, 2019)。

本研究では、この究極なまでに均一な高分子網目を一軸変形させ、その際に生じる構造変化を、量子散乱を用いてその場観測し、架橋高分子の構造と力学応答の相関の解明を目指す。

6.研究内容及び成果の本文

別紙に作成添付してください。(冒頭に所属、氏名、研究課題を記載ください)

7.今後の研究の見通し

散乱結果の統計精度をより一層向上させることにより、各伸長歪みにおける伸長鎖の割合やその程度を定量的に評価する。既存のバタフライパターンと異なった異方性パターンが見られている現象について、粗視化 MD シミュレーションなども駆使しながら原因解明を行う。

8.本助成金による主な発表論文、著書名

[1]Y. Tsuji, S. Nakagawa, C. I. Gupit, M. Ohira, M. Shibayama, and X. Li, Selective Doping of Positive and Negative Spatial Defects into Polymer Gels by Tuning the Pregel Packing Conditions of Star Polymers, *Macromolecules* 53, 7537 (2020).

[2]X. Li, A Benchmark for Gel Structures: Bond Percolation Enables the Fabrication of Extremely Homogeneous Gels, *Polym J* 1 (2021).

[注 1] 本報告書は、助成金を受けた翌年 9 月末までに必ず提出してください。

[注 2] (お願い)印刷物の郵送と電子媒体の添付ご提供をお願いします。インターネットメールでの送付を歓迎します。< E-Mail: enozaidan@kokoku-intech.com >

[注 3] この報告書を当財団のホームページに掲載させていただきますので、予めご了承ください。

※当財団へのご意見・ご要望がございましたら、下記へご記入ください。

お寄せいただいたご意見・ご要望は今後の参考にさせていただきます。

本研究課題を採用頂いた江野科学振興財団の関係者の皆様に心よりお礼を申し上げます。おかげさまで、in-situ 小角 X 線散乱に必要な試験機開発や一連の実験を進める上での資金を賄うことができました。本研究を今後一層発展させ、架橋高分子の網目と力学物性の相関を解明したいと思っております。

アンケートへのご協力ありがとうございました。

以上