

時分割 X 線回折像から粒子の回転を調べる新規手法を開発

～高分子複合材料のナノ物性メカニズム解明に期待～

ポイント

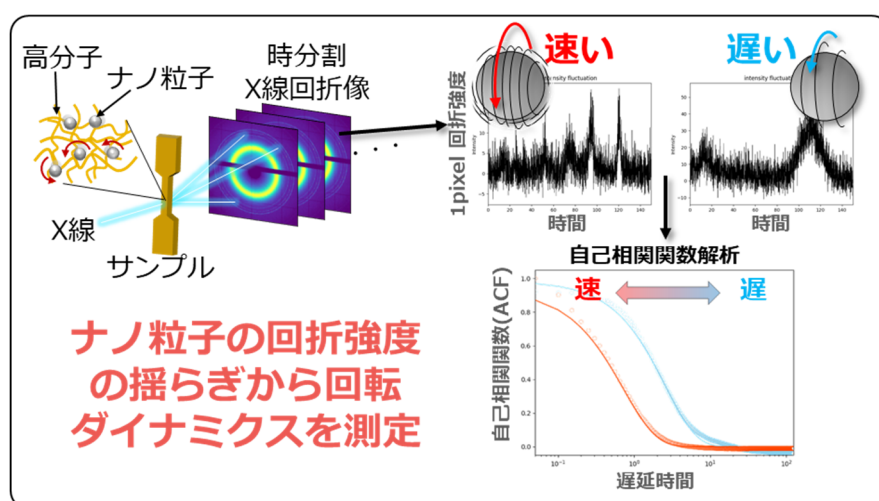
- ・時分割 X 線回折の強度揺らぎから、高分子中の粒子の回転ダイナミクスを計測。
- ・固体から液体までの様々な材料で測定可能な事を実証。
- ・温度変化や結晶化状態を鋭敏に反映し、材料のナノスケール構造変化を可視化可能。

概要

北海道大学大学院先端生命科学研究院の新井達也助教、相沢智康教授、及び東京大学大学院新領域創成科学研究科の佐々木裕次教授らの研究グループは、時分割 X 線回折像から高分子複合材料におけるナノ粒子の回転ダイナミクスを測定する新たな X 線活用手法の開発に成功しました。

高分子にナノ粒子を添加した複合材料は、ゴムやプラスチックなどの様々な材料として広く使用されています。これらの材料の柔らかさや耐久性は、内部に分散したナノ粒子の運動性、特に回転運動に大きく依存します。したがって、ナノ粒子の回転運動を可視化する手法は材料開発において極めて重要ですが、そのような運動を汎用的に観測する方法はこれまでほとんど存在しませんでした。研究グループは、時分割 X 線回折像からナノ粒子の回転運動を抽出する新しい手法「Diffracted X-ray Blinking (DXB) 法」を開発し、様々な高分子中のナノ粒子に適用しました。この手法では、X 線回折強度の揺らぎを自己相関関数 (ACF) ^{*1} で解析することで、ナノ粒子の回転運動を推定します。この解析手法により、時分割 X 線回折像から高分子中のナノ粒子の回転運動を捉えることに世界で初めて成功しました。さらに、これらの高分子の温度変化や相転移に伴うわずかなナノ粒子の回転運動の変化も可視化することに成功しました。今回の成果は、高分子材料の粘弾性や相転移の機構をナノスケールで直接評価する新しい手法を提示するものであり、今後の高分子材料研究や新素材開発への大きな貢献が期待されます。

なお、本研究成果は、2025 年 9 月 14 日（日）公開の Nano Letters に掲載されました。



DXB 法の概略図。ナノ粒子を含む高分子材料に対して X 線を照射し、時分割の X 線回折像を取得した。その際に、ナノ粒子の自発的な回転により X 線回折強度が揺らぎ、その強度揺らぎに対して自己相関関数解析を用いることで、粒子の回転の速さを推定する。

【背景】

プラスチックやゴムに代表される高分子材料は、日常生活から産業応用まで幅広く利用されています。高分子にナノ粒子を分散させた高分子複合材料は、高分子単体では発揮できない強度や耐久性を示すため、次世代の高機能材料として注目されています。こうした材料のマクロな性質は、実はフィラーのナノスケールの動き（ゆらぎ）に大きく依存しています。これまでナノ粒子の動きを観察する方法はいくつかありましたが、主に「並進運動（移動）」に注目したものが多く、「回転運動」を汎用的に捉える方法はほとんど存在しませんでした。しかし、この回転運動は高分子との相互作用や局所的な拘束状態を鋭敏に反映し、材料のマクロな特性と密接に関わっており、その動きを可視化する手法の開発が強く求められてきました。

【研究手法】

研究グループは、結晶性ナノ粒子が回転する際に X 線回折の強度が揺らぐ現象に着目し、これを利用して粒子の回転ダイナミクスを測定できる新しい手法「Diffracted X-ray Blinking (DXB) 法」を開発しました。本研究では、酸化亜鉛 (ZnO) ナノ粒子を分散させた複数種類のポリマー（プラスチック、ゴム、ゲル、液体など）をモデル試料として使用しました。まず、これらの試料に X 線を照射し、数千枚の時分割 X 線回折像を取得しました。これらの測定には、液体中における粒子の高速な回転を捉えるために、大型放射光施設 SPring-8 の高輝度 X 線ビームライン BL40XU を活用し、最大 400 マイクロ秒/frame の高速時分割測定を実施しました。これらの X 線回折像に対して、その回折強度揺らぎを 1 ピクセル単位で抽出し、その時系列データに自己相関関数を適用することで、粒子の回転速度を評価しました。

【研究成果】

図 1 は、様々な高分子中におけるナノ粒子の X 線回折強度揺らぎから算出した自己相関関数を示しています。この図では、自己相関関数の減衰が速いほど回折強度の揺らぎが速く、すなわち粒子の回転速度が速いことを意味します。実際に、PEG のような液体中では回転が非常に速く、ゲルでは中間的、さらにゴムやプラスチックといった固体材料中では非常に遅い回転運動が観察されました。これらの結果により、DXB 法を用いることで様々な高分子材料中におけるナノ粒子の回転運動を可視化できることが実証されました。さらに、試料の温度を変化させた測定における、わずかな粒子ダイナミクス変化も DXB 法で明確に捉えられることが明らかになりました。

【今後への期待】

時分割 X 線回折を活用した DXB 法により、これまで困難であったナノ粒子の回転ダイナミクスという新しい材料情報を汎用的に取得できるようになり、高分子複合材料の物性理解と開発に大きく貢献します。時分割 X 線回折自体は特別な技術ではなく、世界中の放射光施設で測定可能であり、これまでは主に分子構造の変化を解析するために用いられてきました。本研究の成果により、こうした施設を高分子材料中の粒子ダイナミクス測定にも活用できる可能性が示され、その波及効果は非常に大きいと考えられます。

さらに、ゴムやプラスチックなどの固体材料では、放射光施設を使わずとも実験室レベルの X 線装置で DXB 解析が可能であり、本手法の応用範囲は一層広がると期待されます。特に、X 線回折測定は周辺機器との組み合わせが容易であるため、外部環境（温度、電場、機械的刺激など）を制御しながら材料応答を追跡でき、エネルギー材料、高機能性材料、医療用ゲルなどの開発に大きく貢献すると期待されます。

【謝辞】

本研究は、JST ACT-X JPMJAX23D2「X線回折で見る高分子複合材料のリアルタイム内部運動」の助成を受けたものです。

論文情報

論文名 Fluctuation of Time-Resolved X-ray Diffraction Reveals the Rotational Dynamics of Nanoparticles in Polymer Materials (時分割 X 線回折のゆらぎから明らかになった、ポリマー材料中のナノ粒子の回転ダイナミクス)

著者名 新井達也^{1*}、倉持昌弘^{2,3}、三尾和弘^{4,5}、関口博史⁶、津田 栄¹、佐々木大輔³、相沢智康¹、佐々木裕次^{3,4} (¹北海道大学大学院先端生命科学研究院、²茨城大学学術研究院、³東京大学大学院新領域創成科学研究科、⁴産総研・東大 先端オペランド計測技術オープンイノベーションラボラトリ、⁵横浜市立大学大学院生命医科学研究科、⁶高輝度光科学研究センター回折・散乱推進室、*責任著者)

雑誌名 Nano Letters (ナノ材料に関する専門誌)

D O I 10.1021/acs.nanolett.5c03840

公表日 2025 年 9 月 14 日 (日) (オンライン公開)

お問い合わせ先

北海道大学大学院先端生命科学研究院 助教 新井達也 (あらいたつや)

T E L 011-706-2770 メール t.arai@elms.hokudai.ac.jp

U R L <http://altair.sci.hokudai.ac.jp/g5/>

配信元

北海道大学社会共創部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北 8 条西 5 丁目)

T E L 011-706-2610 F A X 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

【参考図】

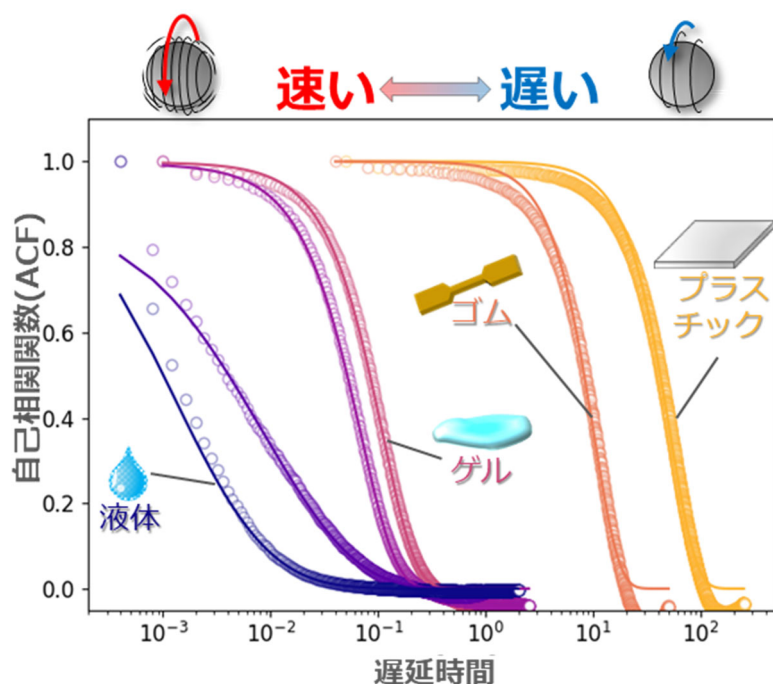


図 1. 様々な高分子中のナノ粒子の X 線回折強度揺らぎに対する自己相関関数解析結果。強度揺らぎが速いほど、遅延時間が短いうちに ACF が減衰する。強度揺らぎの速さは粒子の回転の速さに依存するため、間接的に粒子の回転運動を測定することができる。

【用語解説】

- *1 自己相関関数 … 時系列データが「どのくらいの時間スケールで似た状態を保っているか」を調べるためのツールであり、強度の揺らぎを調べるために用いられる。