

Modélisation théorique et numérique de l'auto-assemblage de macromolécules linéaires-dendritiques en nanostructures colloïdales: influence de la dispersité en topologie et en longueur de chaînes



ANR International

01/09/2021 - 2024

Objectifs

Nous proposons d'étudier l'influence du désordre moléculaire sur la structure et les propriétés des nanostructures colloïdales auto-assemblées constituées de copolymères. De telles structures sont intéressantes dans les applications (bio) nanotechnologiques et en médecine, par exemple en tant que véhicule à l'échelle nanométrique pour transporter des substances pharmacologiques ou des matériaux génétiques, car leur taille, leur charge et leurs caractéristiques de décharge peuvent être contrôlés par le choix des copolymères constituants. Les copolymères branchés dendritiques présentent un intérêt particulier à cause de leur grand nombre de groupes terminaux fonctionnalisables. Cela permet d'ancrer des groupes fonctionnels différents à la même molécule, et alors combiner des groupes qui transmettent des mécanismes de reconnaissance moléculaire avec des substances pharmacologiques d'une manière efficace.

Jusqu'à maintenant, la plupart des théories sur l'auto-assemblage de copolymères a décrit des systèmes de copolymères linéaires et parfaitement mono-disperses. Cependant, pour la production industrielle de nouveaux médicaments, il faut définir des protocoles de synthèse robustes, qui produisent presque inévitablement des polymères poly-disperses et ayant du désordre topologique (dans le cas de copolymères branchés). Dans un travail précédent, nous avons montré que cela n'est pas nécessairement un désavantage: Au contraire, un certain degré de désordre moléculaire peut même stabiliser les structures auto-assemblées et améliorer leurs propriétés.

L'objectif de notre projet est de mieux comprendre l'effet combiné de la dispersité de longueur de chaîne et de diversité topologique des copolymères sur leur auto-assemblage, au au-delà des théories traditionnelles sur l'auto-assemblage dans les systèmes idéalisés.

Notamment, nous allons étudier dans quelle mesure le désordre moléculaire peut être utilisé en manière positive pour manipuler et optimiser la structure et les propriétés des nano-agrégats. A cet effet, nous allons combiner des théories analytiques avec des simulations numériques.

Coordinateur principal

Oleg BORISOV (IPREM)

Partenaire

Prof. Dr. Friederike Schmid, Universität Mainz (Allemagne)

--

English version

We propose to explore the influence of intrinsic molecular-level disorder on the structure and properties of self-assembled colloidal nanostructures made of block copolymers. Such structures are considered to have a huge potential in (bio)nanotechnology and medicine, e.g., as nano-scale carriers for drugs and genetic materials, because their size, loading capacity and cargo release profiles can be fine-tuned by proper design of constituent copolymers. Dendritically branched copolymers are of particular interest, because of the large number of terminal groups that can be functionalized with targetable ligands. This allows one to efficiently connect different functional groups on one molecule and to exploit bio-recognition mechanisms for controlled targetted delivery of the drugs to specific tissues or cells.

Up-to-date, experiments on the copolymer self-assembly were mostly rationalized on the basis of theories developed for perfectly monodisperse linear block copolymers. At the same time, industrial manufacturing of novel pharmaceuticals requires the application of robust synthetic protocols that unavoidably result in molecular mass polydispersity and structural (topological) disorder of the products, i.e., the block copolymers. Preliminary studies of the PIs indicate that this is not necessarily a drawback: A certain amount of molecular disorder can even stabilize self-assembled nanostructures and improve their properties.

The aim of the proposed project is to extend our theoretical knowledge beyond traditional "idealized" systems and investigate the combined effects of molecular mass distribution and irregular branched structure (topological diversity) of self-assembling block-copolymers. In particular, we will investigate to which extent such molecular disorder can be exploited to optimize and tune the structure and properties of the nano-aggregates. To this end, we will combine analytical thermodynamic approaches that lead to exact results and numerical simulations.