

超分子ゲルの階層構造と物性制御に関する研究

松本, 圭吾

<https://hdl.handle.net/2324/1500801>

出版情報：九州大学, 2014, 博士（工学）, 論文博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏名：松本 圭吾

論文題目：超分子ゲルの階層構造と物性制御に関する研究

論文提出学府・専攻：統合新領域学府 オートモーティブサイエンス専攻

論文内容の要約

ゲルは、組成はほとんど液体でありながら、あたかも固体のような振る舞いをする材料であり、コンタクトレンズや食品に代表されるように、日常生活に欠かせない材料である。ゲルは、媒質の3次元架橋構造による媒体の流動性低下に基づき形成される。ゲルを構成する媒質が高分子である場合、得られるゲルは高分子ゲルと呼ばれる。

一方、両親媒性低分子から形成されるゲルは超分子ゲルと呼ばれる。超分子ゲルは、両親媒性低分子の自己組織化に伴い形成される繊維状会合体とそのネットワーク構造によって形成される。超分子ゲルの特徴として、(1) 可逆なゾル-ゲル転移を示すこと、(2) 疎水性化合物の内包が可能であることなどが挙げられる。上記の特徴を積極的に利用すれば、バイオマテリアルやエネルギー産業等への応用展開が期待される。

超分子ヒドロゲルを応用展開するためには、その物性を精密に制御する必要がある。これまで、超分子ヒドロゲルの物性制御は、ゲル化剤の設計によるアプローチが主流であった。これまでに、ゲル化剤の化学構造と最終的なヒドロゲルの物性との相関が盛んに研究されてきた。しかしながら、ゲル化剤の化学構造に基づき超分子ヒドロゲルに望みの物性を付与することは未だ困難であり、物性の精密制御に至っていないのが現状である。

近年、超分子ヒドロゲルの物性制御の手法として、二種類の低分子の自己組織化 (co-assembly) が注目されている。二種類の低分子から形成されるヒドロゲルは、それぞれの分子から形成されるゲルとは異なる物性を示すことが知られている。また、それぞれの分子の組成を変えることによって、最終的に得られる超分子ヒドロゲルの物性を精密に制御することが可能である。これまでに、二種類の分子の親水性相互作用を利用した co-assembly、ひいては、ゲル物性の制御が報告されている。一方、著者は、低分子が自己組織化して形成される繊維状会合体の疎水性ドメインに着目した。

本論文では、低分子の自己組織化により形成される繊維状会合体の疎水性ドメインに基づく階層構造の制御に着目し、ゲルの粘弾特性およびゾル-ゲル転移の制御を検討した。具体的には、同じ長さのアルキル基を有する両親媒性の低分子を混合した系について、(1) 疎水性相互作用を利用した共会合に基づく物性制御、(2) 自己組織化過程におけるせん断の印加に基づく物性制御、(3) ゾル-ゲル転移の制御に関して検討した。

第一章では、本研究の背景および目的を述べた。

第二章では、疎水部にアルキル基、親水部にジペプチドを有するゲル化剤、*N*-パルミトイルグリシルヒスチジン (PalGH) が形成する超分子ヒドロゲルにパルミチン酸ナトリウム (PalNa) を添加することによって、階層構造と物性制御を検討した。PalGH と PalNa の組成比に基づき、ゲルの動的粘弾特性 (固さやひずみに対する応答性) の制御に成功した。また、ゲルの粘弾特性は、PalGH と PalNa の疎水部の相互貫入に基づく共会合とそれによる繊維状会合体ならびに

ネットワーク構造の形成に基づくことを明らかにした。

第三章では、PalGH と PalNa の混合ヒドロゲルについて、自己組織化過程におけるせん断の印加に基づく物性制御に関して検討した。加熱によって得られた PalGH と PalNa の分散水溶液を攪拌下にて放冷し、攪拌が構造と物性に及ぼす影響を検討した。その結果、放冷過程における攪拌によって、ゲルの動的粘弾特性（ひずみに対する安定性）が変化することを明らかにした。また、放冷過程における攪拌によって、繊維状会合体の束状構造が解消することも明らかにした。

第四章では、PalGH とモノパルミチン酸グリセロール（MPG）の混合に基づき、超分子ヒドロゲルのゾルーゲル転移の検討を行った。PalGH と MPG から成るゲルは、物理崩壊後、室温にて静置すると、ゲルへと再形成することを確認した。ゾルーゲル転移は、繊維状会合体の疎・密領域の形成・解消を反映していることを明らかにした。

第五章では、第二章から第四章までを総括し、今後の展望を述べた。

本論文では、二つの両親媒性分子の疎水部の相互貫入に基づき、繊維状会合体、ネットワーク構造、ひいては超分子ゲルの巨視的な物性に至るまで増幅されて反映されることを示した。とくに、二つの低分子の組成比によって、最終的なゲルの固さやひずみに対する応答性、ゾルーゲル転移の速度を制御することに成功した。分子会合体の疎水部に基づく階層構造制御は、分子の化学構造の設計を必要とせず、望みの物性を有する超分子ヒドロゲルを得るための新たなアプローチといえる。