

温度応答性ゲルのネットワークゆらぎ

(東大物性研) 呉羽拓真、林恭平、Li Xiang、柴山 充弘

【はじめに】

水で膨潤するハイドロゲルは、溶媒種、温度、pH等の周囲の環境変化に応答し、自身の体積を変化させることから、アクチュエータや生体材料等への応用が期待される。特に、外部刺激応答性に関する研究は古くから行われており、理論的または実験的に解釈が進められている。その中でも近年、下限臨界共溶温度(LCST)を有する生体適合性の高いポリマーが提案された[1]。このポリマーの基本骨格はアクリレートまたはメタクリレートの主鎖に対し、オリゴエチレングリコールの側鎖を有しており、この側鎖が温度によって水和・脱水を引き起こすため、相分離が生じると考えられている。また、側鎖のエチレングリコールユニット数に依存して相転移温度も変わるため、2種の相転移温度が異なるポリマーを共重合することで任意に高分子鎖やゲル全体の相転移温度を調整することができる。しかし、現状では、これらポリマーおよびそれを架橋したハイドロゲルの温度応答性メカニズムとそれに伴う物性変化の知見は乏しく、機能向上に向けた設計指針等に生きる構造情報が必要である。本研究では、側鎖に異なるエチレングリコールユニット数を有するポリマーが共重合されたハイドロゲルの物性を評価することを試みた。特に、動的光散乱法(DLS)を用いて、温度によって変化するゲルの動的物性を評価し、議論する。

【結果と考察】

得られた散乱光強度の自己相関関数を示す(Figure 1a)。一般にゲルのDLS測定では、単一の指数関数で記述可能なゲルネットワーク由来のゆらぎ(協同拡散)を観測できる[3]。一方、本研究で作製したゲルの場合は、膨潤または収縮状態に関わらず協同拡散とそれよりも遅いモードの2つが観察された。これは2種の異なるLCSTを有するポリマーを共重合したゲル内部において、高分子鎖同士が会合した相分離が生じると考えている。実際に、Figure 1中の式を用いてフィッティングを行い、得られた拡散係数から見積もったゆらぎの相関長(Figure 1b)は臨界温度に向かって発散する一方、相分離したドメイン由来のSlowモードの割合を表す $1-A$ も昇温に伴い増加し、高分子鎖同士が会合したドメインが成長していることを示唆している(Figure 1c)。

以上のように、ホモポリマーを架橋して調整する温度応答性ゲルとは異なる相転移挙動を示すことが考えられ、共重合で調整するゲルとの相違点を明確にすることは今後さらに複雑で機能が求められるゲルの設計指針を立てる際に有用な知見になると考えている。

【参考文献】

- [1] Lutz, J. F.; Hoth, A. *Macromolecules* 39, 893 (2006)
- [2] Kureha, T.; Hayashi, K. Ohira, M.; Li, X.; Shibayama, M. *Macromolecules accepted* (2018)

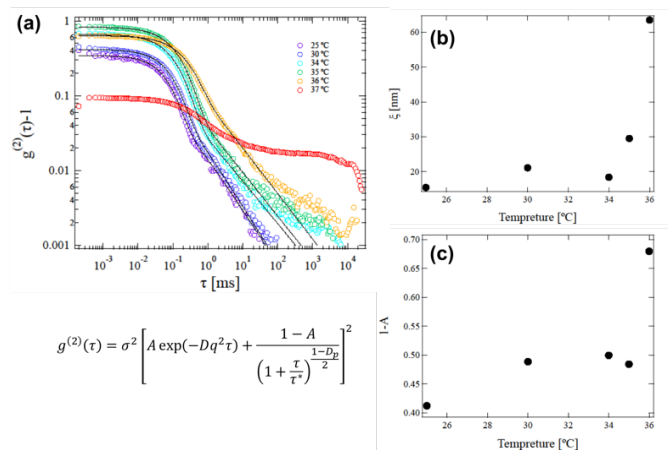


Figure 1. (a) Scattering intensity time correlation function observed at different temperatures. Temperature dependence of (b) the correlation