



可逆的犠牲結合の原理による新規高靱性・自己修復性ゲルの創製に成功

研究成果のポイント

- ・ 新規な高靱性、衝撃吸収性、自己修復性などの複数の優れた力学機能を持つハイドロゲルの創製に成功。
- ・ 優れた機能は、内部の壊れ易く、回復できる構造（可逆的な犠牲結合）による。
- ・ 生体適応性、付着防止性も合わせ持ち、医療・衛生材料としてのハイドロゲルの選択肢が大幅に増加。
- ・ 高靱性な電解質膜として燃料電池にも応用できる可能性がある。

研究成果の概要

ハイドロゲルは、その生体組織に類似したソフトでウエットな性質により、生体材料として大きな注目を集めています。2003年に龔（ゲン）らのグループによる高強度ダブルネットワークゲル（DNゲル）の発明は、軟骨などの構造生体材料としてハイドロゲルの高いポテンシャルを示しました。しかし、応用を実現するためには、生体適合性ととも剛性、強度、靱性、減衰、耐疲労性、自己修復性など、複数の優れた力学特性の組み合わせが必要です。同グループはこれらの特性を備え持つハイドロゲル材料群の開発に世界で初めて成功しました。この新材料は、内部に壊れ易い構造を導入すると材料全体が強靱になるという、同グループが発見した犠牲結合原理に基づきます。今回は、両性高分子電解質（PA）を使って可逆的に破壊・回復できる内部構造を実現し、成果に繋がりました。これらのPAゲルの特徴は、従来の高靱性DNゲルより遥かに合成が容易である点で、多様なイオンの組み合わせを使用することにより、材料の剛性や粘弾性など複数の力学的特性を広い範囲にわたって調整することができます。これらのゲルは生体に無害です。本研究成果によって、人工軟骨などの生体構造材料としてゲルの選択肢が大幅に増加しました。また、高靱性な電解質膜として燃料電池にも応用できる可能性があります。

論文発表の概要

研究論文名：Physical hydrogels composed of polyampholytes demonstrate high toughness and viscoelasticity（両性高分子電解質から成る高靱性と粘弾性を示す物理ハイドロゲル）
著者：孫 桃林，黒川孝幸，黒田慎也，Abu Bin Ihsan，赤崎泰吾，佐藤紘士朗，Md. Anamul Haque，中島祐，龔 劍萍（北海道大学大学院先端生命科学研究院）
公表雑誌：Nature Materials（英国の科学論文雑誌）
公表日：日本時間2013年7月29日（月）午前2時（英国現地時間2013年7月28日（日）午後6時）

研究成果の概要

(背景)

ハイドロゲルは、その生体組織に類似したソフトでウエットな性質により生体材料として大きな注目を集めています。2003年、龔らのグループの高強度ダブルネットワークゲル(DNゲル)の発明は、軟骨などの構造生体材料としてハイドロゲルの高いポテンシャルを示しました。しかし、応用を実現するためには、生体適合性ととも剛性、強度、靱性、減衰、耐疲労性、自己修復性など、複数の力学特性の組み合わせが必要です。同グループはこれらの特性を備え持つハイドロゲル材料の開発に世界で初めて成功しました。

(研究手法)

カチオン性モノマーとアニオン性モノマーを高濃度で混合し、両性高分子電解質ゲル(PAゲル)をラジカル重合によって得ました。このゲルを水溶液中で平衡膨潤させ、低分子対イオンの透析・除去によってゲル内に結合強度の異なるイオン結合を形成させました。

(研究成果)

合成したPAゲルは50-70wt%の水を含有し、高靱性(破壊エネルギーが $40,000\text{J}/\text{m}^2$ 以上)、高衝撃吸収係数(0.95以上)、100%の自己回復性と高耐疲労性を持っています。一部のゲルは切断しても室温で自発的に再結合し、高い自己修復性を示しました(90%以上)。これらの優れた特性は、内部に壊れ易い構造を導入すると材料全体が強靱になるという、同グループが発見した犠牲結合原理に基づくものです。高分子鎖上にランダムに分布した正・負イオンが、結合強度が広く分布するイオン結合を形成します。強い結合が恒久的な架橋としての役割を果たし、材料に伸縮性を付与します。弱い結合が効率的に壊れることによりエネルギーを吸収し、応力集中を避けることにより、材料に靱性、衝撃吸収を賦与します。この原理に基づき、弱い結合が犠牲結合としての役割を果たします。一旦壊れたイオン結合が再結合できることにより、この可逆的な性質が材料に高耐疲労性と自己修復性を与えます。このPAゲルの合成は従来のDNゲルより遥かにシンプルで、多様な化学構造をもつイオンの組み合わせに簡単に適用できます。また、材料の剛性や粘弾性など複数の力学的特性を、広い範囲にわたってイオンの組み合わせを使用することにより調整することができます。これらのゲルは、優れた生体適合性および生物付着防止特性を持つことも確認されています。

(今後への期待)

この両性高分子電解質のアプローチは、多様なイオン性分子に適用できるため、生体適応性を持ちながら、優れた力学機能を併せ持つハイドロゲルの選択肢が大幅に増えました。この材料は、生理的溶液であっても優れた力学的性質を有するので、人工軟骨や人工血管などの構造生体材料として高いポテンシャルを有しています。さらに、材料の生物付着防止特性は、衛生や医療の分野での利用が期待できます。また、高靱性な電解質膜として燃料電池にも応用できる可能性があります。

(研究助成資金等)

本研究は、文部科学省科学研究費補助金基盤研究(S)「犠牲結合原理の普遍性の証明と多様な犠牲結合による高靱性・高機能ゲルの創製」(研究代表:龔 劍萍)の支援を受けて行われました。

お問い合わせ先

所属・職・氏名: 北海道大学大学院先端生命科学研究院 教授 龔 劍萍(グン チェンピン)
TEL: 011-706-2774 FAX: 011-706-2774 E-mail: gong@mail.sci.hokudai.ac.jp
ホームページ: <http://altair.sci.hokudai.ac.jp/g2/index.html>