

【基盤研究(S)】  
理工系(化学)



研究課題名 「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

北海道大学・大学院先端生命科学研究院・教授

ぐんちえんびん  
龔 劍萍

研究分野：高分子科学

キーワード：高分子、ゲル、高靱性、バイオマテリアル

【研究の背景・目的】

ソフト&ウェット物質であるゲルは、生体親和性、超低摩擦性などを示す大変魅力的な材料であるが、一般的なゲルは脆くて壊れやすく、応用先は極めて限られていた。本問題に対し、研究代表者らは工業用ゴム並みの強度を持つダブルネットワーク(DN)ゲルを開発した。硬くて脆い電解質網目と柔らかくて伸びる中性網目で構成されるDNゲルでは、破壊時に亀裂周辺に存在する脆い電解質網目が広範囲に渡って先に壊れる(降伏する)ため、亀裂周辺の応力は常に分散される。この仕組みによって、亀裂が生じてもその伝播が起らず、ゲル全体が壊れずに強靱になる。この時、電解質網目の脆さは、ゲル全体を破壊しないための犠牲結合と呼ぶことが出来る。この「犠牲結合による効果」は、骨の高靱性に対して提案されているメカニズムと類似している。このことから、研究代表者らは「犠牲結合による高靱性化原理」は、他の高靱性材料を設計する上でも通用する普遍性を持っていることを提唱している。これにより、「壊れやすい部分を意図的に導入することにより、材料全体が強靱になる」という、従来の高強度材料設計とは全く異なる新しい戦略を導いた。

この原理に基づき、本研究課題では共有結合、イオン結合、疎水結合などの様々な「犠牲結合」をゲルに導入し、多様な犠牲結合の破壊がゲルの靱性を大きく増大させることを実証する。また、本原理を様々な機能性高分子に適用することで高機能・高靱性ゲルを創製し、先端医療などへの応用展開を図る。

【研究の方法】

犠牲結合となる構造は、DNゲルのような電解質高分子の化学結合の他、様々な物理結合(疎水結合、イオン結合など)から構成された分子集合体が考えられる。研究方法の例を以下に示す。

イオン結合として、ゲルの高分子側鎖に正・負イオンを導入してポリイオンコンプレックスを形成させ、その可逆的な犠牲結合としての効果を研究する。この場合、犠牲結合の役割が高分子鎖間のイオン結合の破壊によって果たされるため、DNゲルとは異なり、単一の高分子網目でも高靱性化が実現できる。また、イオン結合は可逆的であるため、一旦破壊された犠牲結合は時間と共に自己回復すると考えられる。そこで、導入した犠牲結合の構造や回復速度とゲルの自己修復能、衝撃吸収能との相関についても検討する。

疎水結合として、ゲルに二分子膜ラメラ構造を導

入する。予備実験においては、せん断を加えることで、一軸に配向した3000層ものラメラ構造を含有するゲルの創製に成功している。本ゲルは、ラメラ構造の犠牲的破壊に由来するであろう高靱性に加え、精緻な二分子膜ラメラ構造に由来する膨潤異方性や構造色などの創発機能をも発現することが分かっている。今後は、配向した二分子膜の犠牲結合としての機能を証明する他、ゲルの構造と異方的な物性(膨潤・収縮、物質拡散、力学応答など)との関連を解明する。

【期待される成果と意義】

本研究成果を様々な機能性高分子に応用することで、高靱性と高機能を併せ持つ、真に材料として利用可能なゲルが創製できる。これらのゲルは、医療、工業用材料としての幅広い応用が期待される。さらに、この「犠牲結合による高靱性化原理」は、将来的にプラスチック等の固体材料にも応用可能な新規指導原理としてのポテンシャルを秘めており、新たな材料イノベーションをもたらす可能性がある。

【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

1. Jian Ping Gong, "Why are double network hydrogels so tough?" *Soft Matter* 2010, 6, 2583.
2. Md. Anamul Haque, Gen Kamita, Takayuki Kurokawa, Kaoru Tsujii, Jian Ping, "Unidirectional Alignment of Lamellar Bilayer in Hydrogel: One-Dimensional Swelling, Anisotropic Modulus, and Stress/Strain Tunable Structural Color," *Adv. Mater.* 2010, 22, 5110.

【研究期間と研究経費】

平成24年度-28年度  
209,600千円

【ホームページ等】

<http://altair.sci.hokudai.ac.jp/g2/index.html>  
[gong@mail.sci.hokudai.ac.jp](mailto:gong@mail.sci.hokudai.ac.jp)