

伸長誘起相分離を発現する応力応答性ハイドロゲルの 中性子散乱測定を用いた相分離ネットワーク構造評価

Characterization of Phase-Separated Network Structures
in Stress-Responsive Hydrogels Exhibiting Stretch-Induced
Phase Separation Using Neutron Scattering Measurements

宇山浩¹⁾・高島義徳¹⁾・小西隆士²⁾・以倉峻平¹⁾・山岡賢司¹⁾・菅原章秀¹⁾

Hiroshi UYAMA, Yoshinori TAKASHIMA, Takashi KONISHI,

Ryohei IKURA, Kenji YAMAOKA, Akihito SUGAWARA

¹⁾大阪大学 ²⁾京都大学

(概要)

本研究では、伸長により脱水和を伴い相分離ドメインを形成する応力応答性ハイドロゲルのネットワーク構造を、小角中性子散乱 (SANS) により解析した。通常および重水素化アクリルアミドを用いた試料の比較により、未伸長状態では $q \approx 0.1 \text{ nm}^{-1}$ にピークが観測され、伸長に伴いこのピークは減少し、低 q 側に新たなピークが出現した。このピークは重水素化試料では観測されなかったことから、アクリルアミド成分に由来することが示唆された。一方、重水素化試料では水和した相分離ドメインに起因する散乱が確認されたが、伸長後には明瞭なピークは消失した。これにより、伸長により形成される構造は、未伸長状態とは異なる、より大きなサイズを持つ可能性が示された。

キーワード：

ハイドロゲル、超分子、ホスト-ゲスト相互作用、応力応答

1. 目的

これまでに、ホスト-ゲスト包接錯体を分子スイッチとして利用することで¹⁾、伸長により白濁化が誘起される応力応答性ハイドロゲルを開発してきた。この応答機構は、ゲルネットワーク内部に導入されたゲスト修飾高分子成分が脱水和することにより、相分離ドメインを形成することに起因すると考えられる。本研究では、伸長によって生じるネットワーク構造および相分離ドメインに由来する構造を解析することを目的として、SANS 測定を実施した。

2. 方法

伸長状態または未伸長のハイドロゲルを重水中に浸漬し、SANS-J を利用して SANS 測定を実施した。ハイドロゲルは重水素化アクリルアミドを用いてメインネットワークを構築したゲルも測定することで、ネットワークおよび相分離ドメインそれぞれに由来する散乱の選択的観測を試みた。

3. 結果及び考察

Figure 1 に SANS プロファイルを示す。作製したハイドロゲルの未伸長状態では、 $q = 0.1 \text{ nm}^{-1}$ 付近にピークが確認された。一方、伸長状態では、伸長方向のセクターアベレージにおいてこのピークは減少し、より低 q 側に新たなピークが現れた。重水素化アクリルアミドを用いた試料では、伸長状態においてはこのピークは観測されなかった。このことから、伸長により出現したピークはアクリルアミド成分に由来することが示唆される。また、未伸長状態で $q = 0.1 \text{ nm}^{-1}$ に観測されるピークは重水素化試料でもみられたことから、水和した相分離ドメイン由来のものであると考えられる。このように重水素化試料では、相分離ドメインに由来する散乱が選択的に観測されると考えられるが、伸長後には顕著なピークは確認されなかった。これは、伸長によって形成されたドメインが未伸長状態のものとは異なり、より大きなサイズを有しているため、SANS の測定 q レンジ外、あるいは極小角領域に位置し、本測定条件では検出されなかった可能性があることを示している。これらの結果は、相分離ドメインの形成に伴い、水和ネットワークを構成するアクリルアミド成分のドメイン形成も誘起されていることを示している。

4. 引用(参照)文献等

1. A. Sugawara *et al.* *ACS Macro Lett.* **2021**, 10, 971.

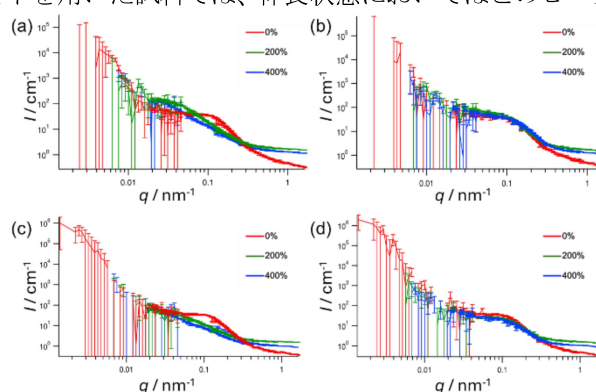


Figure 1. SANS profiles of the mechano-responsive hydrogels shown as sector averages in the (a, c) tensile and (b, d) vertical directions under 0%, 200%, and 400% stretching. The profiles in (b) and (d) correspond to hydrogels prepared using deuterated acrylamide (acrylamide- d_3).