

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 9日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560713

研究課題名（和文） 界面活性剤の自己組織化を用いた機能性複合ゲルの創製

研究課題名（英文） Application of Self-organization of Surfactants for The Creation of Functional Gel.

研究代表者

嶋田 昌之（TOKITA MASAYUKI）

九州大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号：80163963

研究成果の概要（和文）：界面活性剤の自己組織化された構造体を内包する機能性ゲルを創成する目的で、ゲル成分ならびに界面活性剤成分の相挙動を解明した。このうち、界面活性剤を含むゲルを形成したところ、界面活性剤の相境界が低温領域に大きくシフトするという現象を見いだした。この現象を有効に利用することによって機能性を有する創薬ゲルを開発する方向性が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：We study the phase behaviors of the gels and the surfactants to create the complex system of the gel which contains the self-organized structure of the surfactants. It is found that the phase boundary of the surfactant system shifts to the lower temperature region. This phenomenon can be used for the creation of functional gels.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・複合材料・物性

キーワード：ゲル，界面活性剤，ミセル，ベシクル

## 1. 研究開始当初の背景

従来、かかる機能性高分子ゲルの創製については多くの研究がなされてきた。しかしながら、その研究は極めて実用的なレベルでなされていたため、多くは製造現場の職人的な対処療法に限られており、基礎科学の方法は殆ど用いられていなかった。我々はこのような状態に対して、物理的研究手法と解析方法を用いて基礎的情報を収集することが重要であると考えた。この目的を達成するには

各々の成分の相挙動を最初に解明しなければならない。相図とよばれる基礎的な情報を利用することにより、望まれる性能を有する機能性ゲルを創成する方向性を解明する目的で研究を開始した。

## 2. 研究の目的

湿布薬などに代表されるハイドロゲルを用いた薬剤や軟膏などでは、疎水性の高い薬物を大量・均一に、そして安定した状態で基

剤に分散させる必要がある。この目的のため、通常は界面活性剤を系に共存させている。多くの界面活性剤は下部臨界共溶温度を有するため、通常は温度の上昇に伴い2相分離する。また、界面活性剤の濃度が高くなると、ミセル、ラメラ、ベシクル等とよばれるさまざまな形態が自己組織化される。このような相分離や自己組織化は、従来、製薬の場面においてはあまり好ましくないものと理解されていた。しかしながら、我々はこのような界面活性剤の自己組織化をより積極的に利用することにより、より安定、均一で薬物の徐放性に優れた製剤の供給が可能となると考えた。この目的を達成するため、界面活性剤と高分子ゲルが共存するような系におけるゲルの形成が界面活性剤の相転移挙動に及ぼす影響を明らかにすることを旨として研究を展開した。

### 3. 研究の方法

○モデル合成高分子ゲル系における研究を行う。この研究においては、化学的な性質のよく知られた物質である、ポリアクリルアミドゲルを用い、各種界面活性剤との相互作用を明らかにした。界面活性剤には、Tween85, Triton X-100, Triton X-114などを用いた。この研究においては、最初に界面活性剤の相図を明らかにする必要がある。相図の決定には光散乱装置を用いる必要があるため、最初に簡易型光散乱装置を作製した。この装置はレーザーダイオードと光子係数装置とで形成され、90度における光散乱強度を精度良く測定できる。この装置を用いて相図を決定した。

○生体高分子ゲル系の研究を行う。この系では、蛋白質や多糖類を扱うことになるので、合成高分子系とは事情がかなり異なる。多くの生体高分子の相挙動とそれらが形成するゲルについては一般的な共通概念が確立されていない。従って、ここでは最初に高分子水溶液の相挙動を解明する必要がある。我々は、蛋白質系の試料としてはゼラチンを、多糖類系の試料としては $\kappa$ -カラギーナン、アルギン酸、アガロースを用いることとして、これらのゲル化と相挙動を研究した。

### 4. 研究成果

第一段階の目標設定である、高分子ゲルと界面活性剤、おのおの独立した系の相図について以下の点が明らかになった。

- ① これまでに不明確だった界面活性剤の相図が、2成分液体の相転移と同様に記述できることが明らかとなった。
- ② 高分子ゲル系にあっては、ゾル-ゲル転移

と高分子の相分離がカップリングしている現象を見いだした。

- ③ 高分子溶液を一次元拡散-反応系でゲル化させる過程において、得られたゲルが巨視的な形態を形成するという新奇な現象を見いだした。このような、ゲルの形態形成は従来知られていなかった現象である。現在この形態形成現象は、高分子溶液の「等価相図」の概念を用いて説明することが可能であることまでが明らかになっている。

第二の目標設定である、界面活性剤を高分子ゲルに導入することについては以下の点が明らかとなった。

- ① 種々の濃度の界面活性剤を含む溶液でゲルを形成した結果、常温では透明なゲルが形成される条件下にあっても、得られたゲルが白濁する現象を見いだした。
- ② 界面活性剤を高分子網目のような「狭い空間」に導入することにより、界面活性剤の相分離温度が低温側に大きくシフトすることを示している。
- ③ このような白濁したゲルの共焦点顕微鏡観察を行った。共焦点検鏡法により、これらのゲルの内部では、本来、界面活性剤は分子分散するような条件下であっても、界面活性剤が非常に大きな会合体を形成していることを見いだした。

このような現象により形成された高分子ゲル-界面活性剤複合ゲルは、ドラッグデリバリーなどに利用できる。また、ここでゲルの形態形成を利用することができれば、極めて応用範囲の広い機能性ゲルを創製できる可能性が開けることが明らかとなった。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

1. Viscoelastic Properties and Microstructures on 11S Globulin and Soybean Protein Isolate Gels: Magnesium Chloride-Induced Gels. T. Nagano and M. Tokita, *Hood Hydrocolloids*, 25, 1647-1654 (2011). (査読有り)

2. Control of Polymer Gel Surface Pattern Formation and Its Three Dimensional Measurement Method. T. Mizoue, Y. Aoki, M. Tokita, H. Honjo, H.J. Barraza, and H. Katsuragi, *J. Polymer Eng.*, 30, 523-534 (2010). (査読有り)

3. Swelling Equilibrium of a Gel in Binary Mixed Solvents. H. Miki, S. Yagihara, S. Mukai, and M. Tokita, Colloid Polym. Sci., 136, 101-106 (2009). (査読有り)

4. The Effective Surface Roughness Scaling of The Gelation Surface Pattern Formation. Progre. T. Mizoue, M. Tokita, H. Honjo, H.J. Baraza, and H. Katsuragi, Colloid Polym. Sci., 136, 63-67 (2009). (査読有り)

5. Poly(acrylamide) Gel. S. Mukai, H. Miki, V. Garamus, R. Willmeit, and M. Tokita, Colloid Polym. Sci., 136, 95-100 (2009). (査読有り)

6. Kinetics of Water Flow Through a Polymer Gel. Y.Y. Suzuki, M. Tokita, and S. Mukai, Eur. Phys. J. E, 29, 415-422 (2009). (査読有り)

[学会発表] (計 20 件)

1. 日本物理学会第67回年次大会, 関西学院大学 (2012年3月27日)  
題目:ゼラチン・ポリエチレングリコール・水系の相挙動  
山下祐太郎、柳澤実穂、向井貞篤、安中雅彦、鴫田昌之
2. 日本物理学会第67回年次大会, 関西学院大学 (2012年3月27日)  
題目:多糖類水溶液のリーゼガング現象  
岡村香奈、柳澤実穂、成田貴行、大西勇、鴫田昌之
3. 第117回日本物理学会九州支部例会, 佐賀大学 (2011年12月3日)  
題目:ゼラチン - PEG - 水三成分系の相挙動  
山下祐太郎、柳澤実穂、向井貞篤、安中雅彦、鴫田昌之
4. 第117回日本物理学会九州支部例会, 佐賀大学 (2011年12月3日)  
題目: $\kappa$ -カラギーナンゲルのリーゼガング現象に及ぼす電場の効果  
岡村香奈、柳澤実穂、成田貴行、大西勇、鴫田昌之

5. 第60回 高分子討論会  
題目:ゼラチンゲルの相挙動, 岡山大学, (2011年9月28~30日)  
山下祐太郎、柳澤実穂、向井貞篤、安中雅彦、鴫田昌之
6. 第60回 高分子討論会  
題目:多糖ゲルのリーゼガング現象, 岡山大学, (2011年9月28~30日)  
岡村香奈、成田貴行、大西勇、鴫田昌之
7. International Symposium of Food Hydrocolloids, 大阪市立大学 (2011年1月20日)  
題目:Morphogenesis in Polysaccharide Gels.  
成田貴行、大西勇、鴫田昌之
8. 日本MRS学会, 横浜, (2010年12月16日)  
題目:Swelling behaviors of NIPA gel in mixed solvents.  
三木啓央、向井貞篤、鴫田昌之
9. 田中豊一記念シンポジウム, 京都大学 (2010年11月19日)  
題目:NNPAゲルビーズ溶液における構造形成  
向井貞篤、鴫田昌之
10. ゲルワークショップ 奈井江 奈井江 (2010年9月17日)  
題目:ゲルの形態形成, 一般化相図との関係について-  
鴫田昌之
11. 高分子討論会 北海道大学 (2010年9月16日)  
題目:ポリN-ノルマルプロピルアクリルアミドゲルビーズ溶液における構造形成  
向井貞篤、鴫田昌之
12. 日本ゴム協会九州支部会 久留米 (2010年6月4日)  
題目:ゲルにおける自発的構造形成

- 成田貴行, 大西勇, 鴫田昌之
13. 日本物理学会2009年秋季大会 熊本大学黒髪キャンパス (2009年9月25~28日)  
 題目: 高分子ゲル中を流れる水の緩和現象  
 鈴木康夫, 鴫田昌之, 向井貞篤
14. 日本物理学会2009年秋季大会 熊本大学黒髪キャンパス (2009年9月25~28日)  
 題目: 高圧環境下におけるリン脂質ベシクル挙動の直接観察  
 向井貞篤, 藤野雄貴, 鴫田昌之
15. 第62回コロイドおよび界面化学討論会  
 岡山理科大学 (2009年9月17~19日)  
 講演題目: 高圧環境下におけるリン脂質ベシクルの直接観察  
 (Direct Observation of Phospholipid Vesicle under High Pressure)  
 向井貞篤, 藤野雄貴, 鴫田昌之
16. 高分子討論会, 熊本, 熊本大学 (2009年9月16~18日)  
 題名; アガロース水溶液の相図  
 森田隆玄, 成田貴行, 向井貞篤, 鴫田昌之
17. 高分子討論会, 熊本, 熊本大学 (2009年9月16~18日)  
 題名; ゲルのパターン形成  
 成田貴行, 大西勇, 大石祐司, 鴫田昌之
18. 田中豊一記念シンポジウム, 福岡, アクロス福岡 (2009年8月5~7日)  
 題名; アガロース水溶液の相挙動  
 森田隆玄, 成田貴行, 向井貞篤, 鴫田昌之
19. 題名; Control of macroscopic pattern formation on gelation surface.  
 Frontiers in Polymer Science, 7-9 June 2009, Congress Centrum Mainz, Germany,  
 Y. Aoki, Aoki Y, Tokita M, Honjo H, Barraza H. J, Katsuragi H

20. 「単一泡の寿命-測定法と考え方」  
鴫田昌之 (招待講演), 食品ハイドロコロイドセミナー (2009年5月18日) 東京, 日本教育会館.

[図書] (計 1件)  
 題目: Precipitation Patterns in Reaction-Diffusion Systems.  
 (Eds. I. Lagzi) Chap. 7, Spatial patterns induced by gelation of polysaccharide solutions.  
 成田貴行, 鴫田昌之

[産業財産権]  
 ○出願状況 (計 0件)

名称:  
 発明者:  
 権利者:  
 種類:  
 番号:  
 出願年月日:  
 国内外の別:

○取得状況 (計 0件)

名称:  
 発明者:  
 権利者:  
 種類:  
 番号:  
 取得年月日:  
 国内外の別:

[その他]  
 ホームページ等

6. 研究組織  
 (1) 研究代表者  
鴫田 昌之 (TOKITA MASAYUKI)  
 九州大学・大学院理学研究院・教授  
 研究者番号: 80163963

(2) 研究分担者 ( )

研究者番号:

(3) 連携研究者 ( )

研究者番号: