

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 29日現在

機関番号：32660

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22700497

研究課題名（和文）電気泳動法を用いたゲルの接着によるインテリジェントアクチュエータの開発

研究課題名（英文）Development of intelligent actuator by electrophoretic adhesion of gels

研究代表者

麻生 隆彬（ASOH TAKA-AKI）

東京理科大学・基礎工学部・助教

研究者番号：50548378

研究成果の概要（和文）：接着は材料を構築する上で、最も重要なプロセスの一つである。特に固体材料に関しては様々な接着方法が検討されているものの、ハイドロゲルのような多量に水を含むソフトマテリアルの接着に関する研究はほとんどない。刺激応答性ハイドロゲルを用いたインテリジェントアクチュエータを開発するためには、ハイドロゲルを接着する必要がある。本研究では、カチオン性及びアニオン性のハイドロゲルに電場を印加するとゲル界面にポリイオンコンプレックスを形成することで、二つのゲルが接着することを見出した。さらに、逆電場を印加することで容易に剥離可能であることもわかった。

研究成果の概要（英文）：Adhesion has attracted much attention because it is one of the most important processes for building functional constructs. In particular, several jointing methods have been reported for adhesion of the hard materials. To develop functional devices using stimuli-responsive hydrogels such as soft actuators⁶ and intelligent drug delivery systems, the adhesion of hydrogels is required. We studied a novel strategy for the adhesion of hydrogels. We present a technique using electrophoresis to deliver polyions inside of the gels and to form a polyion complex at the interface of the two hydrogels for adhesion. Moreover, detachment of the adhered hydrogels was possible by simply applying the inverse voltage.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：総合領域

科研費の分科・細目：人間医工学・医用生体高分子・生体材料学

キーワード：接着、刺激応答性高分子、ゲル、電気泳動、アクチュエータ

1. 研究開始当初の背景

ハイドロゲルは、生体と類似の複雑なシステム機能を盛り込んだ高度な機能性材料として水中で駆動するケモメカニカル材料として有望である。外部刺激に応答してその形状を大きく変化させる刺激応答性ハイドロ

ゲルはソフトアクチュエータとして幅広い分野で利用可能である。例えば、医療現場で人工臓器の部品や治療器具の稼働部など、ハイドロゲルを用いたアクチュエータが開発されれば、従来の金属製のパーツから人体と類似の物性を持つハイドロゲルへと置き換

えることが可能である。より複雑な形状変化や応答の要求に応えるためには、ゲルとゲルを接着する必要があると考えられる。一般的に固体材料の接着は幅広く研究されているものの、ゲルのようなソフトマテリアルの接着技術は、ほとんど無いのが現状であり、ソフトアクチュエータの実用化のためには、ゲルとゲルの接着手法の開発がきわめて重要である

2. 研究の目的

本申請課題の目的を「電気泳動法を用いるゲルの接着技術の確立とメカニズムの解明及びインテリジェントアクチュエータの創製」と設定する。従来困難であったゲルの接着が可能になれば、様々な形態に任意に加工することが可能になるため、ソフトアクチュエータの実用化に大きく貢献すると考える。ハイドロゲル同士をソフトに接着する接着剤及び技術基盤は現在なく、さらに、元来物質が吸着しにくいハイドロゲル界面の接着メカニズムの解明は、生体組織を含むソフト界面の理解に大きく貢献すると考えられる。

3. 研究の方法

カチオン性高分子とアニオン性高分子をそれぞれ内包したハイドロゲルを作製した。陽極にカチオン性、陰極にアニオン性のハイドロゲルを設置し、ゲル同士を接触させ、電場を印加して2つのゲルを接着した。印加電圧や電気泳動時間変化させた際の接着強度を測定した。

4. 研究成果

カチオン性高分子としてポリエチレンイミン、アニオン性高分子としてポリ(アクリル酸)をそれぞれ内包した温度応答性のpoly(*N*-isopropylacrylamide) (PNIPAAm)ゲルを

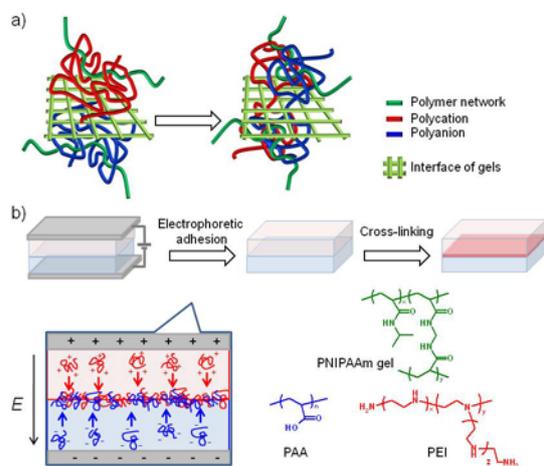


図 1 (a) ゲル界面におけるポリイオンコンプレックス形成を駆動力とする (b) 電気泳動接着の模式図

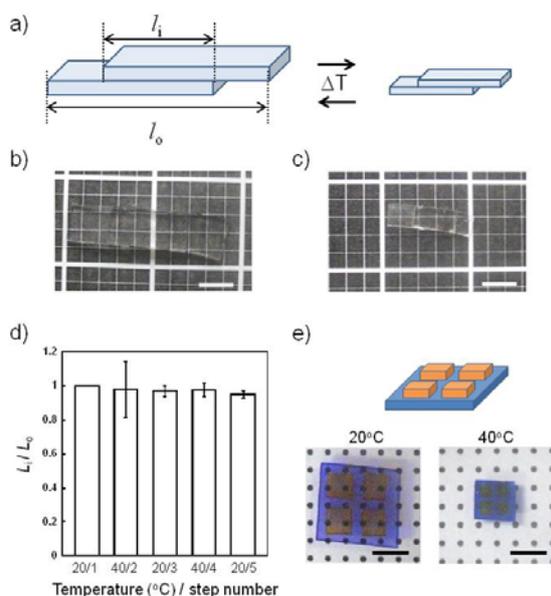


図 2. 接着したゲルの模式図(a)と写真 (b; 20°C, c; 40°C). (d) ゲルの繰り返し膨潤・収縮時における接着面と非接着面を含む全体比 (L/L_0). (e) ゲルアレイ. 全てのスケールバーは4 mm.

作製した。陽極にカチオン性、陰極にアニオン性の PNIPAAm ゲルを設置し、ゲル同士を接触させ、電場を印加すると2つのゲルが接着する現象を見出した。印加電圧や電気泳動時間変化させると、ゲルの接着強度は変化した。ポリアニオン及びポリカチオンは、電気泳動によってそれぞれ陽極及び陰極へ移動することが考えられる。つまり、移動した高分子鎖が2つのゲル界面においてポリイオンコンプレックスが形成し、2つのゲルを接着したと考えられる (図 1)。このことから、ゲル界面における高分子鎖の絡み合いが、ゲル同士の接着に効果的であることが示唆された。接着したゲルを 0.2 M NaCl 水溶液中に浸漬すると、一時間以内に剥離した。高分子弱電解質で形成されるポリイオンコンプレックスは、高いイオン強度中では崩壊することがよく知られている。このことから、ゲルの接着界面に働く相互作用が、イオン相互作用すなわちポリイオンコンプレックスであることが示唆された。接着したゲルは、温度上昇に伴う PNIPAAm ゲルの収縮によっては剥離しなかった。PNIPAAm ゲルの体積相転移に伴い、ゲルの接着面積は3倍以上変化することにもかかわらず剥離が認められなかったことから、接着面が強固である一方、きわめて柔軟であることが示唆された (図 2)。

ゲルの接着強度は、引っ張り試験によって測定した。接着強度は、電気泳動時間及びゲルの電荷量によって制御可能であった。一方で、ハイドロゲルの接着においては、接着の

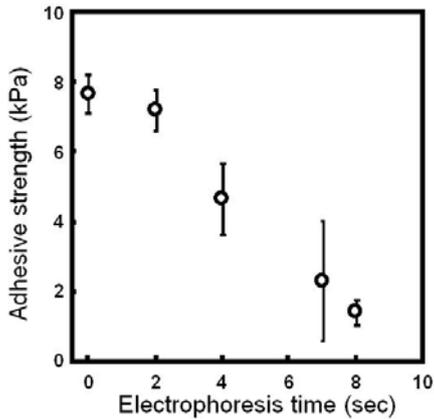


図 3 接着時と逆の電場を印加した際のゲルの接着強度 接着電圧: 20 V mm^{-1} , 剥離電圧: 2.5 V mm^{-1}

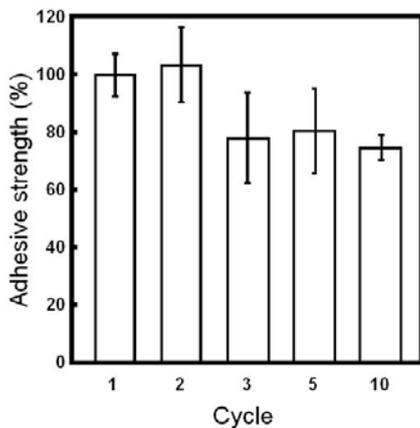


図 4 繰り返し剥離・接着時の接着能力 接着・剥離電圧: 20 V mm^{-1} , 剥離電圧: 2.5 V mm^{-1}

みならず剥離できることも必要となる。電場印加によって接着したゲルは、逆電場印加によって接着強度が徐々に減少し、最終的に剥離した (図 3)。

また、接着強度を維持したままハイドロゲルの接着・剥離が繰り返し行えることがわかった。接着と剥離を繰り返したハイドロゲルの接着強度は、10 回目であったも初期接着強度の約 75% を維持した。

このことから、電場印加によるゲルの接着は、可逆的プロセスであることが分かった。

逆に、ゲルの接着界面の安定化についても検討した。上述したように、高分子弱電解質で形成されたポリイオンコンプレックスは、イオン強度の高い水中で不安定化するため、生体内イオン強度 ($I = 0.15$) でも容易に剥離するため、化学結合を導入することで、界面を安定化させなければならないことが問題であった。興味深いことに、接着したゲルを貧溶媒中で一度収縮させた後に、再膨潤させるだけで接着海面が安定化され剥離しなく

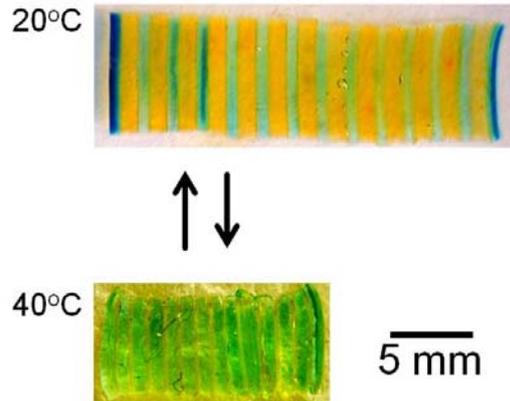


図 5 温度応答性ポリ(*N*-イソプロピルアクリルアミド)ゲル (青色) と温度非応答性ポリ(アクリルアミド)ゲル (黄色) の多層接着

なることがわかった。このことにより温度応答性高分子ゲルと非応答性ゲルの多層接着が実現可能となった。この多層ゲルは、温度の上昇に伴い、温度応答性高分子ゲルのみが収縮し、温度非応答性ゲルはそのままであることから、温度変化によって一軸運動を示すハイドロゲルアクチュエータであることが分かった (図 5)。ゲルの接着を経て材料を構築することで、従来の等方的な運動を示すハイドロゲルから、一軸運動をするハイドロゲル材料を構築できたことは意義深い。また、カチオン性とアニオン性の高分子ゲルであれば、その種類を問わず、生分解性高分子ゲルを用いても電場印加によりハイドロゲルは接着した。その接着強度は、電場印加時間や印加電圧、高分子電解質の電荷量で制御できることがわかった。

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 5 件)

1. Taka-Aki Asoh, Wataru Kawai, Akihiko Kikuchi “Electrophoretic adhesion of biodegradable hydrogels through the intermediary of oppositely charged polyelectrolytes” *Soft Matter* **2012**, 8, 1923-1927. (査読有り)

2. Taka-Aki Asoh, Akihiko Kikuchi “Electrophoretic adhesion of stimuli-responsive hydrogels” *Chem. Commun.* **2010**, 46, 7793-7795. (査読有り)

[学会発表] (計 20 件)

1. 麻生隆彬・菊池明彦「カチオン性及びアニオン性ゲルの電気泳動接着によるハイドロゲル構造体の作製」第 21 回インタージェント材料/システムシンポジウム、

2012年1月10日、東京女子医科大学 先端生命医科学研究所

2. 河合 亘・麻生隆彬・菊池明彦「電場印加により形成したポリイオンコンプレックスを用いた生分解性ハイドロゲルの接着」第21回日本MRS学術シンポジウム2011、2011年12月19日～21日、神奈川・横浜市開港記念会館
3. 麻生隆彬・河合 亘・菊池明彦「水溶性高分子による生分解性ハイドロゲルの電気泳動接着」第33回日本バイオマテリアル学会大会、2011年11月21日～11月22日、京都・京都テルサ
4. 河村栄里・麻生隆彬・菊池明彦「電気泳動法により接着した刺激応答性ハイドロゲル界面の安定化」第60回高分子討論会、2011年9月28日～9月30日、岡山大学津島キャンパス
5. 麻生隆彬・菊池明彦「電気泳動接着によるハイドロゲル構造体の作製」第60回高分子討論会、2011年9月28日～9月30日、岡山大学津島キャンパス
6. 河合 亘・麻生隆彬・菊池明彦「電気泳動法により接着した生分解性ハイドロゲルの接着強度」第60回高分子学会年次大会、2011年5月25日～5月27日、大阪国際会議場
7. 麻生隆彬・河合亘・河村栄里・菊池明彦「電場印加によるハイドロゲルの接着」第22回高分子ゲル研究討論会、2011年01月13日、東京大学山上会館
8. Taka-Aki Asoh and Akihiko Kikuchi “Adhesion of Stimuli-Responsive Hydrogels by Electrophoresis” PACIFICHEM2010, December 16, 2010, Honolulu, Hawaii, USA
9. 麻生隆彬、河合 亘、河村栄里、菊池明彦「ソフトマテリアル界面における高分子電解質の貫入を利用したハイドロゲルの接着」第32回日本バイオマテリアル学会大会、2010年11月29日～11月30日、グランドプリンスホテル広島

〔図書〕(計0件)

〔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
麻生 隆彬 (ASOH TAKA-AKI)
東京理科大学・基礎工学部・助教
研究者番号：50548378

(2) 研究分担者 ()

研究者番号：

(3) 連携研究者 ()

研究者番号：