The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Studies on Construction of Functional Wrinkles at Hydrogel Interfaces
Author(s)	加藤, 雅俊
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/76520
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　加藤　雅俊　　）	
論文題名	Studies on Construction of Functional Wrinkles at Hydrogel Interfaces (ハイドロゲル界面における機能性リンクルの構築に関する研究)

論文内容の要旨

本論文は、ハイドロゲル界面における機能性リンクル構造の構築研究成果をまとめたものであり、序論と本論3章、総括からなる。その内容を要約すると以下の通りである。

第1章では、電気泳動を用いたハイドロゲル表面へのリンクル構造の新規な形成法を開発した。ハイドロゲル表面や界面に対するリンクル形成は技術的な課題が示されているが、ハイドロゲルのさらなる高機能化のために、新たな手法の開発が必要とされている。本研究では、カチオン性またはアニオン性の高分子電解質の移動を電場印加によって操作し、電気泳動によってゲルの表面にポリイオンコンプレックス (PIC) からなる高弾性層を形成させ、ゲル表面にリンクル構造を形成する新たな手法を提案した。印加電場の強度やハイドロゲルの弾性率によってリンクル構造の波長が制御できること、電極のパターニングによってリンクル構造のパターニングが可能であること、一軸延伸ゲル表面に配向リンクル構造が形成することを見出した。さらに、刺激応答性ハイドロゲル表面に形成させたリンクル構造は、外部刺激によってその消失/再形成や変形が可能であった。

第2章では、ハイドロゲルの接着界面に形成される接着層としてのPICに着目した。ハイドロゲルの接着に関する既往研究では、接着界面の形状に関する情報がほとんどなく、その効果については未だ不明な点が多かった。本研究では、ゲル-ゲル界面にリンクル構造を形成させ、その接着強度に及ぼすリンクル構造の効果について検討した。ハイドロゲルの網目構造中の相互座用部位の濃度や分布、可動性の観点から電気泳動による接着界面でのPIC形成およびリンクル構造の誘起条件を詳細に検討した。相互作用部位が化学的に固定された共重合ゲルと高分子電解質として物理的に内包されたセミ交互侵入高分子網目構造 (セミ-IPNs)ゲルを比較すると､セミ-IPNsゲルの接着界面にのみリンクル構造が形成し、またゲルどうしが強固に接着した。また、圧縮応力下で電気泳動接着を実施することでリンクル形成を阻害すると、圧縮率の増加と共にリンクル構造が形成されなくなり、同時にゲルの接着強度が低下した。以上の検討から、接着界面のリンクル構造にはゲルどうしの接着強度を上昇させるはたらきがあることがわかった。

第3章では、ゲル-ゲル界面における薄膜の膨潤に伴うリンクル形成を利用した、ハイドロゲルの新規接着手法の開発を実施した。一般的に接着は相互作用部位の導入による化学的アプローチと接着界面における微細構造を活用した相互作用面積の増大を介した物理的アプローチに大別されるが、高い割合で溶媒を含むゲルに対する物理的なアプローチはほとんど検討されてこなかった。本研究では、カチオン性ゲル接着界面でアニオン性ゲル薄膜を膨潤させることで、リンクル形成を伴う強固な接着形成を実施した。膨潤ゲル薄膜と乾燥ゲル薄膜の比較から、界面における薄膜の膨潤が接着形成に重要であり、薄膜の膨潤度が接着界面の形状と接着強度の両方に影響することがわかった。また、接着層としてのリンクルゲル薄膜の延伸によってリンクル構造を解消させることで、接着ゲルを簡便に解体することができた。温度応答性ゲル薄膜を作製し接着層として用いることで、外部刺激によってリンクル構造の形成や消失を制御することによるハイドロゲルの接着制御を実施した。

以上のように、本論文ではハイドロゲル界面に機能性リンクル構造を構築した。ハイドロゲル表面および界面における新規リンクル形成手法を開発し、外部刺激による形態制御を実現した。さらに、接着界面を強固に安定化するリンクル構造の役割を発見し、リンクル構造を基盤とした新規ハイドロゲル接着手法を開発した。本手法を発展させることで、微小な含水材料を操作するためのプラットフォームとしての高機能ハイドロゲルリンクルの構築が期待される。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　加藤　雅俊　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	宇山　浩
	副 査	教授	佐伯　昭紀
	副 査	教授	古澤　孝弘
	副 査	教授	櫻井　英博
	副 査	教授	能木　雅也
	副 査	教授	林　高史
	副 査	教授	南方　聖司
	副 査	教授	桑畑　進
	副 査	教授	今中　信人
	副 査	教授	町田　憲一

論文審査の結果の要旨

本論文は、ハイドロゲル界面における機能性リンクル構造の構築研究成果をまとめたものであり、序論と本論3章、総括からなる。その内容を要約すると以下の通りである。

第1章では、電気泳動を用いたハイドロゲル表面へのリンクル構造の新規な形成法を開発している。ハイドロゲル表面や界面に対するリンクル形成は技術的な課題が示されているが、ハイドロゲルのさらなる高機能化のために、新たな手法の開発が求められていた。本研究では、カチオン性またはアニオン性高分子電解質の移動を電場印加によって操作し、電気泳動によってゲルの表面にポリイオンコンプレックス (PIC) からなる高弾性層を形成させ、ゲル表面にリンクル構造を形成する新たな手法を提案している。印加電場やハイドロゲルの弾性率によってリンクル構造の波長が制御できること、電極のパターニングによってリンクル構造をパターニング可能であること、一軸延伸ゲル上に配向リンクルが形成することなどを見出している。さらに、刺激応答性ハイドロゲル表面に形成させたリンクル構造は、外部刺激によってその消失/再形成や変形が可能であることが示されている。

第2章では、ハイドロゲル接着界面に形成される接着層としてのPICの役割に着目している。ハイドロゲルの接着に関する既往研究においては、接着界面の形状に関する情報がほとんどなく、その効果については未だ不明な点が多かった。本研究では、ゲル-ゲル界面においてリンクル構造を形成させ、その接着強度に及ぼすリンクル構造の効果を検討している。ハイドロゲルの網目構造中の相互作用部位の濃度や分布、可動性の観点から電気泳動による接着界面でのPIC形成およびリンクル構造の形成条件を詳細に調べている。相互作用部位が化学的に固定された共重合ゲルと高分子電解質として物理的に内包されたセミ交互侵入高分子網目構造 (セミ-IPNs)ゲルを比較すると、セミ-IPNsゲルを用いた接着界面にのみリンクル構造が形成してゲルどうしが強固に接着することを明らかにしている。また、圧縮応力下で電気泳動接着を実施することでリンクル形成を阻害すると、圧縮率の増加と共にリンクル構造が形成されなくなり、同時にゲルの接着強度が低下することが示されている。以上の検討から、ハイドロゲル接着界面のリンクル構造にはゲルどうしの接着強度を上昇させるはたらきがあることを指摘している。

第3章では、ゲル-ゲル界面における薄膜の膨潤に伴うリンクル形成を利用した、ハイドロゲルの新規接着手法を提案している。一般的に接着は相互作用部位の導入による化学的アプローチと接着界面における微細構造を活用した相互作用面積の増大を利用した物理的アプローチに大別されるが、大量の溶媒を含むゲルに対する物理的なアプローチはほとんど提案されてこなかった。本研究では、カチオン性ゲル接着界面でアニオン性ゲル薄膜を膨潤させることで、リンクル形成を伴うハイドロゲルの強固な接着を実現している。種々検討から、界面における薄膜の膨潤過程がリンクル形成を伴う接着に重要であり、薄膜の膨潤度が接着界面の形状と接着強度の両方に影響することが示されている。また、接着層であるリンクル層の延伸によってリンクル構造を解消させることで、接着ゲルを簡便に解体できることを明らかにしている。温度応答性ゲル薄膜を作製し、外部刺激によってリンクル構造の形成や

消失を制御したハイドロゲルの接着制御が達成されている。

以上のように、本論文ではハイドロゲル界面に機能性リンクルを構築した。ハイドロゲル表面および界面における新規リンクル形成手法を開発し、外部刺激によるリンクル構造の形態制御を実現した。さらに、接着界面を強固に安定化するリンクル構造の役割が示され、リンクル構造を基盤とした新規ハイドロゲル接着法を開発した。本研究は、含水材料と接触する様々な応用における新しいプラットフォームとして有望である。よって、博士論文として価値あるものと認める。