

力学機能のナノエンジニアリング  
2020 年度採択研究者

2021 年度 年次報告書
------------------

中島 祐

北海道大学 大学院先端生命科学研究院  
准教授

未踏高分子材料群「極限伸長網目」の学理構築

## § 1. 研究成果の概要

ゲル・エラストマーなどの柔軟高分子材料は、その構成要素である高分子鎖が揺らいでいる点で特徴的である。本研究では、内部の高分子鎖を大きく伸長させ、その揺らぎをあえて制限したゲル・エラストマー「極限伸長網目」を開発する。本材料は、高分子主鎖の化学結合変形に由来する力学特性を発現することが分かっており、本研究ではこの結合の変形に由来する極限伸長網目の各種力学機能を開拓することを目指す。本年度の成果を概説する。

極限伸長網目の「合成」:天然高分子(例えばセルロース)からなるゲルを大きく伸長させた状態で乾燥・再膨潤させると、極限伸長したセルロース同士が強く相互作用して配向したバンドルを形成することで、アキレス腱に匹敵する超高強度・異方性ゲルが得られた。<sup>1)</sup>

極限伸長網目の「理解」:極限伸長網目が示す特異な力学挙動を説明する力学・膨潤モデルを構築した。力学モデルとしては高分子網目の有限伸び効果を数学的に表す Gent モデルに補正項を加えたものを新たに考案し、また膨潤モデルとしては古典的な Flory-Huggins モデルを採用した。両者を組み合わせて得られた極限伸長網目の力学-膨潤モデルは、その特異な力学-膨潤カップリングの実験結果を、定性的には完全に再現することに成功した。

極限伸長網目の「機能」:極限伸長網目に化学反応部位を埋め込んで力学負荷を加えると、当該部位に力学エネルギーが加わることで化学反応が促進されることを本格的に見出した。例えば、極限伸長網目にアゾ基を組み込んだ場合、本網目への力学負荷によってアゾ基の分解反応が促進され、大量のラジカルが発生することが見いだされた。発生したラジカルは、網目内でラジカル反応を起こすことが可能であり、例えばモノマーを予め導入して力学負荷を加えると、網目内でモノマーの重合反応が高効率で引き起こされ、本反応により材料に新たな機能が付与出来ることが明らかとなった。<sup>2)</sup>

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) “Facile Preparation of Cellulose Hydrogel with Achilles Tendon-like Super Strength through Aligning Hierarchical Fibrous Structure”, Chemical Engineering Journal, vol. 428, Art. No. 132040, 2022.
- 2) “Azo-Crosslinked Double-Network Hydrogels Enabling Highly Efficient Mechanoradical Generation”, Journal of the American Chemical Society, vol. 144, No. 7, pp.3154-3161, 2022.