

Poly(*N*-isopropylacrylamide)を構成種とする三次元網目構造体を用いたトポロジカルゲルの合成

(関西大化学生命工¹・関西大 ORDIST²・関西大 KUMP-RC³) ○市川 航也¹・水口 拳一郎¹・藤田 大和¹・村瀬 敦郎²・大矢 裕一^{1,3}

Synthesis of Topological Gels Using 3-Dimensional Mesh-Like Structures Consisting of Poly(*N*-isopropylacrylamide) (¹ Faculty of Chemistry Materials and Bioengineering, Kansai University, ²ORDIST, Kansai University, ³KUMP-RC, Kansai University) ○Koya Ichikawa,¹ Yamato Fujita,¹ Nobuo Murase,² Yuichi Ohya^{1,3}

In this study, we have synthesized a topological hydrogel using water-soluble 3-dimensional (3D) mesh-like structures (molecular nets, MNs) consisting of poly(*N*-isopropylacrylamide) (PNIPAAm) with ultra-high-molecular-weight as physically restrictive cross-linking. Recently, we synthesized soluble 3D mesh-like MNs using 4-arm PEG derivatives (4-arm PEG-NH₂ and 4-arm PEG-OSu). Then, we succeeded in synthesizing topological gels by polymerizing a second monomer (NIPAAm) in the presence of MN (penetrate polymerization). The topological gels (MN gels) with movable cross-links showed unique physical properties. One of the advantages of this preparative method is that monomers for MN and 2nd monomer can be almost freely selected. In this study, we chose temperature-responsive PNIPAAm for synthesizing MN (PNIPAAm-Net) and synthesized a topological gel (NP-MN gel) using the obtained PNIPAAm-Net and penetrating polymerization of *N,N*-dimethylacrylamide. The PNIPAAm-Net can shrink upon heating above its lower-critical solution temperature (LCST), making the physical constraint of cross-links stronger, and the obtained NP-MN gel is expected to show a drastic change in the mechanical properties in response to temperature increase.

Keywords : Topological Gel; Molecular Net; Poly(*N*-isopropylacrylamide); Lower Critical Solution Temperature

本研究では, poly(*N*-isopropylacrylamide) (PNIPAAm)からなる水溶性の超高分子量三次元網目構造体(分子ネット, MN)を物理的拘束による架橋点としたトポロジカルな構造のヒドロゲルを合成した。近年我々は, 互いに反応する末端官能基を持つ四分岐 PEG 誘導体(4-arm PEG-NH₂, 4-arm PEG-OSu)の縮合反応により溶媒に可溶な超高分子量三次元網目構造体(MN) (PEG Net)を作製し, MN 存在下で 2nd モノマーを重合することにより(縫込み重合)により, MN による物理的拘束が架橋構造となったトポロジカルゲル (MN gel)の作成に成功した¹⁾。得られた可動的な架橋構造を有する MN gel は特徴的な物性を示した。この MN gel の作成方法の利点は, MN や重合する 2nd モノマーの種類をほぼ自由に選択可能であることである。そこで本研究では, 温度応答性を示す PNIPAAm を用いて MN (PNIPAAm-Net)を合成し, 得られた PNIPAAm-Net を用いて *N,N*-dimethylacrylamide の縫込み重合を行うことにより, トポロジカルゲル (NP-MN gel)の作製を試みた。得られる NP-MN gel は, PNIPAAm の下限臨界溶解温度 (LCST)以上に加熱すると, PNIPAAm-Net が収縮して架橋点の物理的拘束がより強固になり, 力学特性が温度により劇的に変化するゲルになると期待される。

1) Y. Ohya *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2024**, e202317045.