

動的共有結合を用いた超分子 Self-sorting ネットワークの構造制御

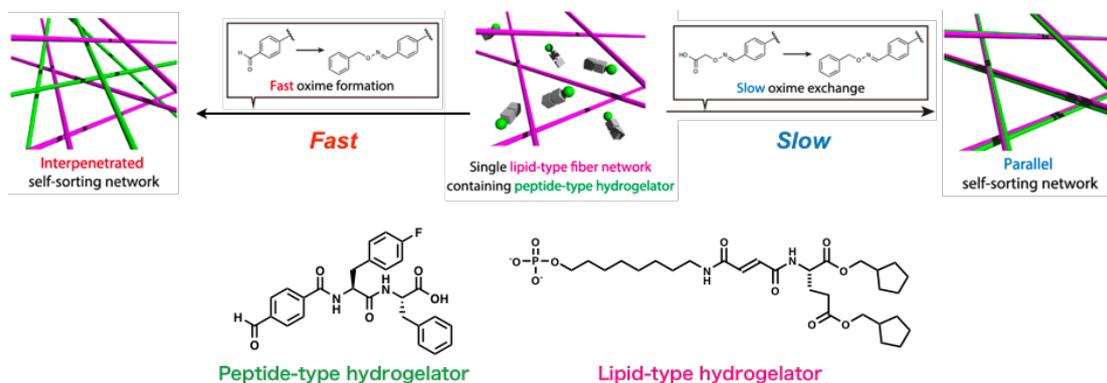
(京大院工¹・京都工芸繊維大学²・JST-ERATO³) ○長尾 和俊¹・窪田 亮¹・田中 航¹・松村 亮太郎¹・青山 拓磨²・浦山 健治²・浜地 格^{1,3}

Control of supramolecular self-sorting networks by dynamic covalent chemistry. (¹ Grad. Sch. of Eng., Kyoto Univ., ² Grad. Sch. of Sci. and Tech., Kyoto Inst. of Tech., ³ JST-ERATO) ○Kazutoshi Nagao¹, Ryou Kubota¹, Wataru Tanaka¹, Ryotaro Matsumura¹, Takuma Aoyama², Kenji Urayama², Itaru Hamachi^{1,3}

Supramolecular double network hydrogels comprising self-sorted nanofibers have attracted considerable attentions due to their rational integration of multiple stimulus-responses. Here, we describe the construction of two distinct self-sorting network patterns by controlling the kinetics of seeds formation through dynamic covalent oxime chemistry. Confocal imaging revealed the formation of interpenetrated self-sorting network upon treatment of *O*-benzylhydroxylamine to an aldehyde-tethered peptide-type hydrogelator in the presence of lipid-type nanofibers. In addition, deceleration of the kinetics of seeds formation by oxime exchange allowed for construction of the parallel self-sorting network through preferential nucleation of the peptide-type nanofibers on the lipid-type nanofibers.

Keywords : Supramolecular; Self-sorting; Dynamic covalent chemistry; confocal laser scanning microscopy; Hydrogel

Self-sortingは、複数の超分子ナノファイバーの機能を干渉させずに統合化する優れた戦略である。これまでに我々は独自に開発したペプチド型および脂質型ゲル化剤がSelf-sorting現象を示すことを発見している¹⁾。近年、モノマーレベルでのSelf-sorting現象の制御は達成されつつある一方で、Self-sortingファイバーのネットワーク構造を制御することは未だ困難である。本研究では、動的共有結合によりペプチド型ナノファイバーの形成速度を制御することで、2種類のSelf-sortingネットワークパターン(Interpenetrated or Parallel)の作り分けに成功した(Figure)²⁾。ベンズアルデヒド基を有するペプチド型ゲル化剤と脂質型ファイバーを含む溶液に*O*-benzylhydroxylamineを添加すると、オキシム形成反応を介してペプチド型ファイバーと脂質型ファイバーが相互貫入したInterpenetrated Self-sortingネットワークを構築することが、共焦点顕微鏡観察によって確かめられた。一方オキシム交換反応を利用してペプチド型ファイバーの形成速度を遅くすると、ペプチド型ファイバーの核形成が脂質型ファイバー上で進行することで、Parallel Self-sortingネットワークが構築されることを見出した。これらの知見は、多成分系超分子マテリアルの物性・機能をより高次に制御するために有用であると期待される。



1) Shoji Onogi *et al*, *Nature Chem.* **8**, 743-752 (2016).

2) Ryou Kubota *et al*, *Nature Commun.* **11**, 1, 4100 (2020).