植物細胞壁の集合構造に着想を得たセルロース系複合ハイドロ ゲルのボトムアップ構築

(東工大物質理工)○桜井勇太・澤田敏樹・芹澤 武

Bottom-Up Preparation of Cellulose Oligomer-Based Composite Hydrogels Inspired by Assembled Structures of Plant Cell Walls (*School of Materials and Chemical Technology*, *Tokyo Institute of Technology*) Oyuta Sakurai, Toshiki Sawada, Takeshi Serizawa

Cellulose is a major component of the plant cell walls, which shows great stability based on intermolecular interactions between cellulose microfibrils and matrix polysaccharides. However, artificial construction of cellulose-based robust assemblies is still challenging due to their complicated chemical synthesis and low solubility in solvent. In vitro enzymatic synthesis is a promising approach to produce artificially designed cellulose assemblies in a single step under mild conditions. Previously, we found that nanoribbon network hydrogels composed of cellulose oligomers could be constructed by cellodextrin phosphorylase-catalyzed reaction. However, the mechanical strength was comparable to the conventional physically networked hydrogels. In this study, inspired by the assembled structure of the plant cell walls, a new strategy to prepare cellulose oligomer-based assemblies with high stiffness was demonstrated. Enzymatic synthesis of cellulose oligomers in the presence of suitable polysaccharides resulted in nanoribbon-networked hydrogel formation with excellent mechanical properties.

Keywords: Cellulose; Enzymatic synthesis; Hydrogel; Polysaccharides; Plant cell wall

天然ではセルロースは植物細胞壁に遍在し、マトリックス多糖との適切な相互作用に基づいて高い構造安定性を実現している。しかしながら、こうしたセルロースを素材とした堅牢な集合体を人工的に設計して構築するのは未だに困難である。当研究室では、水溶性セルロースの加リン酸分解酵素であるセロデキストリンホスホリラーゼ(CDP)の逆反応を利用した酵素合成(Figure 1a)により、天然ではみられないセルロースオリゴマー集合体を簡便にボトムアップ構築でき、一段階でハイド

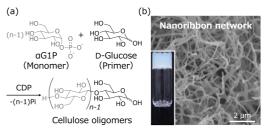


Figure 1. (a) Synthetic scheme of cellulose oligomers via CDP-catalyzed reaction. (b) Scanning electron microscopy image of nanoribbon network hydrogel prepared by the enzymatic reaction in the presence of carboxymethyl cellulose.

ロゲルを創製できることを見出してきた¹⁾。本研究では、植物細胞壁の集合構造に着想を得て、堅牢なセルロース集合体をボトムアップ構築することを目的とした。適切な多糖類の存在下でセルロースを酵素合成することで、ナノリボンネットワークからなる、優れた力学物性をもつハイドロゲルを構築できることを見出した(Figure 1b)。ゲルの特性を評価した結果、セルロースオリゴマーが特定の多糖類と適切に相互作用して複合化しており、その結果として優れた力学物性を示すことがわかった。

1) Y. Hata, T. Serizawa, J. Mater. Chem. B. 2021, 9, 3944.