

Zárójelentés - OTKA K68434

Szabályozott belső szerkezetű intelligens nanogél részecskék előállítása és jellemzése

A kutatás célja:

Az elmúlt évtized anyagtudományi kutatásainak egyik legdinamikusabban fejlődő területe a környezeti paraméterek változásaira érzékeny és ezekre a változásokra ugrásszerű, reverzibilis választ adó intelligens poli(*N*-izopropil-akrilamid) nanogél részecskék előállítása és vizsgálata volt. Ezeknek az anyagoknak a jelentőségét az adja, hogy alkalmazásuk számos területen ígér jelentős eredményeket (pl. harmadlagos olaj kitermelés, hatóanyagok irányított célbajuttatása és leadása, diagnosztikai eljárások, bioszenzorok, önregeneráló bevonatok kifejlesztése). A nanogél részecskék szerkezetének vizsgálata azt mutatta, hogy bár általában az előállított részecskéket homogén belső szerkezetűnek tekintik, a keresztkötő monomerek gyorsabb beépülése miatt a részecskék valójában egy erősen keresztkötött maggal és laza külső héjjal rendelkeznek. Bár az intelligens nanogél részecskék tulajdonságait várhatóan alapvetően befolyásolja a részecskék belső szerkezete ennek vizsgálatára, illetve a részecskék belső szerkezetének szabályozását lehetővé tevő előállítási módszerek kidolgozására korábban nem került sor. Ezért pályázatunk beadásakor négy célkitűzést fogalmaztunk meg:

1. Homogén keresztkötő monomer-eloszlással rendelkező nanogél részecskék állítása.
2. Egy egyszerű (egy lépéses) eljárás kidolgozása, szabályozott mag/héj típusú részecskék előállítására.
3. A kémiai és az elektromos szerkezet hatásának vizsgálata a kismolekula / nanogél kölcsönhatásra.
4. Kemo-mechanikai rendszerek kidolgozása és vizsgálata.

Elért eredmények:

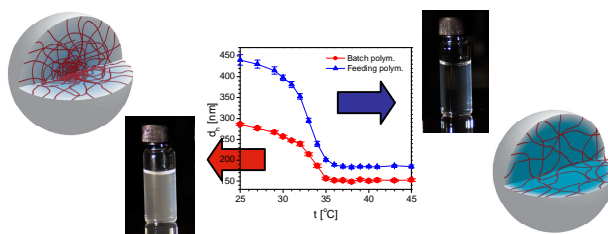
1. Homogén belső szerkezetű nanogél részecskék előállítása

A keresztkötő monomernek (metilén-bis-akrilamid - BA) a részecskemagban történő halmozódásából következik, hogy a keresztkötő monomer gyorsabban épül be a polimerbe, mint az alap monomer (*N*-izopropil-akrilamid - NIPAm). A homogén szerkezetű részecskék előállításának feltétele, hogy a monomerek beépülésének relatív sebessége állandó legyen a szintézis során. Ez elvileg úgy biztosítható ha a reakcióelegyben állandóan tartjuk a monomerek koncentrációját. Ahhoz, hogy ezt biztosítani tudjuk pontosan ismerni kell a gélrészecske növekedésének kinetikáját.

Ezért kidolgoztunk egy analitika eljárást az el nem reagált monomerek mennyiségének meghatározására, ami a monomerek és polimer termékek ultraszűrővel történő elválasztásán és a monomerek HPLC-vel történő analízisének alapul. Ennek segítségével vizsgáltuk a monomerek beépülését a nanogél részecskékbe a szintézis során. Megállapítottuk, hogy mivel a polimerizáció sebessége rendkívül hőmérsékletérzékeny a monomerek beépülése csak a reakcióelegy hőmérsékletének pontos kontrolálása mellett valósítható meg. Ezért építettünk egy termosztált köpennyel ellátott reakció edényt, ami lehetővé tette, hogy a reakcióelegy hőmérsékletét ± 0.1 °C pontosan tartani tudjuk. Ezt követően vizsgáltuk a hőmérséklet, a tenzid, és az iniciátor

koncentrációjának hatását a részecskék keletkezésére, majd a monomerek abszolút koncentrációjának, illetve a keresztkötő monomer (BA) és az alap monomer (NIPAM) arányának hatását a monomerek konverziójára.

A meghatározott kinetikai információk birtokában egy olyan, a monomerek folyamatos adagolásán alapuló eljárást dolgoztunk ki, ami lehetővé teszi a monomerek állandó arányának biztosítását a szintézis elején. Az így előállított részecskék optikai és duzzadási tulajdonságai jelentős eltérést mutatnak a hagyományos eljárással előállított részecskéktől, ami a részecskék eltérő belső szerkezetére utal (ld. 1. ábta).



1.ábra: A klasszikus precipitációs polimerizációval előállított inhomogén belső szerkezetű (bal oldal) és a monomerek adagolásával előállított homogén belső szerkezetű (jobb oldal) nanogél részecskék sematikus szerkezete, 0,1%-os diszperziójának optikai megjelenése és a nanorészecskék duzzadása a hőmérséklet függvényében.

A keletkező részecskék szerkezetének vizsgálata érdekében további kinetika vizsgálatokat végeztünk, melyeket dinamikus fényszóródás mérésekkel egészítettünk ki. Ez lehetővé tette a keletkező részecskék méretének és szerkezetének nyomon követését a konverzió függvényében. Vizsgálataink megerősítették, hogy az általunk kidolgozott eljárás valóban homogén keresztkötőmonomer-eloszlást eredményez a mikrogél részecskékben, szemben a hagyományos előállítási technikával.

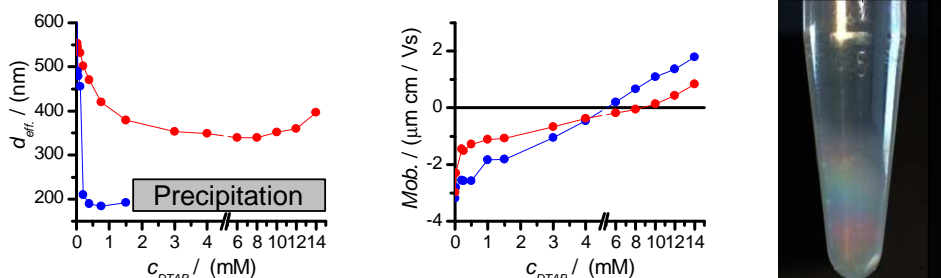
Acciaro R., Gilanyi T., Varga I.
 “Preparation of Monodisperse Poly(*N*-isopropylacrylamide) Microgel Particles with Homogenous Cross-Link Density Distribution”
 Langmuir, **2011**, 27, 7917-7925.

2. Egylépes szintézis kidolgozása szabályozott mag/héj szerkezetű nanogél részecskék előállítására

Mivel számos potenciális alkalmazás multifunkcionális mikrogél részecskék előállítását követeli meg, egyre növekvő érdeklődés mutatkozik hierarchikus szerkezetű nanogél részecskék (pl. mag-héj szerkezetek) előállítására. Az irodalomban leírt eljárásban a héj kialakítása a mag előállításától függetlenül, a már előállított és tisztított részecskéken történik. Az általunk kidolgozott módszer lényege, hogy egyetlen szintetikus lépésben kerül sor mind a mag, mind a héj kialakítására, ami jelentősen megkönnyíti és felgyorsítja a mag-héj szerkezetű részecskék előállítását.

A töltéssel rendelkező mikrogél részecskék igéretes hordozói lehetnének az ellentétesen töltött hatóanyagoknak (gyógyszer molekulák, biopolimerek), ha nem következne be az elegyekben csapadék képződés széles összetétel tartományban. Mint azt a fésűs polimereken végzett vizsgálataink megmutatták (ld. a beszámoló 3. pontját) ez a csapadék képződés megakadályozható a komplex képződés fenntartása mellett, ha a polielektrolit lánchoz semleges vízzeloldható polimer láncok kapcsolódnak (pl. PEO). Ezért olyan mag-héj szerkezetű mikrogélek előállítását vizsgáltuk,

melyek egy töltött maggal és PEO héjjal rendelkeznek. Ennek érdekében először megvizsgáltuk, hogy az akrilsav monomer milyen kinetikával épül be a mikrogél részecskébe. Megállapítottuk, hogy a NIPAm monomer és az akrilsav monomer beépülésének sebessége megegyezik, így a töltések eloszlása homogén a mikrogél részecskéken belül. A PEO-héj kialakítása érdekében PEO-MEMA makromonomereket használtunk, melyeket a NIPAm monomerek 90 ill. 95% százalékos konverziójánál adtunk a szintézis elegyhez különböző koncentrációkban (0-10% az össz monomer mennyiségéhez viszonyítva). Az előállított mikrogél részecskéknél vizsgáltuk a hőmérséklet és pH érzékenységét, monodiszperzitását és szerkezetét, valamint komplex képzését ellentétesen töltött tenzidekkel (DTAB). Megállapítottuk, hogy a PEO-MEMA makromonomerek héjat képeznek a mikrogélek felszínén, miközben nem befolyásolják a keletkező részecskék monodiszperzitását, pH és hőmérsékletérzékenységét, illetve ha a héj kellő mennyiségű PEO láncot tartalmaz, akkor megakadályozza a képződő semleges komplexek fázisszeparációját is.



2.ábra: A p(NIPAm-co-AAc)-héj-10 mol% (PEO)₂₃-MEMA (piros) és a p(NIPAm-co-AAc) (kék) nanogél részecskék hidrodinamikai mérete (bal oldali grafikon), és elektroforetikus mobilitása (középső grafikon) az ellentétesen töltött tenzid koncentrációjának a függvényében. A jobb oldali kép a centrifugálással előállított tömény, PEO-héjjal rendelkező nanogél részecskék irritálását mutatja, a részecskék monodiszperzitásának egyértelmű bizonyítékeként.

Kardos, A.

“Sztérikusan stabilizált intelligens mikrogélek szintézise”

XXX. OTDK Kémiai és Vegyipari Szekció, 2011

Acciaro, R.; Kardos, A.; Varga, I.

“Preparation of pNIPAm core – PEO shell microgel particles in a single step procedure”

Langmuir, közlése előkészületben

A semleges maggal és töltött héjjal rendelkező mikrogél részecskék elvileg olyan nanokapszullák alapjául szolgálhatnak, melyek külső héját, például egy ellentétes töltésű polielektrolittal, kollapszálva egy kis permeabilitású membrán hozható létre a duzzad mag körül. A gyakorlatban ez azért nem valósítható meg, mert az irodalomban a töltött héj kialakítására használt kétlépéses eljárás második lépése is a precipitációs polimerizáción alapszik, így a héj nem tartalmazhat ~10% töltött monomernél többet. Ennek következtében a kollapszált héj víztartalma is viszonylag nagy, ami a külső héj nagy permeabilitását eredményezi. Ennek a problémának a megoldására megvizsgáltuk, hogy a monomerek szabályozott adagolásának segítségével létrehozható-e egy nagy töltéssűrűségű héj egy semleges pNIPAm nanogél-mag körül. Vizsgálataink (HPLC, pH titrálás) azt mutatták, hogy ha a reakció második fázisában a monomerek megfelelő adagolásával a töltött monomerek (pl. akrilsav) nagy feleslegét biztosítjuk a reakció elegyben, akkor a töltött monomerek jóval nagyobb arányban is beépülnek a mikrogél részecskébe mint ami a kétlépéses precipitációs polimerizáció segítségével biztosítható. Előzetes fényszóródásméréseink arra utalnak, hogy a töltött monomerek valóban a külső héjba épülnek be, azonban ennek egyértelmű bizonyítására kisszögű neutronszerzés

(SANS) vizsgálatokat tervezünk deuterált monomerek felhasználásával. Ezeknek az eredményeknek a publikálása a SANS mérések elvégzése után várható.

3. A kémiai és az elektromos szerkezet hatása a kismolekula / nanogél kölcsönhatásra

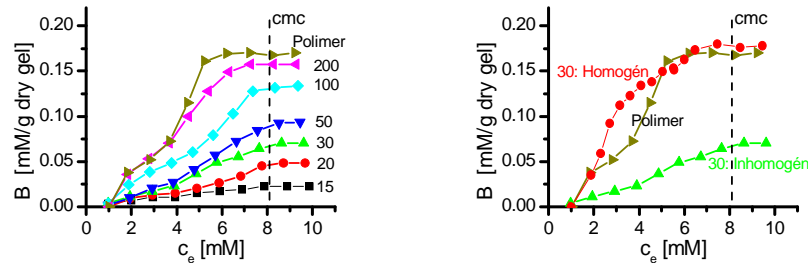
A semleges pNIPAm nanogél részecskék rendelkeznek egy minimális mennyiségű töltéssel, ami az iniciátor molekulákból származik és ami részecskék felszínén halmozódik jelentős határfelületi potenciál kialakulását idézve elő. Ezeknek a töltéseknek a szerepét vizsgáltuk a mikrogél részecskék cetil-trimetilammónium bromiddal (CTAB) történő kölcsönhatására potenciometrikus, dinamikus fényszórás és elektrokinetikai potenciál mérésekkel a részecske duzzadt ($< 33\text{ }^{\circ}\text{C}$) és kollapszált ($> 33\text{ }^{\circ}\text{C}$) állapotában. Megállapítottuk, hogy a tenzid aggregátumok formájában kötődik egy kritikus tenzidkoncentráció (cac) felett. A cac alatti tenzidkoncentráció tartományban sem a dinamikus fényszórás, sem a tenzidkötődési izotermák nem mutatnak kölcsönhatást a kísérleti hibahatáron belül. Ugyanakkor az elektrokinetikai potenciál mérések jelentős változásokat mutatnak a részecskék elektrokinetikai tulajdonságaiban. Ennek oka, hogy pNIPAM részecskéinek felszínén a szintézishez használt perszulfát iniciátorból származó negatív töltések vannak. A kationos tenzid kötődésének eredményeképpen a $c \ll cac$ tartományban a részecskék áttöltődnek. Duzzadt állapotban ($< 33\text{ }^{\circ}\text{C}$) a latex a teljes tenzidkoncentráció tartományban stabil. A kollapszált részecskéket tartalmazó latex ($> 33\text{ }^{\circ}\text{C}$) azonban a zérus töltés körüli szűk koncentráció tartományban koagulál, amit először sikerült megfigyelnünk az irodalomban. A tenzid adszorpciós izotermáját az elektrokinetikai mérésekből számoltuk. Az izotermák extrém nagy hőmérséklet-függést mutatnak a gélkollapszus körüli tartományban, amit a felszíni rétegben a tenzidkötődési helyek sűrűségének változásával értelmeztünk.

Borsos A., Gilányi T.

“Interaction of Cetyl-trimethylammonium Bromide with Swollen and Collapsed Poly(N-isopropylacrylamide) Nanogel Particles”

Langmuir, **2011**, 27, 3461–3467.

Korábbi, erősen kereszt-kötött semleges pNIPAm géleken végzett vizsgálataink azt mutatták, hogy a nanogél / tenzid kölcsönhatást a részecskék belső szerkezete jelentősen befolyásolja, ezért a tenzid kötődés két független, kooperatív lépésben játszódott le a gélrészecskék erősen kereszt-kötött magjában és külső laza héjában. Ezek az eredmények azt sugallják, hogy a tenzid kötődést jelentősen befolyásolja a gélrészecskék lokális kereszt-kötés sűrűség-eloszlása. Ezért egyrészt megvizsgáltuk, hogy a nanogél részecskék átlagos kereszt-kötés-sűrűségének függvényében hogyan változik egy tenzid (nátrium dodecil-szulfát - NaDS) kötési izotermája, másrészt hogy egy adott átlagos kereszt-kötés-sűrűség esetén hogyan befolyásolja a kereszt-kötő monomer eloszlása (mag/héj vs. homogén eloszlás) a tenzid kötődését. Vizsgálataink azt mutatták, hogy az átlagos kereszt-kötés-sűrűség csökkenésével a kötött tenzid mennyisége folyamatosan növekszik. Másrészt a homogén kereszt-kötés-eloszlású részecskéken is jóval több tenzid kötődik, mint az inhomogén részecskéken (ld. 3. ábra). Ezenkívül az is megállapítható, hogy míg az inhomogén (mag/héj szerkezetű) nanogélrészecskéken a tenzid kötődése a korábbi tapasztalatoknak megfelelően két lépcsőben játszódik le, addig a homogén szerkezetű nanogélen egyetlen kötési lépcső figyelhető meg. Ezek a tapasztalatok a gélrészecskében a hálóláncok által kialakított szabad térfogat eloszlásával értelmezhetők. Ezek a tapasztalatok különösen fontosak olyan alkalmazások esetén, ahol nagyméretű biomakromolekulák immobilizálása a cél (pl. bioszenzorok).



3.ábra: A NaDS kötési izotermái a nanogél részecskék átlagos keresztkötés sűrűségének függvényében (bal oldali grafikon, ahol a görbék mellett adott szám a NIPAM és a BA monomerek arányát jelöli), illetve a NaDS kötési izotermái azonos átlagos keresztkötés-sűrűséggel, de eltérő keresztkötő monomer eloszlással rendelkező nanogél részecskék esetén (jobb oldali grafikon).

Varga, I.; Gilányi, T.

“Effect of average crosslink density and local crosslink density distribution on the pNIPAm microgel / surfactant interaction”

Langmuir, közlése előkészületben

Szintén vizsgáltuk az elektromosan töltött nanogél-részecskék (10% akrilsav tartalmú) és az ellentétesen töltött tenzidek (hexadecil-trimetil-ammónium bromid - CTAB) kölcsönhatását. Ezeket a vizsgálatokat a nanogél részecskék természetes pH-ján végeztük. Vizsgálataink azt mutatták, hogy a tenzid két lépésben kötődik a mikrogél részecskékhez. Az első lépés egy nem kooperatív kölcsönhatás (monomer tenzidkötés), ami a részecskék kollapszusához, aggregációjához és végül kicsapódásához vezet, ahogy a kötött tenzid mennyisége megközelíti a sztöchiometrikus értéket. A második kötési lépcső kooperatív kölcsönhatás eredménye (a tenzid aggregátumok formájában kötődik a nanogél részecskéhez). Ennek a kölcsönhatásnak a következtében a részecskék megduzzadnak, áttöltődnek újra stabil diszperziót hoznak létre.

Borsos A., Acciaro R., Meszaros, R.; Gilanyi, T.

“Interaction of Cetyl Trimethylammonium Bromide with Poly-(N-Isopropylacrylamid-co-Acrylic Acid Copolymer Nanogel Particles)”

Prog. Colloid Polym. Sci., **2008**, 135, 188-193.

Mivel az ellentétesen töltött komponensek (töltött monomer és ellentétesen töltött tenzid ill. hatóanyag molekula) sztöchiometrikus keverési aránya körül széles fázis szeparációs tartomány alakul ki a kollapszált nanogél részecskék kolloid stabilitásának elvesztése miatt, a nanogél részecskék csak rendkívül korlátozott mértékben jöhetnek számításba hatóanyag hordozóként. Elvileg ez a probléma megoldható lenne a részecskék sztérikus stabilizálásával (pl. PEO láncok kopolimerizációjával), az irodalmi tapasztalatok azonban azt mutatták, hogy a PEO-makromonomerek kopolimerizációja nagyméretű, rendkívül polidiszperz részecskék képződéséhez vezetett. Ezért a PEO-oldalláncok stabilizáló hatásának vizsgálatát két fésűs polimer sorozat vizsgálatával kezdtük meg. A vizsgált fésűs polimerek 45 monomeregységből álló PEO oldalláncokkal rendelkeztek. Az első polimer sorozat esetén az oldalláncok sűrűsége a 30-100% tartományban változott és a polimerek nem rendelkeztek töltéssel. Vizsgálataink (kötési izoterma, pirén fluoreszcencia, DLS, SLS) azt mutatták, hogy az oldalláncok sztérikus kölcsönhatása gyakorlatilag teljesen visszaszorítja az oldallánc / tenzid kölcsönhatást. A maximális kötött mennyiség a legkisebb oldallánc-sűrűségű polimer esetén is közel két nagyságrenddel kisebb, mint a lineáris PEO esetén. A kötés ugyanakkor megőrzi kooperatív jellegét, bár az aggregációs szám (és ennek következtében a cac) jelentősen csökken. A másik polimer sorozat esetén (0-100% oldallánc-

sűrűség) a főlánc a tenziddel ellentétes töltéssel rendelkezett. Ebben az esetben a kötés két lépcsőben játszódik le (NMR diffúzió, elektroforetikus mozgékonyaság, DLS mérések). Az első lépcsőben egyedi tenzid molekulák kötődnek az ellentétesen töltött fő láncához, majd a második lépcsőben a nem ionos polimereknél is tapasztalt kismértékű kooperatív kötés játszódik le a PEO oldalláncokon. Tapasztalataink szerint az első kötési lépcső nem befolyásolta a nem-ionos oldalláncokkal való kölcsönhatást és a keletkező polimer/tenzid asszociátumok a teljes tenzid koncentráció tartományban megőrzik kolloid stabilitásukat. Ezeknek az eredményeknek az alapján megállapítható, hogy megfelelő PEO-héj kialakításával várhatóan az ellentétesen töltött nanogél részecskék és hatóanyag molekulák asszociátumai is stabilizálhatók. Ezeknek az eredményeknek az alapján dolgoztuk ki a PEO-héjjal rendelkező nanogél-részecskék előállítására szolgáló eljárást (ld. a beszámoló 2. pontja).

Varga, I.; Mészáros, R.; Makuška, R.; Claesson, P.M.; Gilányi, T.
“Effect of graft density on the non-ionic bottle brush polymer / surfactant interaction”
Langmuir, **2009**, 25, 11383–11389.

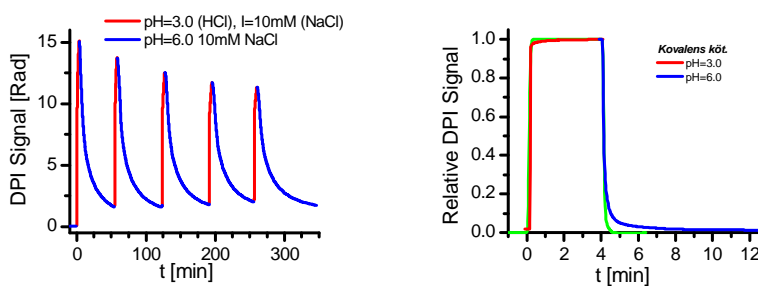
P.M. Claesson, R. Makuska, I. Varga, R. Meszaros, S. Titmuss, P. Linse, J. Skov Pedersen
”Bottle-Brush Polymers - Adsorption at Surfaces and Interactions with Surfactants”
Adv. Colloid & Interface Science, **2010**, 155, 50-57.

A gyenge sav komonomert (akrilsav) tartalmazó mikrogél részecskék töltéssűrűsége széles tartományban (semlegestől ~10 mol% töltött monomer) változtatható a pH segítségével, ezért elvileg lehetőség van arra, hogy a pH-val szabályozzuk a tenzid / mikrogél kölcsönhatást. Ezt a jelenséget vizsgáltuk pirén fluoreszcencia segítségével. Megállapítottuk, hogy a várakozásoknak megfelelően a semleges (pH ~ 2) mikrogéleken a negatív tenzidionok (dodecil szulfát) aggregátumok formájában kötődik a cac felett. Ugyanakkor a töltött (pH ~ 9) mikrogél részecskéken a várakozásokkal ellentétben szintén megfigyelhető a tenzid aggregátumok kötődése. Ezt azzal magyaráztuk, hogy a töltött mikrogél részecskéken belül valószínűleg kis töltéssűrűségű tartományok is kialakulhatnak a negatív monomerek inhomogén eloszlása miatt.

4. Kemo-mechanikai rendszerek kidolgozása és vizsgálata

Mivel jelentős érdeklődés mutatkozik az irodalomban olyan intelligens felületek létrehozására, melyek a nanogél részecskék duzzadásának változásából származó mechanikai energiát hasznosítanak pl. hatóanyagoknak a részecske belsejéből történő „kipumpálására”, megvizsgáltuk, hogy a polielektrolit multirétegek kialakítására használt lbl-technika alkalmas-e, gyors válaszüdejű mikrogél bevonatok létrehozására. Vizsgálataink azt mutatták, hogy a szilárd felszínen kötött elektromosan töltött polielektrolit szegmensek erős kölcsönhatása és jelentős keveredése következtében a nanogél-részecskék válaszüdeje sok nagyságrenddel hosszabb, mint a tömb fázisban. A válaszüdő valamennyire csökkenthető, ha viszonylag kis molekulatömegű (10-30 kDa) polielektrolitot használunk a mikrogél-részecskék felszínhez kötésére. A tömbfázisban észlelt válaszüdőkkel összemérhető válaszüdők elérésére azonban csak akkor van lehetőség, ha megszüntetjük a felszín és a részecskék közötti erős elektrosztatikus kölcsönhatást. Ennek a célnak az elérése érdekében egy új módszer dolgoztunk ki a mikrogél-részecskék és negatívan töltött felszínnek kovalens csatolására. Mivel az lbl-technika egy rendkívül egyszerű és olcsó módszer jól definiált felületi rétegek létrehozására, az általunk kifejlesztet eljárást is ez a módszer képezi. A módszer lényege, hogy a negatív töltésű hordozóra (pl szilika) egy diazónium csoportokat tartalmazó polikationt adszorbeálunk és a kollapszált mikrogél részecskéket az így létrehozott pozitív felszínen kötjük meg. A kovalens csatolás az így létrehozott polielektrolit multirétegben játszódik le UV-fény hatására. Ilyenkor a diazónium csoportok N₂ molekulák formájában

lehasadnak a polimer láncról, aminek következtében rendkívül reakcióképes karbokationok keletkeznek. Ezek reagálnak a felszín és a nanogél részecskék elektronban gazdag csoportjaival kialakítva a felszín és a nanogél részecskék közötti kovalens kapcsolatot. A besugárzás hatására, valamennyi pozitív csoport megszűnik a multirétegben, így az erős elektrosztatikus kölcsönhatás a továbbiakban nem akadályozza, hogy a felszínen kötött nanogélrészecskék a tömbfázisban található részecskékhez hasonlóan gyors és reverzibilis válaszokat adjanak a külső körülmények változására. Bár az eredeti vizsgálatokat a pályázati időszak elején végeztük az eredmények publikálását hátráltatta, hogy a bírálók olyan ellenőrző mérések elvégzését kérték, melyekre csak Stockholm-ban a KTH-n volt lehetőségünk. Ezek a mérések megtörténtek, így az eredmények megjelenése a közeljövőben várható.



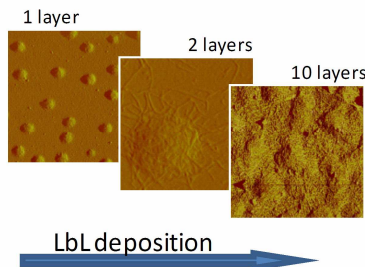
4.ábra: Silika/PEI/pNIPAm multirétegben található nanogél részecskéknek a közeg pH változására adott válaszána dinamikája (bal oldali ábra), illetve a szilika felszínhez kémiaailag csatolt nanogél részecskék válaszána dinamikája (jobb oldali ábra, piros és kék görbék, a zöld görbe a DPI-készülék válaszfüggvényét mutatja).

Varga I., Valle-Delgado J. J., Claesson P.

“Tuning the response dynamics of surface bound pNIPAm-co-AAc microgels through the control of interfacial interactions”

Langmuir, Előkészítés alatt újra beküldésre

Az irodalomban jelentős erőfeszítések történtek hatóanyagok szabályozott leadására alkalmas mikrogél-multirétegek létrehozására, melyek azonban eddig csak korlátozott sikerrel jártak. Ennek oka, hogy a mikrogéllal ellentétesen töltött polielektrolit behatol a mikrogél részecskék belsejébe és a fellépő erős kölcsönhatás miatt a létrehozott multiréteg csak korlátozott mértékben képes hatóanyag felvételre és leadásra. Ennek a problémának a megoldására megvizsgáltuk, hogy a mikrogéllal ellentétesen töltött polielektrolit helyettesíthető-e elemi cellulóz nanoszálakkal (MFC). Vizsgálataink (QCM-D, ellipszometria, AFM) azt mutatták, hogy az MFC segítségével létrehozhatók a multirétegek, és a cellulóz szálak nem hatolnak be a részecskék belsejébe, így nem akadályozzák azok duzzadását. Megvizsgáltuk a létrehozott multirétegek szobahőmérsékletű hatóanyag felvételét és leadását is. Azt tapasztaltuk, hogy a multirétegek hatóanyag felvétele arányos a mikrogél rétegek számával. A mikrogél-multiréteg a felvett hatóanyag szobahőmérsékletű leadására is képes. Erre közel egyenletes sebességgel, néhány óra alatt kerül sor. Ugyanakkor, ha a multiréteget felépítő részecskéket kollapszáljuk, a felvett hatóanyag több mint 90%-a egyetlen lépésben kibocsátásra kerül (triggered release).



5.ábra: A pNIPAm / MFC multiréteg szerkezetének változása a rétegszám függvényében.

Acciario, R.; Aulin, C.; Wågberg, L.; Lindström, T.; Claesson, P. M.; Varga, I.
“*Investigation of the formation, structure and release characteristics of self-assembled composite films of cellulose nanofibrils and temperature responsive microgels*”
Soft Matter, **2011**, 7, 1369 – 1377.

Kutatási eredményeink eddig 6 rangos nemzetközi folyóiratcikk formájában lettek publikálva, melyek összesített impaktfaktora 27,162. Ezenfelül egy cikk áll jelenleg elbírálás alatt és további 3 a pályázat munkájához kapcsolódó folyóiratcikk megírása van folyamatban. A pályázat eredményei egy BSc, egy OTDK és két PhD dolgozat alapjául is szolgáltak.