JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	超巨大ラン藻由来多糖類を用いた高配向ハイドロゲルの作製
Author(s)	Amornwachirabodee, Kittima
Citation	
Issue Date	2016-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/13526
Rights	
Description	Supervisor:金子　達雄，マテリアルサイエンス研究科，博士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

氏　　名	KITTIMA AMORNWACHIRABODEE
学　位　の　種　類	博士(マテリアルサイエンス)
学　位　記　番　号	博材第 390 号
学位授与年月日	平成 28 年 3 月 24 日
論　文　題　目	Preparation of highly-oriented hydrogels of supergiant cyanobacterial polysaccharides (超巨大ラン藻由来多糖類を用いた高配向ハイドロゲルの作製)
論文審査委員	主査　金子　達雄　北陸先端科学技術大学院大学　准教授 山口　政之　同　教授 松村　和明　同　准教授 谷池　俊明　同　准教授 Supason Wanichwecharungruang チュラロンコン大学　准教授

論文の内容の要旨

Oriented hydrogels have been widely studied in fields of soft-biomaterials due to their anisotropic properties possibly applicable in biomedics, optics, and electronics. According to the literatures, network structures of the hydrogels were oriented by various factors such as self-assembly under flow, mechanical elongation, solvent-cast, etc. However, no report on one-directional swelling of the hydrogels has been available in spite of ultimate targets for the anisotropic hydrogels. Molecularly-oriented hydrogels of sacran, which is a supergiant liquid crystalline polysaccharide extracted from *Aphanothece sacrum* biomaterials, showing ultra-high anisotropy of swelling is successfully prepared by two-step chemical cross-linking. Divinylsulfone (DVS) works as a chemical cross-linker of sacran chains in a dilute aqueous solution to form hydrogels, but some of the added DVS remains in the hydrogel without cross-linking. The remaining DVS cross-links further with the pre-formed networks of sacran chains in liquid crystalline state during slow drying to produce in-plane oriented xerogels. The xerogels show heterogeneous anisotropy in the successive swellings steps; the linear swelling ratio in the thickness direction is 10,000-40,000 fold higher than that in the width direction, due to the molecular orientation of the sacran hydrogels. X-ray diffraction imaging of the hydrogels reveal not only the orientation of the xerogel films but also the unusual orientation of water molecules binding to sacran networks in the hydrogel state. The oriented hydrogels show various anisotropies such as mechanical properties and stimuli-responsiveness.

Keywords: anisotropy, hydrogels, polysaccharide, liquid crystals, in-plane orientation

論文審査の結果の要旨

分子配向性ハイドロゲルは皮膚や筋肉など生物の体内の至る所に存在し、それぞれ重要な生命機能を示していることから分かるように、次世代の機能性材料としての高いポテンシャルを持つ。一方、そのほとんどは複雑な方法で作製しており、当分野の研究進展の支障となっている。他方、面内配向フィルムを作製するには、古くからキャスト法という簡便な方法が利用されてきた。本論文では、ラン藻由来細胞が外多糖類であるサクランの分子配向ハイドロゲルを作製するのに、このキャスト法を利用することが効果的であることを示し、得られたゲルの各種異方的物性を明らかにすることを目的として研究を進め、以下のように纏めた。

第一章では、サクランとそのゲルに関する研究背景および従来報告されてきた分子配向ゲルに関する論文をレビューすることで、本論文の研究背景、目的、意義を述べた。

第二章では、種々の架橋剤を用いてサクラン分子鎖を効率よく化学架橋する条件を調べ、ジビニルスルホンが適切であることを見出した。次に、未反応なジビニルスルホンを含むハイドロゲルを固体基板の上に貼り付けてゆっくりと乾燥することで、ゲルのキャストフィルムを作製した結果、その乾燥フィルムが面内配向していることを示した。

第三章では、前章で合成したゲルの面内配向フィルムを水に再度浸すとフィルムの厚み方向のみに膨潤する一次元膨潤ゲルとなることを明らかにした。得られたゲルの膨潤異方性は 1 万倍を超える極めて高い値となった。X 線構造解析の結果からゲル内部では水分子でさえ配向することを見出した。さらに、当方法によりハイドロゲルに生じた傷が修復される自己修復性が示されることも見出した。

第四章では、一次元膨潤ゲルに溶媒組成、pH 変換、イオン添加などの外部刺激を与えた結果、バネの様に厚み方向に一次元に膨潤収縮する現象を示した。また、ゲル表面に L929 マウス線維芽細胞を播種したところ、ゲルの上面と側面では異なる進展性を示し、側面に於いては細胞が一方向に配向して進展することが見出された。

第五章では、全ての章を総括し、当該分子配向ゲルの異方的構造と物性との相関 を纏めて説明した。

以上、本論文は一次元膨潤ハイドロゲルを初めて設計・合成し、かつ構造の配向性と異方的物性との相関を明確にする など 学術的に貢献するところが大きい。よって博士（マテリアルサイエンス）の学位論文として十分価値あるものと認めた。