

氏名(国籍)	わん 王 べん 本 りやん 蓮 (中国)
学位の種類	博士(学術)
学位記番号	博甲第1,831号
学位授与年月日	平成10年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	農学研究科
学位論文題目	STUDY ON HYDROGEL FORMATION FROM POLY (VINYL ALCOHOL) SOLUTIONS BY γ -RAY IRRADIATION (γ -線照射法を用いたポリビニルアルコール水溶液からのハドロゲル形成に関する研究)
主査	筑波大学教授 工学博士 國府田 悦 男
副査	筑波大学教授 工学博士 向 高 祐 邦
副査	筑波大学教授 農学博士 中 原 忠 篤
副査	筑波大学教授 理学博士 平 林 民 雄

論文の内容の要旨

高分子ゲルは高吸水性を持ち、その為に低い界面張力を有する。さらに、低分子物質を容易に透過できるので、様々な医用材料として利用する試みがなされている。中でもポリビニルアルコール (PVA) から合成された高分子ゲルは、“Ivalo”と言う商品名で人工皮膚として既に利用されている。PVAゲルを合成するためには、いくつかの架橋法が用いられるが、 γ 線を利用する放射線架橋法は、何らかの化学架橋剤を使用することなくゲルを得ることができるために、医用材料としての応用を考える場合、特に優れていると思われる。しかしながら、 γ 線架橋機構に関する研究例は少なく、十分な議論がなされていない。そこで、本研究では、PVA水溶液に γ 線照射した時に起こる架橋反応を高分子科学的立場から明らかにすることを目的とした。実験方法としては、レーザー光散乱法、粘度法、分子篩いクロマトグラフ法などを用い、それらを有機的に組み合わせることから架橋高分子(ゲル)の前駆体となる分岐状ポリマーのキャラクタリゼーションを行なった。研究結果の概要は以下のとおりである。

(1) 照射線量と架橋体の分子量の関係を詳しく調べると、照射初期には高分子濃度に関係なく分子間架橋によって分岐状高分子が生成することが明らかとなった。その後は、分子内架橋と分子間架橋でゲルが生成するが、前駆体としての分岐状高分子濃度が生成するゲルの形状に大きな影響を与えることがわかった。

(2) 分岐状高分子の濃度(従って出発PVA濃度)が低い場合は、数百ナノメートルの大きさをもつゲル微粒子(microgel)が生成することがわかった。特に、その形成過程で、微粒子表面に存在する多くのdangling chainの架橋が徐々に進行し、球状微粒子になることが明らかになった。

(3) しかしながら、出発PTA濃度がある値(臨界高分子濃度)を越えると、分岐状高分子間の架橋反応が支配的となり、反応系全体がゲル化することがわかった(bulk gelの生成)。

(4) 本研究では、放射線架橋PVAゲルを人工硝子体として利用することを考え、ラットを使用した動物実験を行なった。その結果、高分子量のPVAから出発した架橋体(従って高分子量の架橋体)の生体適合性が良好であることがわかった。

審査の結果の要旨

本論文は、ポリビニルアルコール (PVA) 水溶液に γ 線を照射してゲル化を行う場合に起こる高分子鎖の架橋形成機構を詳しく調べ、得られるハドロゲルを医用材料、特に人工硝子体として利用する場合の基礎的知見を得ることを目的としている。 γ 線照射によるPVAの架橋に関しては、今迄にも多くの研究が行なわれて来たが、その何れもが架橋高分子鎖の分子量、分子形態、分子の大きさ(流体力学半径と慣性半径)を確実な方法で調べること無く架橋機構を論じた定量性に欠けるものであった。そこで、本論文の著者は、近年著しく進歩したレーザー光散乱実験技術を取り入れ、静的光散乱から慣性半径と分子量を評価し、動的光散乱から求めた流体力学半径と比較する方法を用いて、広い高分子濃度範囲で詳細に架橋反応を調べた。さらに、その結果を粘度法や分子篩いクロマトグラフ法から得られた実験結果と比較し、(1)照射初期には高分子濃度に関係なく分子間架橋反応によって分岐状高分子が生成すること、(2)その分岐状高分子の濃度が低い場合は microgel, ある臨界濃度を越すと bulk gel が生成すること、(3) microgel の形成過程では微粒子表面に存在する多くの dangling chain の架橋が徐々に進行して球状微粒子になることを明らかにした。これらの知見は、PVA の架橋過程を分子レベルの変化として明らかにしたものであり、PVA ゲルを人工硝子体として利用する場合に起こりうる様々な生化学的な変化を、高分子(ゲル)の構造と対比させながら研究を行うための重要な指針を与えるものと判断できる。事実、著者が行なった動物実験の結果は、高分子量のPVAから出発した架橋体の体適合性が良好であることが示された。

よって、著者は博士(学術)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。