九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

“Collagen nano-building blocks” separated from native fibrils using aqueous counter collision

辻田, 裕太郎

https://hdl.handle.net/2324/2236316

出版情報：九州大学, 2018, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏　　名　：辻田 裕太郎

論文題名　：“Collagen nano-building blocks” separated from native fibrils using aqueous counter collision
(水中カウンターコリジョンにより原繊維から単離された「コラーゲンナノビルディングブロック」)

区　　分　：甲

論　文　内　容　の　要　旨

本論文では、水中カウンターコリジョン(ACC)法を用いてコラーゲン原繊維から幅の異なる 3 種類の繊維状のナノ構造体を単離し、階層構造と物性の関係について明らかにした。さらに、それらがコラーゲン原繊維のナノスケールのビルディングブロックであることを示し、このビルディングブロックを用いて 3 次元構造体の構築および細胞足場としての機能の検討を試みた。

ACC 法とは試料懸濁水を高速に対向衝突させ、生物材料をナノ微細化する手法である。この機構では、衝突の運動エネルギーを衝撃波として生物材料に伝達させ、水素結合やファンデルワールス力、疎水性相互作用などの弱い相互作用で固定されているナノスケールの構造体を取り出すことができる。また、その際の衝突エネルギーを制御することにより選択的な微細化が可能である。

第一章では、ACC 法を用いてコラーゲン原繊維からナノスケールで幅の異なる 2 種類のナノファイバー(CNF100, CNF10)を創製した。これらは、ACC 法の衝突エネルギーに応じて 2 種類の幅に収束した。この 2 種類のナノファイバーの基礎的な性質である力学強度の検討時において、原繊維および CNF100 中に CNF10 様の構造体が観察された。つまり、CNF10 は原繊維および CNF100 のビルディングブロックであると示されるとともに CNF100 中には弱い相互作用が残存している可能性が示唆された。

そこで、第二章では ACC 法の衝突エネルギーを 2 段階に分けて大きくし、連続して試料に与えることで、長さの短いロッド状の構造体(CN-Block)を単離した。つまり、第一章の ACC 処理とは異なるエネルギー伝達が生じた結果、CNF100 及び CNF10 とは異なるサイズを有するビルディングブロックの存在が明らかとなった。さらに、粘度試験によって CN-Block は CNF100 および CNF10 よりも疎水的な表面を有する可能性を示した。

第一章、第二章で ACC 法を用いて単離されたビルディングブロックは本来水素結合や疎水性相互作用を用いて原繊維を形成していることから、両親媒性を有する材料として期待される。そこで第三章では、その両親媒性を利用して O/W 型のピッカリングエマルションを創製し、その基礎的な性質を明らかにすることで材料としての特性を検討した。

第四章では、第三章にて調製したピッカリングエマルションを鋳型としたハニカム足場を創製し、ヒト上皮細胞の活性をプローブとして第一章と第二章で得られたビルディングブロックのコラーゲンとしての機能を検討した。

第一章、第二章を通して、ACC 法を用いてコラーゲン原繊維から 3 種類のコラーゲンナノ繊維状構造体の単離及びその基礎的な物性を示した。今までに天然のコラーゲン原繊維からナノ繊維状構造体調製の報告はない。つまり、コラーゲン原繊維のナノスケールのビルディングブロックの存在を明らかにした。さらに第三章、第四章にてこれらを用いた材料創製を試みるとともにそのコラーゲンとしての機能に言及した。本論文にて単離されたビルディングブロックは新規コラーゲン材料として医療分野や化粧品分野に限らず、工業分野等の幅広い応用展開が期待される。