やま ぐち せい じ

 氏
 名 山 口 誠 二

学位(専攻分野) 博 士 (エネルギー科学)

学位記番号 論工ネ博第 52 号

学位授与の日付 平成20年1月23日

学位授与の要件 学位規則第4条第2項該当

学位論文題目 Development of Bio-environment Adjusted Materials by Electrophoretic

Deposition

(電気泳動堆積を用いた生体環境適合材料の開発)

(主 查) 論文調查委員 教授八尾 健 教授吉川 暹 教授森井 孝

## 論文内容の要旨

本論文は、新規な電気泳動堆積を開発し、これを用いて生体環境適合材料の作成を行い、多くの有益な知見を得た結果についてまとめたもので、6章から成っている。

第1章は序論である。従来,電気泳動堆積では粒子を堆積する基板を電極とすることから,絶縁体が基板として使用されることがなかった。これに対し,電極間に多孔質の絶縁体基板を配置すると,細孔からもれ出る電場により粒子が泳動され,絶縁体基板の表面並びに内部に堆積することを初めて見出した。また,多孔質絶縁体基板と電極との間に電場を部分的に遮断する電場マスクを配置すると,粒子を選択的に多孔質基板上に堆積できることも明らかにした。ヒドロキシアパタイトは骨の成分として知られており,生体骨と直接接合することができる。また,ヒドロキシアパタイトは,細胞,たんぱく質などの生体分子と高い親和性を有している。これらの知見に基づき,新規な生体環境機能性材料の開発に関し,多くの成果を得た。

第2章では、アルミナの多孔質基材中に、電気泳動堆積により高い生体活性を有するウォラストナイトを堆積し、アルミナーウォラストナイト複合体を作製した。これを、人の体液と同じ無機イオン濃度並びにpHを有する擬似体液(SBF)に浸漬すると、複合体の陰極側表面にヒドロキシアパタイトを形成し、生体活性を有することが示された。形成したヒドロキシアパタイトの複合体基板への接着強度は8.9MPaと高い値を示した。ヒトの緻密骨と同程度の力学的強度を有し、優れた力学的性質を持つが生体活性を示さないアルミナと、生体活性を有するが焼結性が不十分なウォラストナイトを組み合わせ、両者の短所を補完しつつ、長所を生かした、優れた生体活性複合材料を作製することが可能となった。

第3章では、アルミナの多孔質基材中に、電気泳動堆積によりアモルファスリン酸カルシウム(ACP)ナノ粒子を堆積した。SBFのpHを高くすると均質核生成を起こし、溶液中に多数のACPナノ粒子が析出する。ACPナノ粒子は生体活性が高く、SBF中でヒドキシアパタイトの生成を誘起する。電気泳動堆積により作成したアルミナーACP複合体は、SBFに浸漬すると、陽極側、陰極側の両面にヒドロキシアパタイトを形成し、生体活性を有することが示された。形成したヒドロキシアパタイトの複合体基板への接着強度は陽極側で8.2MPa、陰極側で7.9MPaといずれも高い値を示した。アルミナの力学的特性とACPの生体活性を複合した優れた生体活性複合材料の開発に成功した。

第4章では、パターンを描画したフォトレジストでマスクした電極に接して多孔質のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 基板を配置し、ウォラストナイトの微粒子を電気泳動させることにより、基板上にウォラストナイトのパターン を形成した。その後 SBF に浸漬することにより、ウォラストナイトの堆積した領域にのみヒドロキシアパタイトを形成し、ヒドロキシアパタイトのパターンを得た。最小線幅は約 $100\mu$ mであった。走査型電子顕微鏡(SEM)観察により、パターンの境界は明瞭であることを確認した。生体親和性に優れたヒドロキシアパタイトでパターンを形成することにより、バイオセンサー、ドラッグデリバリーシステム、あるいは細胞をセンサ素子とするチップデバイスなど、高度な機能を有する生体材料の開発が期待される。

第5章では、パターンを描画したフォトレジストでマスクした電極に接して多孔質のPTFE基板を配置し、ACPナノ粒子を電気泳動させることにより、基板上にACPのパターンを形成した。その後SBFに浸漬することにより、ACPの堆積した領域にのみヒドロキシアパタイトを形成し、ヒドロキシアパタイトのパターンを得た。最小線幅は約 $100\,\mu$ mであった。SEM観察により、パターンの境界は明瞭であることを確認した。生体親和性に優れ、高度な機能を有する生体材料の開発が期待される。

第6章は結論であり、本論文で得られた成果を要約している。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、従来導電性の基板にのみ堆積が可能であった電気泳動堆積を多孔質絶縁体基板に適用し、細孔から漏れ出る電場により粒子が泳動され、基板の表面ならびに細孔内に堆積することを見出し、これを生体環境適合材料として重要なヒドロキシアパタイトの活用に適応することを目的として研究を進め、多くの有益な知見を得た結果についてまとめたものであり、主な内容は以下のとおりである。

- 1. 強度が高く生体内で安定だが骨と直接結合しないアルミナの多孔体に、高い生体活性を有するウォラストナイトの粒子 を電気泳動堆積を用いて堆積し、アルミナーウォラストナイト複合材料を作成した。この複合材料は、人の体液と同じ 無機イオン濃度とpHを有する擬似体液(SBF)中でヒドロキシアパタイトを誘起し、高い生体活性を示した。
- 2. SBFの pHを高くすると、溶液中にアモルファスリン酸カルシウム(ACP)のナノ粒子が多数生成し、このナノ粒子はSBF中でヒドロキシアパタイトを誘起する作用が強いことを見出した。
- 3. アルミナの多孔体に、ACPナノ粒子を電気泳動堆積を用いて堆積し、アルミナーACP複合材料を作成した。この複合材料は、SBF中でヒドロキシアパタイトを誘起し、高い生体活性を示した。優れた力学的性質と高い生体活性を持つ材料の開発に成功した。
- 4. フォトレジスト技術を応用して、金属基板上にミクロンオーダーのレジストパターンを形成し、電気泳動堆積を用いて 多孔質のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)基板に選択的にウォラストナイト粒子を堆積させ、レジストパターン を転写したウォラストナイトのパターンを得た。これをSBFに浸漬してウォラストナイトからヒドロキシアパタイト を誘起し、ヒドロキシアパタイトのミクロンオーダーのパターンを形成した。バイオセンサー、ドラッグデリバリーシ ステム、あるいは細胞をセンサ素子とするチップデバイスなど、高度な機能を有する生体材料の開発が期待される。
- 5. フォトレジスト技術を応用して、金属基板上にミクロンオーダーのレジストパターンを形成し、電気泳動堆積を用いて 絶縁性基板に選択的に ACPナノ粒子を堆積させ、レジストパターンを転写した ACPナノ粒子のパターンを得た。これ を SBF に浸漬して ACPナノ粒子からヒドロキシアパタイトを誘起し、ヒドロキシアパタイトのミクロンオーダーのパ ターンを形成した。高機能性の生体材料の開発につながるものである。

以上要するに本論文は、新たに見出された電気泳動堆積の手法を用いて、ヒドロキシアパタイトを活用する新規で有用な生体環境適合材料の開発を行ったもので、学術上、実際上、寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(エネルギー科学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成19年12月21日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。