

## 骨再生を指向したシルクフィブロイン/水分散性 ポリウレタン複合化材料の創製

(農工大院・工) ○塩谷友紀乃、秋岡翔太、中澤靖元

【緒言】大規模な骨欠損において、足場材料を用いた組織工学的アプローチによる骨再生が注目されている。本研究では骨再生用足場材料の機械的特性と分解性に着目し材料設計を行った。基盤材料は、低炎症性、形態加工性、生分解性を示し、組織工学材料として有望視されているシルクフィブロイン(SF)に着目した。材料形態として骨欠損部位の補填のため、SFと水溶性有機溶媒を混合し、凍結、融解して得られるスポンジ[1]を用いた。しかしSF単体での物性制御は困難なため、水分散性ポリウレタン(WPU)との複合化を試みた。WPUは主成分であるポリカプロラクトン(PCL)により、生分解性、靱性を有する。また、構成成分であるDMPAは分子鎖中にカルボキシ基を有しており、カルシウムイオンとの静電的な相互作用により石灰化能を強化できる可能性がある。本研究では骨再生用足場材料として適切な機械的特性や分解性をもつ材料の創製に向け、異なる混合比のSF/WPU複合化材料を作製し、それぞれの局所構造や物性について評価したので報告する。

【実験】超純水を添加して希釈したジメチルスルホキシド(DMSO)に、SF水溶液、WPU(東ソー株式会社提供)を加えた。それぞれの終濃度が、DMSO 1 (v/v)%, SF水溶液は 3 (w/v)%, WPUは 0、5、10、15 (v/v)%となるようにSF/WPU/DMSO水溶液を調製した。得られた水溶液を凍結、融解することでスポンジ(SF/WPU0、SF/WPU5、SF/WPU10、SF/WPU15)を作製し、凍結乾燥した。なお、WPU単体のスポンジは凍結乾燥することで得た。得られたスポンジについて、固体 $^{13}\text{C}$  CP/MAS NMR測定、含水状態での一軸圧縮試験を実施した。

【結果・考察】各スポンジの固体 $^{13}\text{C}$  CP/MAS NMRスペクトルにおいては、SF由来Ala C $\alpha$ ピーク(48-53ppm)および、WPU由来PCLエチレン基(-O-CH $_2$ -)由来ピーク(63-65ppm)の構造依存的な変化を認めた(Fig.1)。すなわち、SF・Ala C $\alpha$ の $\beta$ シート構造由来ピーク(49.0 ppm)、WPU・PCLエチレン基(-O-CH $_2$ -)の結晶構造由来ピーク(64.9 ppm)ともにWPU濃度依存的な相対的増加を示す一方で、SF・Ala C $\alpha$ ランダムコイル由来ピーク(50.8 ppm)および、WPU・PCLエチレン基(-O-CH $_2$ -)の非晶成分由来ピーク(63.8 ppm)の相対的減少を示した。

一軸圧縮試験の結果より得た各スポンジの圧縮弾性率をFig. 2に示す。WPUの濃度依存的に複合化材料の圧縮弾性率は増加した。また、SF/WPU10、SF/WPU15はWPUよりも高い圧縮弾性率を示した。これは固体 $^{13}\text{C}$  CP/MAS NMR測定の結果から、SFとWPUの混合によるそれぞれの結晶構造形成が誘起されたためと考えられる。以上より、SFとWPUの混合比を変えることによる、両ポリマーの局所構造変化と圧縮弾性率の増加を確認した。発表では、分解試験や石灰化試験も踏まえて、骨再生用足場材料としての有用性について考察する。

【謝辞】本研究は一部、JST 共創の場形成支援プログラム(JPMJPF2104)、および東京農工大学融合研究支援制度『TAMAGO』により実施した。またWPUを供与して頂いた東ソー株式会社に謝意を表する。

【参考文献】[1] Tamada, *Biomacromolecules*, (2005)

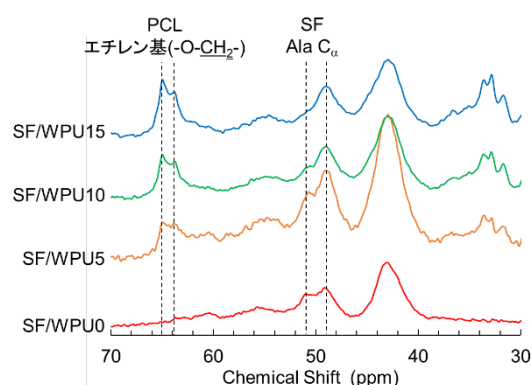


Fig. 1 各スポンジの固体 $^{13}\text{C}$  CP/MAS NMRスペクトル (30-70 ppm)

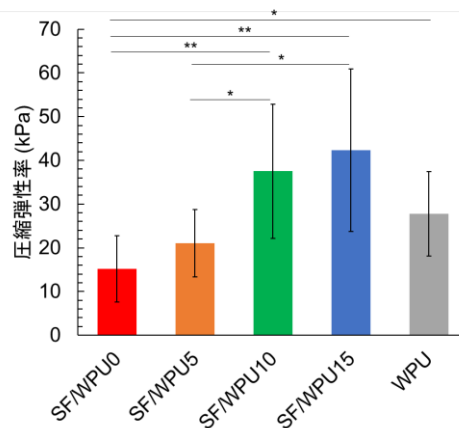


Fig. 2 各スポンジの圧縮弾性率 (n=6, \*: p<0.05, \*\*: p<0.01)

Fabrication of Silk Fibroin/Water Dispersible Polyurethane Composite Materials for Bone Regeneration, Yukino SHIOTANI, Shota AKIOKA, and Yasumoto NAKAZAWA\*: Graduate School of Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16 Naka-cho, Koganei, Tokyo 184-8588, Japan, Tel: +81-42-388-7612, \*E-mail: y-nakazawa@go.tuat.ac.jp