

論文内容の要旨

氏 名 仲宗根 一樹

近年、持続可能な資源としてのバイオマスの有効利用が求められている。本研究では、その一つであるサトウキビバガス廃棄物に注目し、セルロース原料としての利用と機能化を検討した。サトウキビバガスとはサトウキビの圧搾工程で排出される繊維質残渣であり、これを原料としたセルロースハイドロゲルへの再生とその医療材料への応用を目的とし、研究を行った。本論文は「Study on regenerated cellulose hydrogel films derived from waste sugarcane bagasse and evaluation of their biocompatibility (サトウキビ廃棄物由来の再生セルロースを用いたハイドロゲルフィルム の創成とその生体適合性評価に関する研究)」と題し、全 6 章で構成される。

第 1 章「General introduction」では、バイオマスの中でも特にバガスを含む農業系廃棄物バイオマスを解説し、バイオマス由来天然高分子とそれらから作製されたハイドロゲルの医療材料応用について、実際の研究例を挙げて述べた。

第 2 章「Effect of pre-treatment of sugarcane bagasse on the cellulose solution and application for the cellulose hydrogel films」では、バガス前処理により得られるセルロースがハイドロゲル物性にどのような影響を及ぼすか検討した。特に、酸・アルカリ、次亜塩素酸ナトリウムによる化学処理でヘミセルロースやリグニンを除去し、再生セルロースを得た後、これを塩化リチウム(LiCl)/N,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)に溶解し、相転換により透明で柔軟なセルロースハイドロゲルフィルムを作製する技術を確認した。この過程での化学処理を制御することで、リグニン含有量や分子量の異なるセルロースが得られることに着目し、特に疎水性のリグニンの含有量が親水性のハイドロゲル物性に影響し、その含水率は約 1000-2000% の範囲で変動することを見出した。加えて、ハイドロゲルの物理的構造にも影響し、リグニン含有率とセルロース分子量の減少で貯蔵弾性率 G' は 1.7×10^5 から 6×10^4 Pa に変化し、ゲル強度は低下した。

第 3 章「Cytocompatible cellulose hydrogels containing trace lignin」では、サトウキビバガス廃棄物由来セルロースハイドロゲル中に含まれる微量のリグニンとゲル物性、細胞親和性との関係を調べた。UV-Vis スペクトル測定から得られたリグニン含有量は、バガス処理条件に依存して 1.68–0.68% の範囲であった。リグニンを多く含むゲルは引張強度や貯蔵弾性率が高く、破断時の伸びも大きかった。また、比較的疎水性の高いリグニンはタンパク質を多く吸着し、これは細胞接着にも大きく影響した。特に、1.68% のリグニンを含むセルロースハイドロゲルでは、細胞培養ポリスチレン皿を上回る細胞密度が観測され、48–78 時間後には繊維芽細胞が層状に増殖した。このことから、ハイドロゲルに含まれる微量のリグニンは細胞毒性が小さいことが明らかになった。

第 4 章「Biocompatibility evaluation of cellulose hydrogel film regenerated from sugarcane bagasse waste and its *in vivo* behavior」では、サトウキビバガスから再生されたセルロースハイドロゲルについて、マウスを用いた *in vivo* 実験による生体適合性評価を行った。マウス腹部に留置されたゲルへの炎症反応などは観察されず、生体への影響は少ないと結論し

た。また、マウス体内でセルロース分子量が $5.7 \times 10^5 - 3.9 \times 10^5$ と僅かに減少したが、粘弾性測定からは弾性率の極端な低下などは見られず、約 4 週間の実験期間では生体内で安定であった。これらのより、サトウキビバガス廃棄物由来のセルロースハイドロゲルは良好な生体適合を持つことが初めて示された。

第 5 章「FT-IR analysis of sugarcane cellulose hydrogels in wet condition at different temperature and effect of lithium chloride concentration」では、FT-IR スペクトル測定により含水セルロースハイドロゲル中の水素結合について、温度を 30–60 °C と変えて調べた。また、セルロースを LiCl/DMAc 溶液に溶解するとき、LiCl を 4–8% と変化させ、その影響についても検討した。D₂O で膨潤したゲルでは、温度上昇に従い、セルロースの分子間と分子内水素結合が切断され、弱い水素結合が形成されることがわかった。波数分離解析により得た赤外吸収ピークの強度比を温度の逆数に対してプロットし、エンタルピー変化を求めた結果、LiCl 濃度が高いほどセルロースと水との相互作用が強く、これはゲル中のセルロースの凝集状態の違いによるものと考えられた。加えて、含水ハイドロゲルの粘弾性も温度依存性を示すことが明らかになった。

第 6 章では、本研究で得られた知見を総括し、サトウキビバガス廃棄物から作製したセルロースハイドロゲルの医療材料応用への可能性を示した。