

論文内容の要旨

博士論文題目: Post-modification of poly(trimethylene carbonate) derivatives with ester free type and their physical and biological properties

氏名 Tan Lee Yae

(論文内容の要旨)

超高齢社会を迎え、新しい医療材料の開発は急務である。分解する高分子材料は種類が限られており、治療に必要な機能や物性を有する新しい分解性高分子の開発は重要である。これまでに分解しても中性を保つ高分子骨格にエステル結合で様々な機能性置換基を導入したエステルフリー型のポリトリメチレンカーボネート(PTMC)誘導体が報告されてきた。Tan Lee Yae氏は、エステルフリー型のPTMC誘導体の設計に際して、高分子量体を合成した後に機能性置換基を導入するPost-modificationの手法に着目した。本論文では、一連の新しいエステルフリー型のPTMC誘導体の高分子材料の合成についての結果がまとめられている。

本学位論文はGeneral Introductionに加えて、第1章から第4章までの研究成果とConcluding Remarkから構成されている。

第1章では、二重結合を導入した新しいPTMC誘導体の架橋体を合成しており、架橋剤の量およびウレア基の導入によって、伸び率が約10%から約25%まで増加し、破断強度も約1MPaから約2.8MPaまで増加することを報告している。

第2章では、リニアポリマーによって基板上に薄膜化して表面の生体適合性を評価し、高分子の化学構造が細胞接着数に影響することを見出した。

第3章では、側鎖に光によって二量化するPTMC誘導体を合成した。高分子合成後に光ラジカル開始剤とともに光照射すると、分子量が3300から5900まで向上した。

第4章では、側鎖にウレア基を導入したPTMC誘導体について、シロスタゾールパクリタキセルなどの薬剤とともに薄膜を調製した。側鎖に導入したウレア基が放出速度を遅らせる効果があることを見出した。

Concluding Remarkでは、エステルフリー型のPTMC誘導体の新しい合成に際し、Post-modificationの手法を適用することで、様々な材料へ展開した成果をまとめている。

(論文審査結果の要旨)

超高齢社会を迎え、新しい医療材料の開発は急務である。分解する高分子材料は種類が限られており、治療に必要な機能や物性を有する新しい分解性高分子の開発は重要である。これまでに分解しても中性を保つ高分子骨格にエーテル結合で様々な機能性置換基を導入したエステルフリー型のポリトリメチレンカーボネート(PTMC)誘導体が報告されてきた。Tan Lee Yae氏は、エステルフリー型のPTMC誘導体の設計に際して、高分子量体を合成した後に機能性置換基を導入するPost-modificationの手法に着目した。本論文では、一連の新しいエステルフリー型のPTMC誘導体の高分子材料の合成についての結果がまとめられている。本論文で得られた主要な成果は以下のとおりである。

1. 側鎖に二重結合を導入した新しいPTMC誘導体の架橋体を合成し、チオール-エン反応によってウレア基を導入し、その力学強度を引張試験によって評価した。何も置換基の無い場合と比べると、架橋剤の割合およびウレア基の導入によって、伸び率が約10%から約25%まで増加し、破断強度も約1MPaから約2.8MPaまで増加した。

2. 有機溶媒に溶けるリニアポリマー型によってさまざまな基板上に薄膜化することができ、表面の生体適合性を評価したところ、高分子の化学構造が細胞接着数に影響することを見出した。

3. 側鎖に光によって二量化するシンナミル基を導入したPTMC誘導体を合成した。高分子合成後に光ラジカル開始剤とともに光照射すると、1mol/Lの濃度で側鎖にシクロブタン環が約60%生成し、分子量が3300から5900まで向上した。このことから高分子合成の後に反応性を有する新しいPTMC誘導体が調製できた。

4. 側鎖にウレア基を導入したPTMC誘導体について、ステントなどにコーティングする医用材料への応用を視野に入れて、シロスタゾールパクリタキセルなどの薬剤とともに薄膜を調製した。薄膜から薬物放出を観察したところ、側鎖に導入したウレア基が放出速度を遅らせる効果があることを見出した。

以上、本論文ではエステルフリー型のPTMC誘導体の新しい合成に際し、Post-modificationの手法を適用することで、様々な材料へ展開した成果をまとめている。学術的にも大きな意義があり、審査委員一同は本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。