

令和元年6月19日現在

機関番号：44523

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12686

研究課題名(和文)機能性をもつ「第二の皮膚」への化学的アプローチ

研究課題名(英文)Chemical approach to the functional "second skin"

研究代表者

澤渡 千枝 (SAWATARI, Chie)

武庫川女子大学短期大学部・生活造形学科・教授

研究者番号：70196319

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：「第二の皮膚」ともいわれる被服素材(繊維)に整肌効果をもたらすことを目的として、化学修飾の検討およびその効率化と、その整肌効果の検討をおこなった。検討した被服素材は、セルロース系、ポリエステル系、およびフッ素系素材である。化学修飾法は、ガンマ線照射を経る方法と経らない方法を検討し、素材に応じたより良い方法を見出した。低分子量キトサンで修飾されたセルロース系素材は皮膚常在菌に対して穏やかな抗菌性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新しい機能を持った衣料素材が次々と開発される一方で、その加工剤による皮膚障害が報告されたりする現在、肌に負担をかけない「肌に優しい」素材の開発が盛んである。本研究ではこの現状から一步踏み出して、積極的に肌の健康衛生状態の向上をもたらす衣料素材の開発を目指した。主として肌に触れる被服素材に対して、化学修飾法を検討し、一例として低分子量キトサン化素材を提案した。着用中に常時肌に触れることによってアトピー性皮膚炎などの皮膚障害を軽減する衣料の開発における知見として貢献したい。

研究成果の概要(英文)：Chemical modification and the efficiency were investigated for the purpose of bringing a skin adjustment effect to textile materials (fiber, cloth, seat) which are so-called "second skin". The checked textile materials are cellulose, polyesters and fluorocarbons. The chemical modification was performed by two courses of the method; a) via gamma-ray irradiation, b) whereas not to pass through gamma-ray irradiation, depending on sample and rigand materials. The cellulose materials modified with low molecular weight chitosan showed the mild antibacterial properties for skin normal bacterium.

研究分野：生活科学、繊維・高分子科学

キーワード：化学修飾 性 ガンマ線照射 セルロース ポリエステル ポリテトラフルオロエチレン キトサン 整肌

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

繊維が本来持たない機能を繊維加工によって付与する研究は、特許(工業化所有権)出願数や学術論文においても枚挙に暇がない。清潔さが好まれる現代では繊維の抗菌加工に関する研究や開発も盛んである。一方でこれらの加工剤自体による皮膚のかぶれやアレルギーの発症も稀に報告されている。

被服による接触皮膚炎は、加工剤などの化学物質による化学的刺激と、繊維側面の微細な凹凸や繊維末端による物理的刺激などの外的要因によることが多い。一般の健康な肌であれば影響を受けないような軽微な刺激であっても、敏感肌、アレルギー肌、アトピー性皮膚炎のほか、長期間の刺激によって爛れやかぶれを発症した肌には痛みや痒みを生じ、肌が被服と触れることによって辛さは増幅する。

このような皮膚トラブルを軽減するためには、肌の洗浄と整肌が基本である「肌にやさしい」ことを目指した繊維製品は多いが、積極的に肌の状態を整える効果(=整肌効果)を繊維素材自体に持たせた衣料素材はほとんどない。そこで、化学修飾による整肌効果の付与を考えた。

汎用繊維のポリエステルや、バイオマスプラスチックとして普及し始めているポリ乳酸は官能基を持たないために紡糸後の着色・染色・化学修飾が困難である。このため有用物質の混練が一般的におこなわれるが繊維物性の低下が問題である。また天然繊維では混練は行えない。各繊維材料としての物性を保ったまま、表面に化学修飾を施す事ができれば、機能性の付加が期待できる。化学修飾方法としては、研究者らが当時特許出願した手法(高分子材料とその製造方法(特願 2015-148235) 2015年7月)をさらに改良することで実現可能と考え本計画を進めた。

2. 研究の目的

「第二の皮膚」とも呼ばれる被服はヒトの肌に最も近い場所で肌を被覆し、肌に触れ続ける。この被服素材に整肌効果、すなわち肌に潤いを与え肌本来の健康な状態を整える効果をもたらすために、線照射を経た二段階の反応によって植物由来の天然整肌成分による化学修飾を試み、その構造評価および物性評価により、反応条件・反応物質の検討を経て目的の効果をもつ試料を得ること。さらに得られた試料を用いて健康肌における着用実験および医療機関でのトラブル肌における治療試験を実施して、その整肌効果等の機能性を評価・検証することによって衣料による医療のさきがけとし、今後に繋げることを当初の目的とした。

3. 研究の方法

試料は、肌着に用いられるセルロース系素材(綿、テンセル、レーヨン、キュブラ、バクテリアセルロース)を主に、ポリエステル系素材(ポリエチレンテレフタレート、ポリ乳酸)、および化学反応性が低いポリテトラフルオロエチレン(PTFE)および延伸PTFEシート(e-PTFE)を用いた。

化学修飾法は、当初から計画していた線照射を経る方法(試料と反応試薬と共存させた線照射によって二重結合を導入し、導入した二重結合を始点として官能基を導入し化学修飾を行う手法)と、新たに考案した化学修飾のみによる方法の2つの経路によっておこなった。それぞれ、反応試薬および反応条件を検討した。

化学修飾の反応過程および化学修飾前後の構造・物性変化は、重量測定、フーリエ変換赤外分光/全反射(FTIR/ATR)法、走査型電子顕微鏡(SEM)観察、ゼータ電位測定、接触角、引張試験等によっておこなった。

化学修飾前後の制菌性は、普通寒天培地上の皮膚常在菌に対する阻止帯(ハロー)の形成によって評価した。

4. 研究成果

(1) 線照射を経た化学修飾法

本計画は当初、研究者らがこれまで行ってきたガンマ線照射を経た化学修飾が2段階のスキームに分けて不連続的におこなう手法であることの非効率性を改良し、第一段の反応後に試料を大気に晒すことなく連続した手順で第二段の反応に進むシステムを完成することが主目的の一つであったが、検討を重ねた結果、実験室的には設備、試薬の使用量の面から却って非効率であると確定した。

これらを踏まえて、試薬に対して損傷を受けやすいバイオマスポリエステルであるポリ-L-乳酸において線照射時および照射後の化学修飾条件(試薬および反応温度と時間)を検討した結果、試料の損傷を最低限に留めつつ反応効率を向上させる方法として、低線量(5 kGy)のガンマ線照射後の化学修飾によってアミノ基やカルボキシ基の導入を確認した。アミノ末端導入した試料には酸性染料が、またカルボキシ末端を導入した試料には塩基性染料が吸着することを確認し、任意の整肌成分の導入も可能であると判断された。

バクテリアセルロース膜に対しても、同様の条件でリシン修飾をおこなった。この試料ではマウスの筋芽細胞(C2C12細胞)の吸着性が向上することが確認され、再生医療において細胞増殖に用いる足場材料としての利用の可能性が示唆された。

PTFEおよびe-PTFEについては、化学修飾による生体適合化を検討した。表面の疎水性の低減とアルブミンなどの吸着性が認められ、本来は化学的に安定なPTFEにおいても、表面特性の操

作が比較的容易であることを確認した。

綿、ポリエステルへのキトサン修飾では、導入量は少ないものの処理布に若干の制菌性が認められた。

(2) 線照射を経ない化学修飾法

主にセルロース系繊維素材(綿, テンセル, キュプラ, レーヨン)をエポキシ化した後, キトサンによる化学修飾を検討した。市販のキトサンは分子量が高く, 反応性に乏しいため, Hasegawa¹⁾らの方法によってりん酸により低分子化して用いた。化学修飾前後のキトサンの導入が確認でき, 処理試料の抗菌(制菌)性は皮膚常在菌のハロー(阻止帯)形成によって確認した。キトサンの導入効率にともなって制菌性は向上した。比較した素材間での導入効率には大差なかったが, 試薬による試料の損傷(物性低下)は処理前の結晶化度が低いものほど激しかった。皮膚上の効果については, 処理布の風合い(硬さなど)の劣化軽減が問題点として残された。

一方, 衣料素材の化学修飾や肌への影響に関して, 素材の凹凸や本来の疎水・親水性が及ぼす影響について, ゼータ電位の観点から検討した結果, 凹凸とゼータ電位の両方が関係することが解った。

参考文献

Makoto Hasegawa, Aki ra Isogai, Fumihiko Onabe, Carbohydrate Polymers, **20**, 279(1993)

5. 主な発表論文等

[学会発表](計8件)

日置理恵, 佐藤夏姫, 八木達彦, 澤渡千枝; セルロース系繊維のキトサンによる化学修飾, セルロース学会 第26回年次大会 P125, 2019.7.11.(福岡大学)

平田好輝, 竹本 由美子, 八木達彦, 澤渡千枝; ガンマ線照射を経た ePTFE の親水化, 繊維学会(年次大会) 1C02. 2018.6. 13.(タワーホール船堀)

平田好輝, 竹本由美子, 八木達彦, 澤渡千枝; ガンマ線照射を経た PTFE 表面の親水化, 東海支部第31回若手繊維研究会(日本繊維機械学会東海支部, 繊維学会東海支部, 日本繊維製品消費科学会東海支部 共催) 2017. 12. 2.(椋山女学園大学)

佐藤夏姫, 八木達彦, 澤渡千枝; 化学修飾による繊維への抗菌性の付与, 東海支部第31回若手繊維研究会(日本繊維機械学会東海支部, 繊維学会東海支部, 日本繊維製品消費科学会東海支部 共催) 2017. 12. 2.(椋山女学園大学)

Eri Ichikawa, Tatsuhiko Yagi, Chie Sawatari; Relationship between zeta potentials of fiber materials and their affinities to bacterial cellulose. *International Cellulose Conference 2017 (ICC2017)*, P-124, 2017. 10. 19 (九州大学)

Tatsuhiko Yagi, Takayuki Sano, Ryo Mitsui, Eri Ichikawa, Akira Yukita, Chie Sawatari; A scaffold material for cell culture prepared by modifications of bacterial cellulose. *International Cellulose Conference 2017 (ICC2017)*, P-173, 2017. 10. 18 (九州大学)

佐野隆之, 三ツ井 涼, 市川恵理, 雪田 聡, 八木達彦, 澤渡千枝; バクテリアセルロースのリシン修飾による細胞足場材料, セルロース学会 第24回年次大会 P011, 2017.7.13.(岐阜大学)

山梨夏美, 八木達彦, 澤渡千枝; 線照射を経た化学修飾によるポリ-L-乳酸繊維の染色性向上, 繊維学会(年次大会) 3D13, 2016.6.10.(タワーホール船堀)

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 該当なし

(2)研究協力者

研究協力者氏名: 八木 達彦

ローマ字氏名: (YAGI, tatsuhiko)

研究協力者氏名: 市川 恵理

ローマ字氏名: (ICHIKAWA, eri)

研究協力者氏名: 佐藤 夏姫

ローマ字氏名: (SATO, natsuki)

研究協力者氏名: 平田 好輝

ローマ字氏名：(HIRATA, koki)

研究協力者氏名：佐野 隆之

ローマ字氏名：(SAN0, takayuki)

研究協力者氏名：三ツ井 涼

ローマ字氏名：(MITSUI, ryo)

研究協力者氏名：雪田 聡

ローマ字氏名：(YUKITA, akira)

研究協力者氏名：竹本 由美子

ローマ字氏名：(TAKEMOTO, yumiko)

研究協力者氏名：日置 理恵

ローマ字氏名：(HIOKI, rie)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。