

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	有機・生体分子超薄膜の抗付着特性発現機構に関する表面・界面科学的研究
Title(English)	Study on mechanisms underlying fouling resistance of organic and biomolecular thin films: Approach based on surface and interface science
著者(和文)	関根泰斗
Author(English)	Taito Sekine
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10747号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:林 智広,原 正彦,北村 房男,北本 仁孝,柘植 丈治
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10747号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：	物質電子化学	専攻	申請学位(専攻分野)：	博士	(理学)
Department of			Academic Degree Requested	Doctor of	
学生氏名：	関根 泰斗		指導教員(主)：	林 智広	准教授
Student's Name			Academic Supervisor (main)		
			指導教員(副)：	原 正彦	教授
			Academic Supervisor (sub)		

要旨(和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本博士学位論文は全部で 7 つの章から構成されており、内容としては、有機・生体分子の自己組織化単分子膜(SAM)を対象として原子間力顕微鏡法(AFM)や表面分光法などの種々の表面・界面分析法により SAM の抗付着特性発現機構の解析に取り組んだ結果について議論したものである。

第 1 章「抗付着現象研究の意義とその歴史」では、抗付着現象研究の意義を説明した後、抗付着特性を説明するために今までに提案されてきたいくつかの仮説とその問題点を簡潔にまとめ、最後に抗付着現象を研究するためのモデル材料として SAM を用いる事の妥当性について論述した。

第 2 章「本研究にて用いた主な表面・界面の分析法」では、本博士論文研究を遂行する上で使用した主な表面・界面の分析手法に関して、その原理等を解説した。特に、AFM による表面間力測定の間では、代表的な表面間力に関する説明も行なった。

第 3 章「水/抗付着性単分子膜界面における水分子の振る舞いの観測：抗付着特性発現と界面水分子の振る舞いとの関係」では、抗付着性 SAM の一種である双性イオン型 SAM を対象として、水/双性イオン型 SAM 界面における水分子の振る舞いと抗付着特性発現との関係を調べた。AFM による表面間力測定の結果、双性イオン型 SAM 表面間では厚さ数 nm の界面水分子層の存在に起因する斥力が観測された。加えて動的光散乱法による SAM 被覆金ナノ粒子(AuNP)の流体力学的半径の測定結果から、界面水分子層は SAM 表面間での水分子の閉じ込めにより形成されるのではなく、界面における水分子と SAM との相互作用により形成される事が判明した。以上より、SAM 表面近傍に形成された界面水分子層がタンパク質・細胞の付着を防ぐ物理的障壁となる事が示された。

第 4 章「オリゴエチレングリコール末端単分子膜の集積密度依存的な抗付着特性発現機構における界面水分子の役割の解明：分子集積密度が界面水分子の振る舞いとタンパク質・細胞の付着挙動に及ぼす影響」では、抗付着性 SAM の一種であるオリゴエチレングリコール SAM(OEG SAM)を対象として、界面水分子の振る舞いの変化に着目して OEG SAM の分子集積密度依存的な抗付着特性発現機構の解明を試みた。AFM による表面間力測定と、表面増強赤外分光法による水/OEG SAM 界面における水分子の O-H 伸縮振動状態の測定結果から、分子集積密度の変化による界面での水分子と OEG SAM の相互作用の変化が、界面水分子の振る舞いに多大な影響を及ぼす事が判明した。加えて、分子集積密度依存的な抗付着特性の発現は、分子集積密度の変化に伴う界面水分子の振る舞いの変化が原因である事が示された。

第 5 章「双性イオン型ペプチド分子の吸着構造がペプチド単分子膜の抗付着特性に及ぼす影響の解明：表面における生体分子の構造と抗付着特性との関係」では、双性イオン型ペプチド分子の SAM(ペプチド SAM)を対象として、ペプチド分子の吸着構造とペプチド SAM の抗付着特性との関係について調べた。X 線光電子分光法と水晶振動子マイクロバランス法による分析の結果、金薄膜基板表面上におけるペプチド分子の吸着構造がペプチド SAM の抗付着特性に多大な影響を及ぼす事が判明した。加えて、ペプチド SAM 構築の際に用いる溶媒の塩濃度を調節する事によるペプチド分子の吸着構造制御にも成功した。

第 6 章「最表面塩基対の相補性と DNA 分子の単分子膜表面間に働く力との関係の解明：表面における生体分子の構造が表面間相互作用と微粒子の付着・凝集性に及ぼす影響」では、DNA 分子の SAM(DNA SAM)を対象として、DNA 担持 AuNP(DNA AuNP)の分散挙動を DNA SAM 表面間相互作用の違いに基づいて説明する事を試みた。AFM による表面間力測定の結果、DNA AuNP の付着・凝集は DNA SAM 表面間に働く疎水性引力により引き起こされる事、及び DNA SAM 最表層に存在する塩基対の相補性が DNA SAM 表面間相互作用に多大な影響を及ぼす事が判明した。

第 7 章「総括と今後の展望」では本研究で得られた知見の総括をすると共に、今後解決すべき課題についても論述した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：	物質電子化学	専攻
Department of		
学生氏名：	関根 泰斗	
Student's Name		

申請学位(専攻分野)：	博士	(理学)
Academic Degree Requested	Doctor of	
指導教員(主)：	林 智広	准教授
Academic Supervisor (main)		
指導教員(副)：	原 正彦	教授
Academic Supervisor (sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

In this Ph.D. thesis study, I investigated mechanisms underlying fouling resistance of self-assembled monolayers (SAMs) of organic and biomolecules by surface and interface analysis methods like atomic force microscopy and surface spectroscopy.

In case of SAMs of alkanethiol molecules, it was clarified that protein- and cell resistance of the SAMs was strongly affected by behavior of water molecules at interfaces of the water and SAMs. The interfacial behavior of water molecules was modulated by interaction of the water molecules with surface groups of the SAMs. In addition, the interaction was altered by molecular packing density of the alkanethiol molecules.

In case of SAMs of biomolecules, fouling resistance of the SAMs was affected by molecular structure and adsorption state of the biomolecules. It was found that protein resistance of SAMs of peptide molecules was determined by adsorption state of the peptide molecules on solid substrates. I also revealed that dispersion behavior of nanoparticles covered with SAMs of DNA molecules (DNA SAMs) was controlled by surface forces between the DNA SAMs. I also found that pairing status of outermost base pairs of the DNA SAMs altered hydration states of the DNA SAMs, and modulated the surface forces of the DNA SAMs.

The above results mean that microscopic characteristics of surfaces and interfaces (e.g. adsorption states of the surface molecules, behavior of water molecules at solid/liquid interfaces) govern macroscopic phenomena like protein adsorption, cell adhesion, and dispersion or aggregation of nanoparticles.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).