

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	酵素触媒重合による末端親水化セルロースオリゴマーの集合体形成と機能発現
Title(English)	
著者(和文)	野原崇稔
Author(English)	Takatoshi Nohara
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11475号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:芹澤 武,石曾根 隆,大塚 英幸,田中 浩士,小西 玄一
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11475号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	野原 崇稔	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	芹澤 武	教授	小西 玄一	准教授
	審査員	石曾根 隆	教授		
		大塚 英幸	教授		
田中 浩士		准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「酵素触媒重合による末端親水化セルロースオリゴマーの集合体形成と機能発現」と題し、全七章から構成され、日本語で書かれている。酵素触媒重合を利用したセルロースの人工合成に着目し、セルロースの構造や機能を制御するための設計指針を確立することを目的としている。多様な親水基をもつグルコース誘導体を重合の起点として利用することで、末端を親水化したセルロースオリゴマーを合成し、親水基の導入がセルロースの集合化に与える効果を評価することに加え、親水基を表面に提示したセルロース集合体を構築し、それらを材料応用する研究についてまとめられている。

第一章「序論」では、本論文の背景と目的について述べている。

第二章「オリゴエチレングリコール (OEG) を末端にもつセルロースの酵素合成とそれに基づく集合体形成」では、非イオン性の親水基であるオリゴエチレングリコール (OEG) をセルロースオリゴマーに導入し、集合化に与える OEG の効果を明らかにすることを目的としている。そのために、セロデキストリンホスホリラーゼ (CDP) を重合触媒とした酵素合成に OEG を導入したグルコース誘導体を適用している。グルコースを重合の起点とした場合はナノシートが沈殿物として生成されるのに対し、OEG をもつグルコース誘導体を重合の起点とした場合にはハイドロゲルが生成されることを見出している。各種構造解析により、ハイドロゲルはナノリボンからなるネットワークにより構成されており、OEG を末端にもつセルロースオリゴマーがナノリボンの膜厚方向に配列して集合化していることを明らかにしている。ナノリボン表面に露出した OEG がセルロース集合体を分散安定化することで、ハイドロゲルが生成される機構を提案している。さらに、OEG 鎖長の増大に伴い、ナノリボンの幅が細くなり、セルロース鎖末端に導入する OEG によりセルロースの結晶成長を制御できることを明らかにしている。

第三章「ポリエチレングリコール (PEG) を末端にもつセルロースの酵素合成とそれに基づく集合体形成」では、ポリエチレングリコール (PEG) の導入が CDP の基質認識やセルロースの集合体形成に与える効果を明らかにすることを目的としている。PEG を導入したグルコース誘導体を重合の起点とすることで、PEG を末端にもつセルロースオリゴマーが生成され、高分子鎖末端からもセルロースの重合反応が良好に進行することを明らかにしている。さらに、OEG を導入した場合と比較して極めて幅が細いナノリボンが形成されることを見出している。以上により、親水性高分子を導入したグルコース誘導体が CDP の基質として機能すること、また、セルロース鎖末端の親水基を高分子量化すると集合体形成に顕著に影響することを見出している。

第四章「アミノ基ならびにカルボキシ基を末端にもつセルロースの酵素合成とそれに基づく集合体形成」では、イオン性の親水基であるアミノ基ならびにカルボキシ基の導入が CDP の基質認識やセルロースの集合体形成に与える効果を明らかにすることを目的としている。アミノ基を導入したグルコース誘導体は CDP に認識されるのに対し、カルボキシ基を導入したグルコース誘導体は認識されないことを見出している。カルボキシ基を導入した場合には、CDP の基質認識部位に位置するカルボキシ基との静電反発により、基質の結合が阻害されることを提案している。アミノ基をもつグルコース誘導体によって生成されるセルロースオリゴマーはナノリボンへと集合化し、アミノ基を表面に露出したセルロースナノリボンを構築できることを見出している。

第五章「アミノ基をもつセルロースナノリボンに対するタンパク質の吸着特性」では、アミノ基をもつセルロースナノリボンに対するタンパク質の吸着特性を評価することで、バイオマテリアル素材としての利用可能性を明らかにすることを目的としている。負電荷をもつ酸性タンパク質はアミノ基をもつナノリボンに単層吸着するのに対し、正電荷をもつ塩基性タンパク質はほとんど吸着しないことを明らかにしている。したがって、静電相互作用を駆動力としてナノリボン表面にタンパク質を吸着固定できることを見出している。さらに、ナノリボン存在下で細胞培養しても顕著な細胞毒性を示さず、アミノ基をもつセルロースナノリボンのバイオマテリアル素材としての有用性を見出している。

第六章「アミノ基をもつセルロースナノリボンにおける金ナノ粒子のテンプレート合成」では、アミノ基をもつセルロースナノリボンを利用し、金ナノ粒子を調製するためのテンプレートとしての利用可能性を明らかにすることを目的としている。アニオン性の金イオンがナノリボン表面のアミノ基に対して高効率に吸着することを明らかにしている。さらに、ナノリボンに吸着した金イオンを還元することで、金ナノ粒子の制御合成に利用できることを見出している。また、ナノリボン表面に担持した金ナノ粒子は高い触媒能を示すことを明らかにし、触媒ナノ粒子の担体としてセルロース集合体が効果的に機能することを見出している。

第七章「結論および今後の展望」では、本論文の結論と今後の展望について述べている。

これを要するに、本論文は酵素触媒重合によるセルロースの人工合成により、セルロースの集合構造を制御し、機能化するための設計指針を明らかにしている。セルロースオリゴマーからなる集合体の機能性ナノ材料としての有用性を明らかにしており、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(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。