

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Design and Synthesis of Thermo-responsive/Photo-reactive Polymers and Their Applications
著者(和文)	PARKSo Jung
Author(English)	So Jung Park
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12110号, 授与年月日:2021年9月24日, 学位の種別:課程博士, 審査員:小畠 英理,金原 数,丸山 厚,堤 浩,三重 正和
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12110号, Conferred date:2021/9/24, 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

(博士課程)

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		So Jung Park	
論文審査 審 査 員		氏 名	職 名		氏 名	職 名	
	主査	小畠 英理	教 授	審査員	三重 正和	准教授	
	審査員	金原 数	教 授				
		丸山 厚	教 授				
		堤 浩	准教授				

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Design and Synthesis of Thermo-responsive/Photo-reactive Polymers and Their Applications」と題し、英語で書かれ、四章より構成されている。

第一章「General introduction」では、まず本論文の主題となる刺激応答性高分子について概説した後、特に温度応答性と光反応性材料に関する原理と機能に関して解説している。温度応答性材料については、温度応答性高分子の温度にตอบสนองした機能の変化に関する原理を説明した後、温度応答性高分子の種類、さらにそれらを利用した温度応答性ゲルの機能と応用について解説している。特に、生体埋め込み型の温度応答性ゲルの設計論、機能および問題点を明らかにして、本研究で合成する材料の意義を説明している。また、光反応性材料に関しては、光刺激の特徴を示した後、光反応高分子の一般的な例について概説し、その後、光反応を利用した非特異吸着抑制に関するこれまでの研究を概説し、本研究で設計する分子の目的を明らかにしている。

第二章「Thermally induced switch for in-situ gelation using morphological change of thermo-responsive polymer」では、温度応答性高分子とスクシンイミド基を導入した高分子を外殻にもつヘテロアーム型のナノ粒子を利用して、温度変化による温度応答性高分子の構造変化により粒子外殻に導入したスクシンイミド基と外界の 1 級アミンを導入した粒子間のカップリング反応の制御方法について述べている。合成した温度応答性粒子は、体温以下の温度では、アミンを修飾した粒子との相互作用が抑制されるのに対し、体温以上の温度に加熱すると温度応答性高分子が収縮後、アミン分子と反応を開始し、粒子間の凝集が形成されることを、動的光散乱法および透過型電子顕微鏡測定で確認している。また、この反応が不可逆性であることを確認しており、この結果より、温度応答性高分子の温度による構造変化に伴う排除体積の変化を利用して、粒子表面に導入したスクシンイミド基のアミドカップリング反応の制御機構を説明している。また、この粒子に導入する温度応答性高分子とスクシンイミド基を導入した高分子の比率および粒子の濃度を最適化することで、温度変化により溶液のゾル-ゲル変化を生じさせることができることを明らかにしている。またレオロジー測定より、粒子溶液のゾル-ゲル転移挙動は温度応答性高分子の相転移温度を境とする温度変化に鋭敏にตอบสนองしていることから、温度変化により生体内でゲル化させることができるゲル化剤として生体塞栓剤としての医用応用への可能性を記述している。

第三章「Photo-reactive polymers: PEG-based azide polymers for surface modification」では、光反応性官能基であるアジドフェニル基を結合したポリエチレングリコールの合成法とこのポリマーを被覆した表面の機能評価について論じられている。まずアジドフェニル基を結合したエチレンオキシドモノマーを合成し、エチレンオキサイドと共重合することでアジドフェニル基修飾量の異なるポリマーを作製している。このポリマーを UV 照射により様々な材料の表面に安定に被覆できることを示し、タンパク質の吸着が抑制できていることを観測している。また、細胞接着性材料へのポリマー被覆量を最適化することで細胞接着性も制御できることを示している。このアジドフェニルポリエチレングリコールは、従来のラジカル重合型のアジドフェニル基と比較すると親水性が飛躍的に向上しており、より多くのアジドフェニル基を可溶化できる。この高い水溶性は、高分子主鎖を従来のアルキル型からエチレングリコール型に変更したことで高分子の親水性が上昇したことによるものと考察している。

第四章「Conclusions and future perspective」では第二章、第三章で得られた結果を総括すると共に、今後の展望について述べている。温度応答性材料に関しては、設計した材料の改良により、ドラッグデリバリーシステムへの応用や化学反応が制御できる埋め込み型材料としての応用展開の指針を示している。また、光応答性材料に関しては、簡便に利用できる生体分子吸着抑制材料としての応用に関して述べており、高いシグナル・ノイズ比が得られるマイクロアレイシステムなどの応用への可能性について述べている。

以上を要するに、本論文は温度応答性高分子の構造変化で分子間反応を制御する新しい技術の開発に成功しており、また、光応答性材料に関しても既存のものと比較して極めて優れた特性をもつ分子の合成を報告したものであり、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に価値があるものと認められる。