

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	INTERACTIONS BETWEEN INORGANIC SOLID SURFACES AND AMINO ACID MOLECULES STUDIED BY ATOMIC FORCE MICROSCOPY
著者(和文)	GanbaatarNarangerel
Author(English)	Narangerel Ganbaatar
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10516号, 授与年月日:2017年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:原 正彦,林 智広,藤井 正明,野村 淳子,松下 伸広
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10516号, Conferred date:2017/3/26, 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

(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	Ganbaatar Narangerel	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	原 正彦	教授	松下伸広	准教授
	審査員	林 智広	准教授		
		藤井正明	教授		
野村淳子		准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Interactions between Inorganic Solid Surfaces and Amino Acid Molecules Studied by Atomic Force Microscopy」と題し、英語で書かれ、6章から構成されている。

第1章「Introduction」では、アミノ酸分子と鉱物表面の相互作用を原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy: AFM) を用いて詳細に検討する動機、また化学進化に関する分野の背景と先行研究がまとめられた。鉱物表面は、アミノ酸分子などが吸着凝集し、二量体化から重合化、さらには複雑な生体分子構造へと進む化学進化の過程において、重要な反応場として機能したであろうと注目されている。

第2章「Atomic Force Microscopy」では、本研究の中心となる手法である AFM の原理や本研究に用いた AFM 探針の表面修飾方法などの概要がまとめられた。特に本研究では、ピコニュートン (pN) レベルの相互作用力測定を実施した。その測定より、分子が鉱物表面に接触してから離れて行く過程で見られる吸着力や分子の延伸長などについて、単一分子レベルで議論が可能となる。そのような単一分子かつ pN レベルの測定を実現するために、アミノ酸分子をその動きの自由度を損なうことなく AFM 探針の先端に固定化する必要があり、アミノ酸分子と AFM 探針の間をつなぐリンカー分子の設計とその固定反応の検討を説明した。

第3章「Surface Force Analysis of Amino Acid Adsorption on Pyrite (FeS₂)」では、鉱物の中でも初期地球に豊富に存在し、かつ化学進化の議論における Iron-Sulfur World 説の中で注目される黄鉄鉱(FeS₂)に着目し、各種アミノ酸分子との相互作用の議論を行った。ラマン分光イメージングを用いて、黄鉄鉱から硫黄が脱離した欠陥部分(FeS_{2-x})と欠陥のない部分(FeS₂)の分布を可視化し、それぞれの表面上でアミノ酸分子 (例えばグリシン) の相互作用を観察したところ、特に欠陥部分において吸着力が確認され、硫黄の欠損部とアミノ酸分子の相互作用とカルボキシル基や側鎖が有する吸着能について議論した。またグリシンについては、欠陥部分と欠陥のない部分の両方ともに吸着力が確認されず、吸着力が確認された分子種との違いについて、昇温脱離分光法 (Thermal Desorption Spectroscopy: TDS) や X線光電子分光法 (X-ray Photoelectron Spectroscopy: XPS) などの分光測定結果と比較して、化学吸着と物理吸着の観点から議論を行った。

第4章「Surface Force Analysis of Amino Acid Adsorption on Hematite (Fe₂O₃)」では、黄鉄鉱(FeS₂)が高温下でヘマタイト(Fe₂O₃)に転移する様子をラマン分光などを用いて観察し、その転移後のヘマタイト上におけるアミノ酸分子との相互作用力の検討を行った。黄鉄鉱上で相互作用力が観察されなかったグリシンについて、低い確率ながら吸着状態の存在が観察されたが、一方で吸着する確率の pH 依存を示唆する結果も得られ、ヘマタイト上における分子の電荷分布と吸着能についての議論を行った。

第5章「Surface Force Analysis of Glycine Adsorption on Different Crystal Surfaces of Titanium Dioxide (TiO₂)」では、酸化チタン(TiO₂)の異なる結晶面 ((110),(100),(001)) について、アミノ酸分子の相互作用力の違いを検討した。特に(110)面では他の面に比べて強い相互作用力が観察され、またその分子延伸に伴う、鉱物表面からの距離と相互作用力の関係を示すフォースカーブに(110)面特有の変化が確認された。それはアミノ酸分子を固定するリンカー分子が(110)面上で一定の吸着力を保ち、鉱物表面から引き離されて行く様子を暗示している。また(110)面上における複数の分子の吸着結合状態の可能性を検討し、AFM と TDS から得られた結合エネルギーの差異を議論した。

第6章「Summary」では、本論文の成果がまとめられた。

これを要するに、本論文は、アミノ酸分子が複雑な生体分子構造形成へと進む化学進化の最初期において、反応場として機能したであろう黄鉄鉱(FeS₂)や酸化チタン(TiO₂)の表面との相互作用を明らかにし、その特異的な吸着が、隣接した吸着分子との反応性に影響を与えたことを示す結果が得られた。また、化学進化における Iron-Sulfur World 説に対して初めてナノスケールでかつ表面化学的に詳細な議論を行った研究論文である。これらの成果は、生命の起源の研究につながる新たな基礎科学的実験の先駆的業績であり、さらに、自然界における分子の化学進化における最初期過程の議論を試みたものであり、科学的かつ工学的に大きな意義を持つ。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して認められる。

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。