

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	分子間相互作用の変調に基づく結晶性セルロース集合体の構造制御と機能材料への展開
Title(English)	
著者(和文)	家高佑輔
Author(English)	Yuusuke Yataka
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10772号, 授与年月日:2018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,高田 十志和,早川 晃鏡
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10772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)	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		家高 佑輔	
論文審査 審査員		氏 名		職 名		氏 名	職 名
	主査	芹澤 武		教授	審査員	早川 晃鏡	教授
	審査員	高田 十志和		教授			
		石曾根 隆		教授			
		大塚 英幸		教授			

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「分子間相互作用の変調に基づく結晶性セルロース集合体の構造制御と機能材料への展開」と題し、全 6 章から構成されており、日本語で書かれている。分子間相互作用の変調に基づき結晶性セルロース集合体の構造を制御し、新たな機能材料に展開することを目的としている。酵素反応に基づくセルロースの化学合成に着目し、 α -グルコース 1-リン酸をモノマーに、置換基や反応性基が導入されたグルコース誘導体をプライマー（反応の起点）に適用したセロデキストリンホスホリラーゼ (CDP) の酵素反応を用いることで、セルロース集合体の構造制御とその機能創製に関する研究についてまとめられている。

第 1 章「序論」では、本論文の背景と目的について述べている。

第 2 章「アルキル β -セルロシドからなるナノ集合体の酵素合成と構造制御」では、分子間相互作用の変調による結晶性セルロース集合体の構造制御を目的としている。CDP による酵素合成のプライマーとして、鎖長の異なるアルキル基がアノマー位に導入されたグルコース誘導体を適用することで、アルキル基が導入されたセルロース誘導体を合成している。エチルおよびブチル基の場合は逆平行にパッキングした II 型結晶を、ヘキシルおよびオクチル基の場合は平行にパッキングした I 型結晶をそれぞれ形成し、分子のパッキング様式をアルキル鎖長によって制御できることを示している。さらにエチルおよびブチル基の場合は単層構造からなる伸長したナノリボンが形成することを、さらにヘキシルおよびオクチル基の場合、二分子膜構造からなるキラルなナノロッドあるいは不規則なナノシートをそれぞれ形成することを見出している。以上から、アルキル基により分子間相互作用を変調することで、異なるスケールでセルロース集合体の構造を制御できることを明らかにしている。

第 3 章「アジド β -セルロシドからなる反応性ナノシートの酵素合成とポスト機能化」では、ポスト機能化可能な反応性のセルロース系ナノシートの創製を目的としている。CDP による酵素合成のプライマーとして β -グルコシルアジドを適用することで、アジド基が表面に導入された反応性ナノシートを合成している。さらに、モデル分子として 1-エチニルビレンをクリック反応に適用することで、ナノシート表面にビレン環を導入している。得られたビレン修飾反応性ナノシートは、ナノシートの集合特性に応じて 1-エチニルビレン単体では示さない光学特性を示すことを見出している。以上から、反応性基をもつプライマーを利用したセルロース系ナノシートの酵素合成と引き続きポスト機能化により、セルロースからなる機能性二次元ナノマテリアルを創製できることを明らかにしている。

第 4 章「アジドエチル β -セルロシドからなる反応性ハイドロゲルの酵素合成とポスト機能化」では、ポスト機能化可能な反応性のセルロース系ハイドロゲルの創製を目的としている。CDP による酵素合成のプライマーとして 2-アジドエチル β -D-グルコピラノシドを適用することで、アジド基が導入された反応性ハイドロゲルを合成している。モデル分子として 1-エチニルビレンを用い、クリック反応により反応性ハイドロゲルにビレン環を導入できることを見出している。以上から、反応性基をもつプライマーを利用したセルロース系ハイドロゲルの酵素合成と引き続きポスト機能化により、セルロースからなる機能性ハイドロゲルを創製できることを明らかにしている。

第 5 章「気-液界面におけるオクチル β -セルロシドからなる単分子膜とその機能」では、オクチル β -セルロシドの気-液界面における集合挙動を明らかにすることを目的としている。オクチル β -セルロシドが経時的に水面に自己集合し、結晶性単分子膜を自発的に形成することを明らかにしている。オクチル β -セルロシドの単分子膜で覆われた水滴を収縮させることで、水滴がたわむバックリング現象が起きることを見出している。さらに、この水滴の疎水性基板への吸着や、三次元形状の制御、水滴同士の接触による二分子膜の形成を、それぞれ評価している。以上から、オクチル β -セルロシドは水面で自発的に単分子膜を形成する特性を有し、この単分子膜が高い力学的強度をもつことを明らかにしている。

第 6 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 CDP の酵素反応を利用したセルロースの化学合成において、適切な置換基や官能基を利用した分子間相互作用の変調や機能性基の導入によって、自由自在に物性や機能を制御できるセルロース系マテリアルの創製につながる反応系の構築を明らかにしたものであり、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。