

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	高分子クラウディングによる結晶性セルロースオリゴマーの自己集合化制御と機能性材料への展開
Title(English)	
著者(和文)	秦裕樹
Author(English)	Yuuki Hata
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11155号, 授与年月日:2019年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:芹澤 武,石曾根 隆,中嶋 健,宍戸 厚,古屋 秀峰
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11155号, Conferred date:2019/3/26, 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	秦 裕樹		
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	古屋 秀峰	准教授
	審査員	石曾根 隆	教授			
		中嶋 健	教授			
穴戸 厚		教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「高分子クラウディングによる結晶性セルロースオリゴマーの自己集合化制御と機能性材料への展開」と題し、全六章から構成されており、日本語で書かれている。細胞内環境に代表される高分子クラウディングに着想を得ることで、結晶性セルロースオリゴマーの自己集合化を制御すること、ならびに得られる分子集合体を機能性材料へと展開することを目的としている。結晶性セルロースオリゴマーからなる新たな分子集合材料の創製とそれらの機能に加え、材料創製における高分子クラウディングの利用可能性に関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「高分子クラウディング環境下でのセルロースオリゴマーのナノリボンゲルへの集合化」では、高分子クラウディングによりセルロースオリゴマーの自己集合化を制御することを目的としている。セロデキストリンホスホリラーゼ (CDP) によりセルロースオリゴマーを酵素合成すると通常は沈澱するが、クラウディング剤と呼ばれる水溶性高分子の高濃度溶液中では、ハイドロゲルが生成されることを発見している。各種構造解析により、そのゲルはナノリボン状結晶が物理架橋したネットワーク構造からなることを明らかにしている。クラウディング効果として知られる拡散速度の低下や枯渇斥力により生成物の凝集が抑制されることで、沈澱することなくナノリボンゲルへと自己集合化するという機構を提唱している。以上から、高分子クラウディングによりセルロースオリゴマーの自己集合化を制御でき、結果として規則的なナノ構造をもつハイドロゲルを構築できることを見出している。

第三章「ナノ材料分散液のクラウディング環境としての利用と複合ゲル形成」では、ナノ材料分散液のクラウディング環境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。セルロースナノ結晶 (CNC) や酸化グラフェン (GO) といったナノ材料の水分散液中で CDP によりセルロースオリゴマーを酵素合成することで、ナノリボンゲルが形成することを明らかにしている。さらに、結果として、CNC や GO が内部に拘束されることで複合ゲルとなっており、とりわけ CNC の場合はゲルの強化フィラーとしても機能することを明らかにしている。以上から、ナノ材料の分散液が分子集合化を制御するためのクラウディング環境としてはたつき、結果として複合材料を構築できることを見出している。

第四章「自己クラウディングによるナノリボンゲル形成」では、自己クラウディングを利用することで、クラウディング剤を添加することなくセルロースオリゴマーの自己集合化を制御することを目的としている。CDP によるセルロースオリゴマーの合成温度を一般的な 60 °C から 30 °C に低下させることで、ナノリボンゲルが形成することを発見している。60 °C と比較して 30 °C では疎水性効果が弱まるために、生成される集合体の分散性がある程度向上して自己クラウディング状態となり、結果としてさらに互いに分散安定化することでナノリボンゲルを形成するという機構を提唱している。以上から、自己クラウディング状態を誘起することで、クラウディング剤を添加することなく分子集合化を制御できることを見出している。

第五章「ナノ材料を内部に拘束したナノリボンゲルの機能性材料への展開」では、ナノ材料を内部に拘束したナノリボンゲルの材料応用を目的としている。一つ目に、CNC を拘束したナノリボンネットワークの空隙に樹脂を充填することで、表面が親水的な CNC をよく分散した状態で疎水性樹脂と複合化でき、結果として CNC を強化フィラーとしたナノコンポジットを構築できることを明らかにしている。二つ目に、ナノリボンゲルに拘束された GO を化学還元すると、過度な凝集が抑制されながらも互いに物理架橋することで多孔性の導電性ゲルを形成することを明らかにし、さらにそれを電気二重層キャパシタに応用している。三つ目に、ナノリボンゲルに拘束された部分還元型 GO への、センサーデオキシリボ核酸 (DNA) の吸着を利用することで、タンパク質複雑下においてターゲット DNA をセンシングできることを明らかにしている。以上から、結晶性セルロースオリゴマーからなるナノリボンネットワークがナノ材料を効果的に機能発現させるための拘束空間として有用であることを見出している。

第六章「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、本論文は材料創製における高分子クラウディングの新たな有用性を見出し、さらにセルロースオリゴマー集合体の機能性材料としての潜在性を明らかにしていることから、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。