

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	グラフェン電気化学界面におけるペプチド2次元結晶を介した信号伝達機構の解明
Title(English)	Signal Transduction Mechanism via Peptide 2D Crystals at the Graphene Electrochemical Interface
著者(和文)	本間千柊
Author(English)	Chisyu Honma
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12721号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:早水 裕平,松本 英俊,大内 幸雄,道信 剛志,VACHA MARTIN,大河内 美奈
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12721号, Conferred date:2024/3/26, 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	本間 千柊	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	早水 裕平	准教授	バッハ マーティン	教授
	審査員	松本 英俊	教授	大河内 美奈	教授
		大内 幸雄	教授		
		道信 剛志	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「グラフェン電気化学界面におけるペプチド 2 次元結晶を介した信号伝達機構の解明」と題し、日本語で書かれており、以下の 4 章から構成されている。

第 1 章「序論」では、本研究の背景を概観し、研究の意義と目的について述べている。

第 2 章「電気化学的界面における自己組織化ペプチドとグラフェンの電子的相互作用の理論的解明」では、界面の分子結晶構造とその機能を単一分子レベルで理解することを目的とし、電界効果トランジスタ (GFET) 型のバイオセンサの表面修飾分子としての自己組織化ペプチドとグラフェン間の電子的な相互作用について、原子間力顕微鏡観察、伝導測定、計算科学を組み合わせることで、界面現象の信号伝達機構を明らかにしている。GFET バイオセンサは、表面プラズモン共鳴や水晶マイクロバランスといった従来のバイオセンシング・プラットフォームと比較して高い感度を示すことが知られているが、任意の標的分子に対する選択性を同時に達成することは依然として困難であり、これらのバイオセンサにバイオプローブを固定化することは、界面を機能化し、特定の標的分子を選択的に検出するために不可欠な要素である。本論文では、ペプチドを使用して、これらのバイオプローブを固定化する手法を採用している。使用したペプチドは、グラフェンの結晶構造を認識し、自発的に結晶性を有する均一な単層厚膜を形成することを見出している。このペプチドの電気化学界面における役割を分子レベルで明らかにするため、以下の 4 つの項目について検証を行っている。まず、超解像表面観察技術を利用して単一分子スケールでペプチドの構造を観察している。次に、得られた構造情報を基に分子動力学計算を実行し、分子間の相互作用や配向などの時間平均情報を取得している。その後、GFET を用いてペプチド吸着に伴うグラフェンの電気伝導特性への影響を調査している。最後に、古典的な電気化学モデルを用いて実測データの再現を行い、センサ機能を決定づける電気化学パラメータの理解を深化させている。これらの技術を組み合わせることで、構造と機能の相関を明らかにし、信号伝達機構の理解をすすめる。ペプチドの自己組織化構造を単一分子レベルで液中観察することに成功している。さらに、その構造をもとに分子動力学計算を実行した結果、電荷を持つ官能基の配向とペプチド膜の電荷応答に相関があることを明らかにしている。

第 3 章「自己組織化ペプチドを用いた分子認識界面の設計及びトランジスタ型グラフェンバイオセンサによる機能実証」では、第 2 章のペプチドの配列をもとに分子足場を設計し、バイオプローブを用いたバイオセンサとしての機能の検証を行っている。まず、設計したペプチドの分子足場が自己組織化して形成する均一で安定した分子膜の観察を行い、その構造の確認している。その後、ペプチド結晶構造の形成に伴うグラフェンの電気特性の変化を計測し、センサとしての機能が十分に担保されているかを確認している。結果として、設計したペプチド膜を修飾した GFET バイオセンサは標的分子に対して pM オーダーの高い感度を有することが明らかにしている。また、匂い分子の吸着・脱離に伴う電気伝導度のダイナミクスを 3 種類の匂い分子で計測し、その信号形状を表す量を入力パラメータとした主成分分析を行っている。その結果、バイオプローブのアミノ酸配列を変えることで、種々の匂い分子に対する識別能を制御可能であることを明らかにしている。

第 4 章「総括」では、本論文を総括すると共に、今後の展望を述べている。

これを要するに、本論文では、グラフェン・バイオセンサにおける生体分子とグラフェンの界面における信号変換機構に関する知見を広げ、バイオセンシングや電気化学の幅広い応用へと繋がる実験結果を示しており、工学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。

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。