

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	フェニルアラニンとグルタミン酸からなるテトラペプチドの結晶構造と分子間相互作用
Title(English)	
著者(和文)	茂田井和紀
Author(English)	Kazunori Motai
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12723号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種類:課程博士, 審査員:早水 裕平,松本 英俊,石川 謙,森川 淳子,VACHA MARTIN,河野 正規
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12723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	茂田井 和紀	
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	河野正規	教授
		石川 謙	准教授		
		森川淳子	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「フェニルアラニンとグルタミン酸からなるテトラペプチドの結晶構造と分子間相互作用」と題し、日本語で書かれており、以下の5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「テトラペプチドの自己組織化と水素結合」では、フェニルアラニンとグルタミン酸からなるテトラペプチド FEFE の結晶構造における分子間相互作用を調査することを目的とし、その結晶化方法およびそれを用いた詳細な結晶構造解析と、ラマン分光法の実験結果について述べている。ペプチドのアミノ酸配列は、フェニルアラニンの持つ芳香環の π - π 相互作用による高い結晶性と、側鎖のグルタミン酸が持つカルボキシ基の水素結合ドナーアクセプター性の相互作用によって水素結合ネットワークが形成されることを期待して設計されている。フェニルアラニンとグルタミン酸を含むテトラペプチドを合成し、蒸気拡散法による結晶化を行っている。得られたサンプルを単結晶 X 線構造解析による分析から FEFE テトラペプチド結晶は P212121 の群に属する結晶構造を有し、21 らせん軸を a、b、c 軸の方向に持つ対称性を有することを明らかにしている。次に、顕微ラマン分光法を用いて角度分解ラマン測定を行っている。角度分解ラマンにおける振動モードの周波数と第一原理計算の結果をもとに各モードの帰属を行っている。X 線構造解析とラマン分光の結果を組み合わせ、水素結合距離と伸縮振動モードの周波数の相関を検討したところペプチド間に形成された分岐した水素結合によって特異な水素結合間距離と振動周波数の相関を見せていることを観測している。この挙動の起源を調べるためにフラグメント分子軌道法 (FMO) 計算を行い、主鎖の β シート構造の他に側鎖の分岐した水素結合の影響を理論的に理解することに成功している。以上から、FEFE ペプチド結晶では分岐した水素結合が各ペプチドのアミド結合部分で形成されることによって、アミド結合に帰属されるラマン振動モードが特異な周波数を示すことに寄与していると結論付けている。

第3章「3 種類のテトラペプチドの自己組織化と水素結合特性の評価」では、テトラペプチドの FEFE に加えて、そのアミノ酸配列の異なる組み合わせ配列を作製することで、それぞれの結晶成長機構と形成されるペプチド結晶内の水素結合ネットワークについて、X 線構造解析と角度分解ラマン分光法を用いて調査している。第2章で詳細に分析した FEFE ペプチド結晶と同様に結晶成長を行ったところ FEFE および FFEE ペプチドの結晶化に成功している。それぞれのペプチド結晶は、異なる点群を有し、さらに結晶構造によって固有の異方的な水素結合ネットワークを形成していることを明らかにしている。また分子間相互作用は水素結合だけでなく、グルタミン酸側鎖間のファンデルワールス相互作用など他の分子間相互作用も無視できないことが示唆されている。

第4章「バイオエレクトロニクス」では、上記の FEFE テトラペプチドにヨウ素を添加することによって、テトラペプチド結晶に電気伝導性を付与する実験について述べている。結晶化したテトラペプチドをヨウ素の飽和蒸気圧ガスに曝すことによって、ペプチド結晶中にヨウ素を添加する手法を開発している。この方法でヨウ素添加したペプチド結晶のラマン分光および赤外分光測定を行うことで、添加したヨウ素がペプチドとどのように相互作用しているかを調査している。また、ヨウ素添加ペプチド結晶において電気伝導特性を測定し、わずかながら電気伝導度が向上することを観測している。吸収スペクトルの光学異方性からは、これらの添加されたヨウ素は FEFE ペプチド結晶の一次元的な結晶構造のポイド部分に局在していることが示唆されることが示されている。

第5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、ペプチド結晶における生体分子間相互作用に関する知見を広げ、生体材料を用いた機能性材料開発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。