

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	植物細胞壁の生合成に着想を得た多糖系複合ハイドロゲルの構築
Title(English)	
著者(和文)	桜井勇太
Author(English)	Yuta Sakurai
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第316号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:芹澤 武,中嶋 健,大河内 美奈,古屋 秀峰,澤田 敏樹
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第316号, Conferred date:2025/3/26, 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	桜井 勇太	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	芹澤 武	教授	澤田 敏樹	准教授
	審査員	中嶋 健	教授		
		大河内 美奈	教授		
	古屋 秀峰	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「植物細胞壁の生合成に着想を得た多糖系複合ハイドロゲルの構築」と題し、合成酵素から産生されるセルロースと周囲に存在する多糖が相互作用してその場で複合体を形成する、植物細胞壁の生合成に着想を得て、セルロースとの強い相互作用が期待される分子の存在下においてセロオリゴ糖を自己集合化させ、新たな構造や機能をもつセロオリゴ糖集合体を構築することを目的としている。主な成果として、セロデキストリンホスホリラーゼ (CDP) によるセロオリゴ糖の人工的な酵素合成系が、細胞壁の生合成時と同様にセルロースの化学合成とそれに続く集合体の形成が起こる反応系であることに着目し、本酵素合成系により堅牢な多糖系複合ハイドロゲルを一段階で簡便に創製する研究についてまとめられている。全五章から構成され、日本語で書かれている。

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「植物細胞壁の生合成に着想を得たセロオリゴ糖からなる複合ハイドロゲルの創製」では、種々の多糖類の存在下でセロオリゴ糖を酵素合成し、セロオリゴ糖と多糖類との相互作用に基づき堅牢な複合ハイドロゲルを創製することを目的としている。そのために、CDP を重合触媒とした酵素合成系に水溶性の多糖類を添加している。セロオリゴ糖と強く相互作用しうる多糖類 (ヘミセルロース、ペクチン、およびセルロース誘導体) 存在下で酵素合成することで、複合ハイドロゲルを構築している。中でも、カルボキシメチルセルロースナトリウム (CMC) 存在下で調製されたハイドロゲルは均一性の高い集合構造をもち、その均一性は CMC 濃度増大に伴って高くなることを明らかにしている。セロオリゴ糖と CMC との共集合により形成される複合体にはアニオン性のカルボキシラートが多く存在し、静電反発により凝集が抑制され均一性の高い集合構造が形成される機構を提案している。当該複合ハイドロゲルのヤング率は CMC 濃度増大とともに高くなり、固形分率が 1-2% 程度のハイドロゲルの中でも高い弾性をもつゲルが得られることを見出している。以上より、植物細胞壁の生合成に着想を得て、セルロースと多糖類との相互作用を利用することで、新たな手法で堅牢なセルロース集合体を人工的に構築できる可能性を見出している。均一かつ緻密なネットワーク構造による効率的な応力分散や、セロオリゴ糖集合体の高い結晶性に起因するナノ繊維の剛直性の高さなどにより、剛性の高いゲルを形成することが示唆されている。

第三章「中和誘起自己集合化による多糖系複合ハイドロゲルの創製」では、多糖系複合ハイドロゲルの汎用的な構築手法の開拓を目指し、あらかじめ酵素合成されたセロオリゴ糖を多糖と共集合化させる自己集合化系を確立することを目的としている。水酸化ナトリウム水溶液にセロオリゴ糖を溶解させた後、塩酸で中和することにより集合化させる、いわゆる中和誘起自己集合化系においても、水に不溶化して析出するセロオリゴ糖と CMC との共集合化がゲルの力学物性制御に有用であることを見出している。これにより、分子鎖長が短いセロオリゴ糖からなるハイドロゲルの方が高いヤング率をもつことを明らかにしている。分子鎖長が短い場合はセロオリゴ糖の結晶化とゲル形成が比較的遅い自己集合化系であるために、セロオリゴ糖と CMC とが良好に複合化し、結果としてヤング率の比較的高いゲルを形成したものと考察している。

第四章「タンパク質変性剤を用いるセロオリゴ糖の集合化制御」では、グアニジン塩酸塩や尿素といったタンパク質変性剤の存在下でセロオリゴ糖を自己集合化させ、セルロース集合体の構造制御におけるタンパク質変性剤の有用性を見出すことを目的としている。タンパク質変性剤存在下で酵素合成したセロオリゴ糖は、変性剤非存在下の場合よりも高い重合度をもち、不溶化に伴い停止する重合反応がより進行することを明らかにしている。タンパク質変性剤とセロオリゴ糖が効果的に相互作用することで、タンパク質変性剤の濃度依存的にセロオリゴ糖の溶解性が向上し、不溶化とそれに伴う結晶化が抑制される結果としてセロオリゴ糖がより高重合度まで成長する機構を提案している。また、中和誘起自己集合化系においてもタンパク質変性剤がセロオリゴ糖の不溶化とそれに伴う結晶化を抑制していることを明らかにしている。

第五章「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、本論文は植物細胞壁の生合成プロセスに着想を得てセロオリゴ糖と多糖からなる堅牢な複合体を簡便に構築するとともに、セロオリゴ糖の集合化を様々な分子との相互作用に基づき制御するための新たな手法を明らかにしている。セロオリゴ糖集合体の構造や物性を制御する上で本研究の手法は有用であると期待され、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、東京科学大学リサーチリポジトリ (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。