

論文審査の結果の要旨

氏名 郭 彦麗

本論文は、自己組織化糖脂質ナノチューブをナノ流体デバイスに応用するための形態制御、二次元配列及び局所物性に関する研究をまとめたものである。具体的には、チューブ始状態であるベシクルのサイズ制御と多孔質膜テンプレート法による糖脂質ナノチューブのサイズ・形態制御、二段階インジェクション法を用いた糖脂質ナノチューブのガラス基板上への配列、糖脂質ナノチューブ壁に局在される水(層間水)の構造解析について述べられている。

本論文は8つの章により構成され、各章の概要は以下の通りである。

第1章では、本研究全体を通じての研究背景、および本論文を通じて扱われる自己組織化糖脂質ナノチューブの基本的知見をまとめている。

第2章から第7章までは、糖脂質ナノチューブの形態制御、二次元配列と物性測定において用いられている実験方法、得られた実験結果とそれについての議論がまとめられている。

第2章では、多孔質膜を用いたテンプレート法による糖脂質ナノチューブの形態制御についてまとめた。チューブ始状態であるベシクルを多孔質膜の円柱状ナノポアに充填し、ナノポア内の自己組織化によって外径の制御ができる脂質ナノチューブが得られる。従来のテンプレート法と異なり、薄い水酸化ナトリウムでとけるアルミナ多孔質膜を用いるので脂質チューブをナノポアから取り出す際、脂質チューブへのダメージが少ないという特徴がある。その上に圧力をかけてベシクルをナノポアに充填することによって、収率をあげることができる。

第3章では、第2章で述べた新しい手法で作成した糖脂質ナノチューブの構造・物性についてまとめている。電子顕微鏡 (SEM、STEM)、X線回折 (XRD)、赤外分光 (FTIR)、円二色性分光 (CD) と示差熱分析 (DSC) などの測定法を用い、ナノポア内で自己組織化糖脂質ナノチューブを構造や物性を調べた。その中で、CD測定によってナノポア中とバルク中で生成した脂質ナノチューブの分子パーキングのヘリカル方向が逆転している現象が見つかった。これらの測定結果をまとめて、ナノポア中の自己組織化機構が推測されている。

第4章では、第3章で用いたテンプレート法にベシクル押出法を加え、サイズがより均一な脂質ナノチューブの作製について記述されている。ベシクル押出法を用い、サイズが均一のベシクルを作成してアルミナ多孔質膜のナノポアに充填することによって、径と長さが均一のナノチューブが得られた。始状態であるベシクルのサイズが、糖脂質ナノチューブのサイズに直接影響することが見出された。

第5章では、ベシクルのサイズ制御を通じた糖脂質ナノチューブのサイズ制御について述べられている。ベシクル押出で用いられているポリカーボネイト (PC) フィルタのポアサイズがベシクルのサイズを決めるため、PC フィルタのポアサイズを変えることによって糖脂質ナノチューブの径をコントロールできる。PC フィルタのポアサイズの減少に伴い、脂質ナノチューブの外径と壁厚が減少することを明らかにした。

第6章では、二段階インジェクション法を用いた糖脂質ナノチューブの二次元配列について述べられている。糖脂質ナノチューブ水分散液に二段階で違う圧力をかけることによってガラス基板上に脂質チューブを平行するように配列することができる。外径が数百ナノメートルのナノチューブやナノファイバーを非破壊的に二次元マニピュレーションする技術が確立された。

第7章では、糖脂質ナノチューブの壁に閉じ込められている水の構造解析について述べられている。XRD 測定により、脂質ナノチューブがラメラ周期構造をもつことを明らかにし、X線解析によって、多重層二分子膜間に閉じ込められている層間水の厚さを初めて測定できた。層間水の構造を明らかにするため、赤外分光法を用いて水素結合環境を調べた結果、バルク水と比べ、水素結合が増強されていることが明らかになった。

第8章では、本論文の結論が述べられており、本研究で開発された脂質チューブの形態制御方法、二次元配列技術と明らかになった局所物性の意義や応用に関する知見が総括されている。

以上のように本論文で著者は、ベシクル押出法とテンプレート法を併用することにより、脂質チューブのサイズ制御に成功した。また、テンプレートナノポア内の自己組織化を利用して、脂質チューブ内の分子パッキングのヘリカル方向を制御できることを見出した。現在、脂質ナノチューブに関するこれらの新しい発見の応用が期待されている。さらに、二段階インジェクション技術を開発し、外径が数百ナノメートルの脂質チューブの二次元配列に初めて成功した。これは脂質ナノチューブをデバイス化する上で有用な技術である。最後に、脂質ナノチューブ壁に閉じ込められている水の構造を明らかにすることによって、脂質ナノチューブの基礎的な物性に関する多くの有意義な知見を得ている。これらの知見を利用することにより、今後脂質ナノチューブの様々な応用が期待されている。

以上の結果については、伊藤耕三、清水敏美、由井宏治との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。よって、本論文は博士 (科学) の学位論文として合格と認められる。