

審査の結果の要旨

氏名 澤山 淳

水素結合は、組織化された集積構造を持つ超分子材料の作製に有用な分子間相互作用であるが、極性の高い水中では有効に作用しない。本論文は、高い水素結合能を有する核酸誘導体を用いて、水中でも水素結合を有効に働かせるための分子構造設計と、その設計に基づいて作製された二次元水素結合で安定化された μm サイズの超分子多層および単層膜ベシクルに関する研究を述べたもので、全 5 章で構成されている。

第 1 章は序論で、まず組織化された構造を持つ超分子材料の特徴や組織構造形成に至る分子間相互作用を概説し、さらに本論文で主として用いられている水素結合について水中での問題点など詳しく述べている。次いで、本論文が対象とする μm サイズの巨大ベシクルに関する研究や用途について概説し、問題となる低い安定性の向上に向けた研究を整理して提示している。さらに、核酸系超分子材料に関する研究の進展を概説した上で核酸系分子を対象とすることの根拠を示すとともに、二次元水素結合で安定化された超分子巨大ベシクル作製という本論文の目的を述べている。

第 2 章は、水中で二次元水素結合を形成させるための分子設計について述べたもので、まず疎水性で形状適合性に優れた部分構造を利用することが、集積化にともなう立体的な要因を緩和して水素結合支配の組織構造を形成させる上で重要であることを指摘している。次に、デオキシグアノシン誘導体の側鎖構造を精密に最適化すると、二次元水素結合層が疎水層で挟み込まれて安定化し、表面に親水性が付与されたシート状構造体が形成できることを、フィルム形成能とその構造解析から検証しており、さらに最適化された誘導体が水中において二次元水素結合に基づく超分子ベシクルを形成することを確証している。これらの検討を通して、形状適合性のある部分構造を用いた精密分子設計により、水中においても二次元水素結合を安定に形成させ得ることを実証している。

第 3 章では、得られた二次元水素結合支配の膜を持つ巨大超分子ベシクルについて検討しており、簡便な注入法で調整できること、水溶液中で高い分散安定性を有し、

広いpH および温度領域で形状安定性および内包物質の保持能を維持できるベシクルであることを明らかにしている。またその構造をXRD、赤外吸収、およびAFMなどを用いて解析し、二次元水素結合によって形成された厚さ約 2.3 nm のシート状構造体が6~9層積み重なった膜で包まれているというベシクル構造を明らかにしている。さらにベシクル調整時の水素結合による事前組織化の重要性を指摘するとともに、真空下でも壊れることなく内水相を保持できる高い安定性を持つことを述べている。

第4章では、さらに非イオン性界面活性剤を共存させるという独創的な方法で、簡便な注入法による巨大超分子単層膜ベシクルの調整に成功しており、その構造を明らかにするとともに、3章で見いだした多層膜ベシクルの高い安定性や内水相保持能が、主に二次元水素結合の特性を反映したものであることを明らかにしている。また水中およびシリコン基板上でベシクル同士の融合や分割が起きることを実証しており、安定でありながら水素結合の可逆性に基づく融合・分割能を持つ新しい巨大超分子ベシクルであることを示している。

第5章は総括であり、これまでの結果を総括し、マイクロカプセルやマイクロリアクターなどとしての応用に向けた今後の展望を示している。

以上のように本論文は、精密な分子設計により水素結合を水中で有効に作用させて超分子ベシクルが簡便に作製できることを実証するとともに、二次元水素結合でできた巨大ベシクルが優れた安定性と内包物保持能を有することを提示したもので、得られた知見は、化学生命工学の分野に寄与するところ大である。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。