

## 審査の結果の要旨

氏名 高正宏

近年、ナノサイエンスおよびナノテクノロジーに関する多くの研究例が報告されており、とりわけ一次元ナノマテリアルに関する研究例の増加は顕著である。一次元ナノマテリアルとして広く研究されている物質にカーボンナノチューブ (CNT) がある。この CNT の類似体として位置づけられる窒化ホウ素ナノチューブ (BNNT) は、多くの優れた化学的および物理的な特長をもつために、CNT の代替材料としての利用が期待されている。しかしながら、BNNT 自身の低溶解性、化学的不活性、あるいは低い生体適合性といった理由から応用例は限られ、それらの問題点を克服することが急務となっている。

本論文は「生体分子による窒化ホウ素ナノチューブの水中分散および機能化」と題し、ペプチド、核酸、および多糖といった多様な生体分子の水溶液に BNNT を加え、超音波処理と遠心分離による精製操作により、生体分子による BNNT の表面修飾と BNNT の水中への単分散を実現している。さらに、量子ドットあるいはタンパク質といった機能性分子を、生体分子で表面修飾された BNNT 上に固定化できることを見出し、BNNT に新たな機能を付与している。この機能化 BNNT は生体分子によって修飾されていることから、生医学材料への応用が期待される。

第一章では、ナノマテリアルについて概説した後、本研究で取り扱う BNNT の特徴と関連研究について言及している。また、BNNT の溶媒への分散法と、水中に分散することの重要性について述べている。さらに、生体分子で BNNT 表面を修飾することの利点と、それによって可能となる応用展開について指摘し、本論文の目的を示している。

第二章では、BNNT 表面に結合するペプチドに注目し、その水溶液に BNNT を加え超音波処理することにより、凝集した BNNT を解きほぐし、結果として、ペプチドで表面修飾された BNNT が水中で安定に単分散することを明らかにしている。原子間力顕微鏡 (AFM) 観察により、分散した BNNT の形態を明らかにし、蛍光および赤外吸収スペクトルから、ペプチドと BNNT が  $\pi$ - $\pi$  スタッキングにより相互作用していることを提案している。また、ペプチドとの相互作用

用により BNNT の最大吸収波長がブルーシフトすることを見出し、ペプチドにより修飾することによる BNNT の特性制御の可能性を示している。

第三章では、フラビンモノヌクレオチド (FMN) によって表面修飾された BNNT ナノハイブリッドが安定かつ強い蛍光を可視光領域に発することを明らかにしている。AFM 観察からその優れた単分散性を明らかにし、赤外吸収スペクトルから FMN-BNNT 間の相互作用が  $\pi$ - $\pi$  スタッキングであることを見出している。また、その蛍光強度は水溶液の pH に依存すること、また良好な耐熱性をもつことを明らかにしている。これらの結果は、本ハイブリッドが幅広い温度域で使用可能な蛍光イメージングプローブとなる可能性を示している。

第四章では、さまざまなヌクレオチドによる BNNT の水中分散を検討し、ヌクレオチドとの  $\pi$ - $\pi$  スタッキング相互作用を介した被覆によっても BNNT を水中に単分散できることを示している。中でもグアノシン-リン酸を用いた場合に最も高い分散能を示し、さらにそれをリンカーとすることで量子ドットを BNNT 上に固定化することに成功している。量子ドット修飾によって、長波長領域に新たな蛍光発光が観察されたことから、本ナノハイブリッドが生医学分野におけるイメージングプローブに適用できる可能性を示している。

第五章では、水溶性多糖であるアラビアゴム (GA) による BNNT の水中分散を達成している。AFM 観察から BNNT の高い単分散性を明らかにしている。また、GA が負電荷をもつことを利用し、正電荷をもつ数種類のタンパク質を GA 修飾 BNNT 上に一次元集積できることを見出している。GA は天然に大量に存在することから、本手法は環境低負荷かつ低コストな修飾法であると言える。また、タンパク質が集積できることから、BNNT を基盤としたバイオデバイスやバイオセンサー、あるいはタンパク質デリバリーシステムへと応用できる可能性を示している。

第六章では、本論文全体のまとめと将来展望について述べている。

このように本論文は、さまざまな生体分子による BNNT の水中分散および機能化に関する一般的な知見やその特徴を明らかにしており、当該研究分野における学際的および工学的な知見を新たに提供している。今後、ナノチューブ化合物を用いるマテリアルサイエンスの構築やナノテクノロジーへの応用など、当該分野の発展に多大に寄与するものと考えられる。

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。