

論文審査の結果の要旨

氏名 関根 良輔

本論文は六章から構成されており、有機フラーレン分子から調製したアモルファス質の球状分子集合体および超薄膜の開発と、それらの電子顕微鏡観察におけるナノ構造体やタンパク質など観察対象物の試料調製法への応用について論じている。

第一章では、電子顕微鏡観察における試料調製法の重要性とフラーレン分子集合体の特徴について述べている。研究の背景として、分子集合体分野で研究されているゲスト分子の位置制御、試料表面の保護や界面の安定化などの機能などが試料調製法に有用であること、また高真空かつ電子線照射下での安定性が求められており、それを両立した材料開発の重要性について説明することで、本研究の着想経緯と目的を明らかにしている。

第二章では、電子線トモグラフィーを用いたナノ材料の構造解析のための試料調製法について述べている。本章では有機フラーレン分子から調製した球状の分子集合体を支持材料として応用することで、傾斜観察において一定のコントラストで対象試料の画像を収集することに成功した。本手法は水中での中性フラーレン分子とそのカリウム塩間での平衡状態を利用することにより、観察対象であるナノ粒子分散液と有機フラーレン分子を混合するのみというシンプルな手法で、無機ナノ粒子からウイルスを含む生体分子まで様々な試料の分析に適用可能である。このように多成分系ナノ材料を調製するという観点でも、既存の乳化重合法など比べて簡便かつ基質適応性が広く、非常に興味深い。

第三章では、自立性の自己組織化二重膜の調製とその構造評価について述べている。従来の脂質二重膜が vdW 相互作用と疎水性効果で構成されているのに対し、カルボキシル基置換フラーレン分子を用いて水素結合を駆動力とした堅牢な二重膜構造を設計することで、自立型超薄膜の調製を実現した。得られた超薄膜は、X 線反射法等の手法により、目的とする二重膜構造であることを同定している。この緻密に制御できる膜厚と膜構造を持つ自立型超薄膜はその化学的機能性と相まって、電子顕微鏡観察における新規な基板としての有用性が本章では示されている。

第四章では、クライオ電子顕微鏡法におけるタンパク質の単粒子解析のための支持膜と

してフラーレン超薄膜を応用した研究について述べている。フラーレン超薄膜は、観察対象のタンパク質をバッファー中から積極的に超薄膜表面に吸着する機能を持つため、単粒子解析に適用できるタンパク質溶液の濃度範囲を広げることができる。また、この超薄膜表面に様々な官能基を導入して機能化することでタンパク質の配向を制御でき、その三次元構造を再構築するのに有用である。このような多様な機能性に加え、その調製や膜厚制御が容易であることから、クライオ電子顕微鏡法における支持膜応用の障壁を下げ、その発展に寄与することが期待される。

第五章では、フラーレン超薄膜を利用した原油中のアスファルテンと呼ばれる極性高沸点成分のトルエン中でのナノ会合体の単離と観察を行った成果について述べている。フラーレン超薄膜の表面構造はナノサイズの試料を溶液中から効率的に取り出すことに適し、その軽い材料密度とアモルファス性により軽元素のみで構成されたアスファルテンの一次凝集体構造を捉えることができた。また、透過電子顕微鏡観察などにより詳細構造は芳香環が融合した分子の積層構造であると同定している。本研究はアスファルテン中における一次凝集体の構造解析を初めて行なった例であり、石油化学において興味深い結果である。

第六章では、本研究の総括と展望が述べられている。高真空かつ電子線照射に安定な有機フラーレン分子を用いて、電子顕微鏡観察における試料調製法に対する分子集合体の有用性を示した。具体例として、電子トモグラフィーに適した観察試料を包埋・固定できる球状分子集合体や、バッファー中のタンパク質の密度や配向制御を行なったり、原油中の凝集成分を効率的に取り出したりできる超薄膜状の分子集合体を示し、分子集合体応用の実用化の指針を示したことがまとめられている。

なお、本論文における各章の研究は中村栄一博士及び原野幸治博士、ラバト・プリンス博士、亀井恒氏、吉川雅英博士、柳澤春明博士、田中求博士、山本暁久博士、田中隆三博士、森本正人博士、内田光氏、劉超氏との共同研究によるものであるが、研究計画および検討の主体は論文提出者であり、論文提出者の寄与が十分であると認められる。

本論文は、分子集合体の化学と電子顕微鏡法をつなぐ異分野融合研究として興味深いものである。また、これらの研究結果はナノ材料科学、構造生物学や石油化学工業など幅広い研究領域で重要な指針を与えるものであり社会的にも意義あるものであると考えられる。したがって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。