

論文の内容の要旨

論文題目 Development of Functional Supramolecular Composites
 Using Biomolecular Derivatives
(生体分子誘導体を用いた機能性超分子複合体の開発)

氏 名 榮 村 弘 希

生体において、複数の分子が分子間力を介して分子集合体を形成することにより、複雑な生命機能が発現している。このような分子の自己組織化を活用して、環境調和型の高機能材料を開発していくことが、材料科学・ナノテクノロジーにおける重要な目標の一つとなっている。その中でも、動的な自己組織化構造を形成する液晶を活用する材料創製が注目を集めている。この液晶にさらなる新機能を付与する方法として、機能性分子との複合化が挙げられる。本論文は、液晶の配列場に機能部位を導入する新しい自己組織化材料の開発における二つの新しいアプローチについて述べている。一つは、生体認識部を新たに導入した液晶分子の液晶界面場における生体分子認識機能材料であり、もう一つは、液晶場で配向させたラジカルファイバーの構築である。

序章では、液晶分子を用いた超分子複合体に関する研究の背景と本論文の研究目的を述べている。

第一章では、生体機能部位を有する液晶複合体の開発とその水-液晶界面における配向とタンパク質の認識機能を報告している。室温ネマチック液晶に含まれるビオチン部位を有する両親媒性メソゲンが水-液晶界面において、液晶分子のホメオトロピック配向とストレプトアビジンの特異吸着を引き起こすことを述べている。ラングミュア膜測定により、空気-水界面において、ビオチン部位を有するメソゲン分子が垂直に配向し、高密度に集積していることを明らかにしている。偏光顕微鏡観察により、ビオチン部位を有するメソゲン分子を室温ネマチック液晶に添加すると、その添加濃度に依存して、水-液晶界面における液晶の配向が変化することを見出している。この液晶の配向変化の理由として、液晶複体内のビオチン部位を有するメソゲン分子が水-液晶界面に自己集合することを挙げている。さらに、蛍光顕微鏡観察により、ビオチン部位を有するメソゲン分子を液晶に添加することにより、得られる水-液晶界面がストレプトアビジンに対する特異結合能を有していることを報告している。このことから、生体機能部位を有する両親媒性メソゲン分子を液晶に複合化することにより、作製される水-液晶界

面において液晶の配向とタンパク質吸着が制御可能であることを示している。以上の結果から、生体認識部位を有する両親媒性メソゲン分子は、新たな生体機能材料を開発する上で有用であるという結論を導いている。

第二章では、生体機能部位としてアルギニン-グリシン-アスパラギン酸配列（RGD配列）を有する液晶分子の開発と自己集合挙動について述べている。偏光顕微鏡観察、X線回折測定、示差走査熱量分析により、この分子がサーモトロピック液晶性を発現していることを明らかにしている。この液晶相にせん断を印加することにより、この液晶分子が一方向に配向することを報告している。また、RGD配列と異なるアミノ酸配列を有する類似化合物の液晶性と比較することにより、アミノ酸配列の側鎖が液晶性の発現に大きく寄与していると考察している。

第三章では、液晶配列場を用いた安定有機ラジカル部位を有する自己組織性ファイバーの配向とその磁化特性について述べている。走査型電子顕微鏡観察により、安定有機ラジカル部位を有する低分子ゲル化剤が液晶中においてファイバー状集合体を形成し、その液晶をゲル化することを報告している。偏光顕微鏡観察、示差走査熱量分析により、得られるファイバーがスメクチック A 相中で形成していることを述べている。赤外分光測定により、このファイバー形成の駆動力として、分子間水素結合が大きく寄与していることを明らかにしている。この液晶ゲルを強磁場中で等方相から冷却することにより、磁場方向に配向したラジカル基含有ファイバー状集合体が形成されることを見出している。偏光顕微鏡観察により、このファイバー状集合体が配向する現象は、磁場中で液晶分子が応答し、モノドメイン構造を形成することに由来していることを述べている。また、偏光顕微赤外分光法により、配向した液晶ゲルにおいて、ゲル化剤の分子間水素結合が液晶分子の長軸方向に形成することを明らかにしている。さらに、配向した液晶ゲルの磁化測定により、巨視的に配向したラジカルファイバーにおいて、反強磁性相互作用が発現していることを報告している。

第四章では本論文の結言を述べている。第三章までの研究結果を総括し、今後の展望を示している。

以上のように本論文では、液晶配列場の活用による生体認識機能や磁気特性を示す液晶複合体の開発について述べている。すなわち、自己組織性材料の界面と巨視的な配向構造の制御を行い、その集合構造と発現する機能の関係を明らかにしている。これらの結果は、自己組織性材料のさらなる機能化のための知見をもたらすものであり、機能分子化学、超分子化学の分野の進展に寄与するものである。