

## 審査の結果の要旨

氏名 川邊 駿佑

本研究ではテラヘルツ波を用いることで水分子と生体関連分子との相互作用の評価手法の確立を目指した。生体関連分子が正常な機能を発現するにあたって“水”の存在は必要不可欠な存在であり、無視することの出来ない因子である。水溶液系に適用可能なテラヘルツ波反射計測系実験装置の構築し、イオン、糖（低分子）および生体適合性高分子などを計測対象とした。帯電・非帯電性、立体構造や極性、さらには分子量に応じて水和状態に差異がある事を明らかにした。

糖類の水和状態に関して、単糖類、二糖類といった糖類は生体関連分子を構成する代表的な要素であり、水和状態を評価するにあたってまずは理解すべき分子である。テラヘルツ波によって水和状態を評価した結果、テラヘルツ波による水和数の値は第二水和圏までの水和数を評価していることが分かった。これは分子動力学計算によってシミュレーションした結果とも一致する。従来法では実測で評価する事が難しかった領域の水和状態について、テラヘルツ波を用いることで評価する事が可能になり、シミュレーションによって計算されていた水和数と近い値を実測により検証した。

イオン性分子の水和状態について、イオンは生体内において神経伝達等に影響を与える重要な分子である。テラヘルツ波によってイオンと水分子の相互作用について評価した。結果としてイオン性分子が水中に含まれることにより、バルク水の集団を崩壊させ、過度的に存在する自由水の数を増加させることが分かった。これはイオン性分子がもつ水和の配位数の数が、バルク水の集団の数よりも少ないために起こる現象だと考えられる。また、イオン種類によって水和傾向が大きく違うことも評価でき、これはイオンの電子配列やイオン半径、イオン化エネルギーの違いなどが原因であると考えられる。

ゾルゲル転移に伴う水和状態変化について、水中で立体構造を変化させるタンパク質や高分子は、構造変化の際に水との水和状態も大きく変化する。テラヘルツ波によって水分子の挙動を測定することで立体構造の変化を検出した。結果として、従来のゾルゲル転移評価法である粘弾性測定では検出することが難しかった構造の変化についてテラヘルツ波を用いることで初めて検出することに成功した。これは粘弾性測定による力学的応答を測定するのみでは検出が難しい構造変化であり、水分子に着目したテラヘルツ波分光法であったが故に検出することが出来たと考えられる。このように水和量の評価だけではなく、

水和状態の変化に着目することで測定対象の状態変化の検出に利用できることを示した。

水溶性高分子化合物の水和状態について、近年の研究において高分子化合物はバイオマテリアルへの応用が期待される生体適合性高分子を対象とした。バイオマテリアルへの応用のためには生体適合性が重要になるが、生体適合性の評価には高分子の親水性や保水性が注目される。テラヘルツ波によって水溶性高分子化合物と水分子の相互作用を評価した。結果として、高分子の立体構造が水和数に影響していると考察できた。特に高分子の側鎖のサイズは水和数に大きく影響を与えていると考えられる。また高分子の種類によっては最も水和数を持つ分子量が存在することも考察でき、テラヘルツ波を用いることで最も水和力の高い分子の長さを同定できる可能性も示唆した。

以上要するに、本研究では、テラヘルツ波を用いた時間領域分光法により、バルク水の緩和特性を計測することでイオン、糖類、ゼラチンを含む生体適合性高分子と水分子との相互作用を計測し、分子量、分子サイズ、電荷量、親水基の有無により、単位分子当たりの水和数が増加することを明らかにした。このように、バイオエンジニアリング研究分野における貢献は少なくない。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。