

論文審査の結果の要旨

氏名 松下祐福

本論文は全7章からなり、第1章は研究背景と目的、第2章は実験手法、第3章と4章ではそれぞれ、X線1分子追跡法(Diffracted X-ray Tracking: DXT)による無機材料(酢酸ナトリウム)とタンパク質材料(リゾチーム)系過飽和溶液の実験結果と考察、さらには各種手法(X線散乱法、円二色性偏光分光法、動的散乱法)を用いた過飽和溶液特有の溶液中の動態構造について言及している。第5章では暗視野顕微鏡(Dark field Microscopy: DFM)による両材料系の実験結果、DXTとの対比が行われ、第6章では本研究のまとめと今後の展望について述べられている。第7章は本研究による研究業績をまとめている。

本論文第1章において述べられているように、時間・空間的に平均化された測定法に基づく溶液構造研究において、現在まで統一的な見解の存在しない、結晶化の前駆状態である過飽和溶液を対象に、ナノスケールにおける時分割性の測定を導入した物性評価が本研究の主な目的とされている。特に、本研究では、無機材料、タンパク質材料系の異なる2種類の過飽和溶液を対象に2種類のナノスケールにおける溶液構造モデルの確立と、各種物性値の比較による過飽和という現象の相補的な理解を最終目標としている。申請者は共同研究者との討論を通し、先行研究の問題点や、各種計測手法の利点・限界を詳しく理解し、課題の抽出と研究テーマの設定が行えることから、学位取得に見合った研究能力を有していると判断できる。

本論文第2章において述べられているように、申請者は、佐々木研究室で推し進めてきたDXTを無機、タンパク質材料の2種類の過飽和溶液サンプルへ適用している。さらに、DXTの結果を補完する計測系として、DFMを立ち上げ、過飽和溶液のナノスケールダイナミクス計測を推し進めている。その他にも、X線散乱法や円二色性偏光法、動的散乱法などを用いた、過飽和溶液物性に関する補足データも取得するなど、多種多様な実験とデータ解析に精通し、主体的に本研究に取り組んでいる。

本論文第3章において述べられているように、マイクロ秒の時分割DXTを用いることで、無機材料系過飽和溶液(酢酸ナトリウム過飽和溶液)に、ナノスケール領域で異なるダイナミクスが共存していることを明らかにした。さらに、速い運動モードの経時変化傾向を解析することで、1.60 fNという大変微小な力場を定量的に求めることに成功している。これらは過飽和溶液中に生成する溶質密な局所ネットワーク構造の動的構造に起因した、近年大変注目されている結晶核形成過程に関係する溶液物性を理解する上で大変重要なものである。

本論文第4章では、DXTを用いたタンパク質材料系過飽和溶液(リゾチーム過飽和溶液)のナノスケールダイナミクスについても測定している。本結果より、タンパク質材料系

においても、0.11 fN(分散型 DXT: マイクロ秒測定)、0.11 aN(固定型 DXT: ミリ秒測定)という大変微小な力場抽出に成功している。さらに、過飽和条件下におけるタンパク質物性計測として、円二色性偏光法による芳香環領域のタンパク質構造変化や、動的光散乱法による 2-3 量体のクラスター形成が確認されている。このことは、近年多くの議論が行われている、過飽和条件下における複雑な構造を有するタンパク質分子間相互作用の特異的性質を示しており、結晶核形成の前駆状態のタンパク質動態・構造特性研究において、極めて重要な知見を与えている。そして、第 3 章の無機材料系による DXT 実験結果との比較から、無機材料・タンパク質材料における、異なる局所力場の値が、各材料系における過飽和溶液の保存する潜熱の値に関連したパラメータであることを示している。

本論文第 5 章では、DXT (マイクロ秒測定) で得られた、無機・タンパク質材料系過飽和溶液におけるフェムトニュートンオーダーの局所力場生成を、DFM (ミリ秒測定) を用いて同様に観測している。このことは、観測プローブの回転と並進の 2 軸動態傾向の観測から、現在まで提唱されている過飽和溶液における“密度揺らぎ”によるナノスケール領域における流体力学効果(渦流体、混相流、層・乱流)に基づいた、溶液のダイナミクス構造モデルを明らかにする上で大きく貢献するものである。

なお、本論文で述べられている研究は、大阪大学蛋白質研究所 後藤祐児教授(第 3-5 章)、高輝度光科学研究センター 関口博史博士(第 3-5 章)、太田昇博士(第 3 章)、高エネルギー加速器研究機構の一柳光平特任准教授(第 3 章)との共同研究である。各種実験の測定、解析、考察(DXT 測定、DFM 測定、X 線散乱、円二色性偏光、動的光散乱法)はすべて申請者が主体となって行われたものである。

このように本研究において、申請者の寄与は十分であると判断する。また、申請者が学位を受けるのに十分な技能と知識を有していることは明白である。

従って、博士(科学)の学位を授与できると認める。

以上 1969 字