

2020年3月26日

学位論文の内容の要約

氏名	酒井 淳
学位の種類	博士（工学）
学府又は研究科・専攻	大学院工府 電子情報工学専攻
指導を受けた大学	東京農工大学
学位論文題目	マイクロ空間で作られたゼラチンゲルの粘弾性およびナノ構造の変化

【論文の内容の要約】

高分子ゲルは薬剤輸送や食品工学といった応用が期待される機能性材料である。高分子ゲルとは高分子が融解した水溶液中で高分子同士が結合して水溶液全体にネットワーク構造を形成したものであり、特に、サイズが細胞サイズ程度のマイクロゲルに注目が寄せられている。一般的にゼラチンのような物理ゲルと呼ばれる高分子ゲルは水溶液中で水素結合することで二次構造と呼ばれる高次構造を作り、それによってゲル化することが知られている。脂質などの両親媒性分子が溶けた油を使い、そこに高分子溶液を添加して分散させることで、エマルションと呼ばれる細胞サイズの液滴を作ることができる。細胞サイズ程度の空間でゲル化する際、脂質膜からの影響や狭い空間へ閉じ込めることによって通常のバルクサイズの高分子ゲルの構造に変化が生じ、マイクロゲルの物性がバルクゲルと異なることが予想される。従来、マイクロゲルはマイクロゲルの分散した溶液の粘弾性を測定してきた。しかし、それは必ずしもマイクロゲル単体の粘弾性を反映したものではない。そこで本研究では、マイクロゲルの粘弾性を測定することでバルクゲルとの粘弾性の違いを明らかにし、分子構造の違いと関連付けて明らかにすることを目的とした。

第二章ではマイクロゲルの弾性率を測定するための条件の設定および、粘弾性の指標である弾性を反映した貯蔵弾性率、粘性を反映した損失弾性率を測定するための装置の開発を行った。

第三章ではマイクロゲルの弾性率に着目して物性の解析を行った。マイクロゲルは半径が約 $50 \mu\text{m}$ 以下になると、同じ濃度で作製した $5.0 \text{ wt}\%$ 濃度のバルクゲルよりも弾性率が10倍程度高くなることが分かった。しかし、これは作製に伴う濃度の上昇によって弾性率の上昇が生じているのか、分子構造の変化によって弾性率の上昇が生じているのか区別することができない。そこで、粘弾性の評価が必要となる。

第四章では粘弾性を測定した。同じ弾性率を持つ高濃度のバルクゲルの粘弾性と比較することで、マイクロゲルの損失弾性率はバルクゲルと比較して小さくなることが分かった。

これにより、マイクロゲルは、分子構造を変化させて弾性率を上昇させていることが明らかになった。一般的にゼラチンのようなタンパク質の分子構造は α ヘリックス構造、および β シート構造によってその二次構造が作られている。ゼラチンは主に α ヘリックス構造である、三重らせん構造によってゲル化することが知られている。

第五章では、マイクロゲルの分子構造を、CD スペクトルおよび FTIR によって評価した。その結果、マイクロゲルには β シート構造が含まれていることが示唆された。 β シート構造に特異的に結合して蛍光を発する Thioflavin-T を添加し、蛍光観察したところ、蛍光を発し、さらにサイズが小さなマイクロゲルほど強い蛍光を発したことから、マイクロゲルは β シート構造によってゲル化していることが強く示唆された。

これらの研究により、ゼラチンは細胞サイズのような狭い空間でゲル化すると、通常のバルクゲルと異なる β シート構造によってゲル化し、弾性率が上昇することが分かった。これを制御することによって、マイクロゲル単体の物性を制御し、さらなる機能化を行えると考えられる。