

論文審査の結果の要旨

氏名 新田 寛久

本論文は五章から構成されており、両親媒性フラーレンの水溶液中での自己集合と気液、液液、および固体液体界面での挙動について研究を行っている。

第一章では、従来のアルキル界面活性剤では制御できなかった性質をフラーレンを分子骨格として用いることで解決するという本研究の目的を明らかにし、本研究の背景として従来の界面活性剤の性質と課題、そしてフラーレンを用いた両親媒性構造の有用性について概説している。

第二章では、クリック反応を利用したカチオン性コニカルフラーレン(以下、CFA)の開発と DNA コンパクションへの応用について述べている。以前に報告された4つの正電荷をもつフラーレン誘導体は誘導化が困難であり、DNA との結合能は不十分であったが、本研究ではクリック反応を用いることで多様な官能基を容易に導入できるようになり、より効率的な材料の開発が可能になった。CFA はミセル化能に優れ、DNA とともに今まで報告されたものと比較しても高効率に結合することを証明した。負電荷をもつひも状の DNA を球状の正電荷をもったナノ粒子に折りたたむことができるため遺伝子導入剤として優れており、容易な官能基変換と併せて副作用の少ない DNA 輸送材料設計への道を開くものである。

第三章では、CFA 分子骨格の制御によって界面活性を抑制し、ミセル化を促進できることを証明している。アルキル界面活性剤では気液界面への吸着と溶液中でのミセル化は柔軟な分子骨格のために同様の濃度で起きることが知られている。本研究では CFA が剛直なために疎水部の分子骨格形状を精密に制御できることを活かし、二つの異性体を合成してその界面活性とミセル化能を比較評価している。界面膜における分子間の立体反発が界面活性の抑制に寄与するという発見は今後の界面化学、および超分子化学の発展に寄与するだけでなく工業的にも重要である。

第四章では、イオン性 CFA に着目し、その界面活性が完全に抑制されているだけでなく固体分散にも有用であることを述べている。カチオン性、アニオン性、ノニオン性の CFA を種々合成しその特性を体系的に評価すること、でイオン性 CFA が界面活性を持たない一方で非常に低い濃度でもミセル化できることを示している。固体分散への応用ではナノマテリアルの水溶液への分散を行っている。磁性ナノ粒子に加えカーボンナノチューブ、カーボンナノホーンの分散を行い、CFA が汎用性が高く高性能な分散剤として機能しうること示している。低濃度の添加剤でナノ粒子の分散安定性を高められることは薬物輸送やナノ粒子の生体応用に加えて分散プロセスにおいても重要であり、工業的にも非常に意義深い研究結果である。

第五章は本研究の総括である。フラーレン五重付加体にクリック反応を適用することで効率的に DNA と結合するカチオン性両親媒性分子を開発できること、また CFA の分子骨格によって界面活性を抑制し、ミセル化を促進できること、またイオン性 CFA では界面活性が完全に抑制されている一方で高いミセル化能を保持し、さらに様々な固体ナノ粒子の水溶液への分散を達成したことについてまとめている。

なお、和周波発生分光法による CFA 水溶液の界面構造の評価は海外の研究者との共同研究であるが、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。

本研究は汎用性の高い両親媒性コニカルフラーレンの合成手法と、それを活用した体系かつ網羅的な評価によって分散や界面活性という界面活性剤の領域へ広げることに成功したものであり、フラーレンを医療分野だけでなく工業的に利用可能な素材として応用する上で適用可能な多くの知見を与えた。したがって、本論文は博士（理学）を授与できる学位論文として価値のあるものと認める。