

| | |
|--------------|--|
| Title | Studies on Development of Water Soluble Fullerenes and Their Application as Antioxidants |
| Author(s) | 松林, 賢司 |
| Citation | 大阪大学, 2009, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/1189 |
| rights | |
| Note | |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

| | |
|------------|---|
| 氏名 | まつ松 ばやし林 けん賢 じ司 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博士(工学) |
| 学位記番号 | 第 22917 号 |
| 学位授与年月日 | 平成21年3月24日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用化学専攻 |
| 学位論文名 | Studies on Development of Water Soluble Fullerenes and Their Application as Antioxidants (水溶性フラーレンの開発とその酸化剤としての応用に関する研究) |
| 論文審査委員 | (主査) 教授 大島 巧 (副査) 教授 平尾 俊一 教授 林 高史 教授 今中 信人 教授 宇山 浩 教授 桑畑 進 教授 井上 豪 教授 町田 憲一 教授 田川 精一 教授 安藤 陽一 |

論文内容の要旨

本研究はフラーレンの化粧品における酸化成分としての応用を目指した基礎化学的な研究である。フラーレンに適した簡便で再現性の高い酸化力の評価方法の確立、フラーレン分子への酸素原子の導入による酸化力に対する影響の評価、及び新規の水溶性フラーレン誘導体の合成と構造の推定、その水溶性と酸化性の評価を行った。内容は緒言と総括を含めて全6章にて構成した。

第1章は、緒言として本研究の背景であるフラーレンとその酸化力に関する研究の歴史、並びにフラーレンの化粧品分野での最新の研究例を紹介するとともに、本研究の目的とその内容に関して解説した。

第2章においては、簡便なフラーレンの酸化力測定法の確立を目指し、食品成分の酸化力評価に広く用いられているベータカロテン退色法を初めて水溶性フラーレンの評価に応用したところ、食品成分同様に水溶性フラーレンにおいても簡便に酸化力の評価が可能であることを見出した。また本方法により水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀、 γ -CD/C₆₀、及びRadical Sponge)の脂質ラジカル、過酸化水素、及び光照射に対する酸化力の評価を実施したところ、いずれの場合においても水溶性フラーレン錯体が一般的な化粧品向けの酸化成分より高い酸化力を発揮することが確認された。

第3章においては、水溶性フラーレン錯体の更なる酸化力の向上を目指し、錯体に使用するフラーレンに酸素原子を導入し酸化力への影響をベータカロテン退色法により評価したところ、フラーレンに酸素原子を導入した水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀O、及びPVP/C₆₀On)が酸素原子が導入されていない水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀)と比較して1.7から2.4倍高い酸化力を発揮することが確認された。

第4章においては、高い水溶性を発揮する新規フラーレン誘導体の合成を目指し、C₆₀(OH)₁₂に過酸化水素を反応させたところ高い水溶性(17.5 mg/ml、及び58.9 mg/ml)を示す多置換フラーノール(推定平均構造:C₆₀(OH)₃₆8H₂O、及びC₆₀(OH)₄₀9H₂O)の合成に成功した。またC₆₀(OH)₃₆8H₂Oの酸化力をベータカロテン退色法にて評価したところ第2章にて評価した水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀)と同程度の高い酸化力を発揮することが確認された。

第5章においては第4章の研究結果を踏まえて、フラーレン(C₆₀)から高い水溶性を有するフラーレン誘導体の

一段階での合成を目指し、過酸化水素に加えてアンモニアを添加したところ、これまで報告されている中でも最も高い水溶性(>200 mg/ml)を示す水溶性フラーレン誘導体である含窒素多置換フラーノール(推定平均構造:C₆₀(OH)₁₆(NH₂)₈(NO₂)₈28H₂O、及びC₆₀(OH)₁₈(NH₂)₂(NO₂)₆24H₂O)をC₆₀から一段階で合成することに成功した。第6章では、本研究を総括し主要な研究成果をまとめるとともに、その成果の有用性を記した。

論文審査の結果の要旨

本研究はフラーレンの化粧品における酸化成分としての応用を目指した研究であり、その酸化力の評価方法の確立、酸素原子の導入による水溶性フラーレン錯体の酸化力に対する影響の評価、及び新規の水溶性フラーレン誘導体を合成し、その構造推定、並びに水溶性と酸化性の評価を行ったものである。研究成果の要約は以下の通りである。1. 食品成分の酸化力評価に広く用いられているベータカロテン退色法を初めて水溶性フラーレンの評価に応用し、水溶性フラーレンにおいても簡便に酸化力の評価が可能であることを示すとともに、水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀、 γ -CD/C₆₀、及びRadical Sponge)の酸化力の評価を適用し、いずれの場合においても水溶性フラーレン錯体が一般的な化粧品向けの酸化成分より高い酸化力を発揮することを明らかにしている。2. 水溶性フラーレン錯体に使用するフラーレンに酸素原子を導入し酸化力への影響をベータカロテン退色法により評価し、フラーレンに酸素原子を導入した水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀O、及びPVP/C₆₀On)が酸素原子が導入されていない水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀)と比較して1.7から2.4倍高い酸化力を発揮することを見出している。3. C₆₀(OH)₁₂に過酸化水素を反応させたところ高い水溶性(17.5 mg/ml、及び58.9 mg/ml)を示す多置換フラーノール(推定平均構造:C₆₀(OH)₃₆8H₂O、及びC₆₀(OH)₄₀9H₂O)の合成に成功し、C₆₀(OH)₃₆8H₂Oの酸化力をベータカロテン退色法にて評価し、水溶性フラーレン錯体(PVP/C₆₀)と同程度の高い酸化力を発揮することを示している。4. フラーレン(C₆₀)から高い水溶性を有するフラーレン誘導体の一段階での合成を目指し、過酸化水素に加えてアンモニアを添加し、これまで報告されている中でも最も高い水溶性(>200 mg/ml)を示す水溶性フラーレン誘導体である含窒素多置換フラーノール(推定平均構造:C₆₀(OH)₁₆(NH₂)₈(NO₂)₈28H₂O、及びC₆₀(OH)₁₈(NH₂)₂(NO₂)₆24H₂O)をC₆₀から一段階で合成できることを見出している。以上のように、本論文はフラーレンの酸化性に関連した応用化学的な研究としてフラーレンの酸化性の評価方法、酸化性能の向上、及び新規水溶性フラーレン誘導体の合成、並びにその酸化力における新たな知見が得られており、フラーレンを使用した酸化成分の化学の発展に貢献するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。