



Title	Studies on Synthesis of Long Strand DNA with Specific Sequences Using Enzymatic Reaction and Application to Nano Materials
Author(s)	田中, 慎一
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/45085
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	田 中 慎 一
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	第 1 8 3 8 8 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 16 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科化学専攻
学 位 論 文 名	Studies on Synthesis of Long Strand DNA with Specific Sequences Using Enzymatic Reaction and Application to Nano Materials (酵素反応を用いた特異な塩基配列を有する長鎖 DNA の合成とナノ材料としての応用に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 川 合 知 二 (副査) 教 授 中 村 春 木 教 授 後 藤 祐 児

論 文 内 容 の 要 旨

DNA は 0.34 nm 間隔の情報・アドレスや自己組織化などのユニークな特徴を有している。また DNA の各塩基対は分子面に対して垂直方向に π 電子を有しており、2 重らせん構造を形成したときにお互いに重なることから π 電子を介した電気特性について広く興味を持たれている。このような DNA の特徴に注目し、DNA を鋳型として機能性分子（金微粒子、蛍光分子等）を配列させた分子素子の構築や新しい電子材料としての応用を目指した研究が活発に行われている。中でも DNA の電気特性については、現在のシリコンデバイスの高集積化に近い将来、物理的限界に到達することが予測されていることから、新しい電子素子材料（一次元分子ワイヤー）としての期待が持たれている。そこで、本学位論文において申請者は DNA を新しい電子素子材料としての応用を目指した研究を展開してきた。

まず、電気伝導を評価する上で問題となっていた DNA の塩基配列と構造欠陥について解決するために複数の酵素反応を組み合わせた独自の合成手法を開発することで、欠陥の存在しない長鎖の Poly (dA)・Poly (dT) と Poly (dG)・Poly (dC) の合成を行なった。電気泳動を用いることで、合成した Poly (dA)・Poly (dT) と Poly (dG)・Poly (dC) はそれぞれ長さ 1000 (340 nm)~2000 (680 nm) bp、500 (170 nm) bp を有していることが明らかとなった。また CD スペクトルよりこれらの DNA は B-form を形成しており、また、S1 nuclease 処理と STM 観察を行うことでこれらの DNA は欠陥がなく広い範囲にわたって 2 重らせん構造を形成していることが明らかとなった。

次に、電極を必要としない空洞共振摂動法を用いて DNA の電気特性評価を行なった。得られた伝導度は Poly (dA)・Poly (dT) の場合 $10^{-4} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ のオーダーで、Poly (dG)・Poly (dC) の場合 $10^{-1} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ のオーダーを取り、両者の間には 1000 倍の相違が存在することが明らかとなった。このような相違は両者の伝導機構の違いが原因であると示唆される。さらに、DNA の誘電率についてはこれまでに報告されておらず、本研究において Poly (dA)・Poly (dT)、Poly (dG)・Poly (dC) とともに 3~5 の値をとることがはじめて明らかとなった。これらの結果から DNA の電気伝導度は半導体領域に属しており、他の導電性高分子と同様によう素などのドーパントをドーピングすることで伝導度を制御し、電子素子材料としての応用が期待できる。

最後に、DNA をシリコン基板表面上にパターニングさせることで新しい電子素子の構築を目指した研究を展開した。DNA 分子は MgCl_2 を加えることで自己組織化構造を SiO_2 表面上に形成したが、 SiH 表面上には形成しなかつ

た。さらに、この自己組織化構造は MgCl_2 の濃度によってメッシュサイズやネットワークの太さを制御することができる。また、DNA 溶液中の MgCl_2 濃度を 0.1 mM に調整することで作製した SiO_2/SiH パターンにおいて DNA 分子を SiO_2 表面に選択的に吸着させることに成功した。これらの結果から SiO_2/SiH パターン上に形成する DNA 自己組織化構造は SiO_2 表面（親水性）と SiH 表面（疎水性）における吸着速度の違いよりも両表面の化学的性質の差によることが明らかとなった。このパターンニングを応用することで、シリコンテクノロジーと融合した DNA 分子素子が開発できると期待される。

論文審査の結果の要旨

生体分子の研究における原子間力顕微鏡 (AFM) の有用性はわかっているが、観察だけでおわる研究が多くそこから新しい知見を得るのは難しい。申請者はベシクルの研究において、80 nm のベシクルが壊れて 300 nm のベシクルが再構築される事を示唆し、動的光散乱で粒径が二つ観測される原因を解明した。またアミロイド線維の研究においては、線維伸長における seed の役割、線維同士が疎水性相互作用で絡まる等、定性的ではあるが多くの新しい知見を見出している。分析化学の手法の一つとして AFM の有用性を示し、多くの知見を得たことは学術的内容が高く、博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと認める。