



Title	Studies on Synthesis of Polymeric Nanoparticles with Projection Coronas and their Specific Adsorption Behavior
Author(s)	濱田, 和博
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48473
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	はま だ かず ひろ 濱 田 和 博
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 2 1 1 4 1 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 19 年 3 月 23 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科分子化学専攻
学 位 論 文 名	Studies on Synthesis of Polymeric Nanoparticles with Projection Coronas and Their Specific Adsorption Behavior (突起を有する高分子ナノ粒子の合成とその特異的吸着挙動に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 明 石 満 (副査) 教 授 三 浦 雅 博 助 教 授 関 修 平 教 授 茶 谷 直 人 教 授 井 上 佳 久 教 授 馬 場 章 夫 教 授 神 戸 宣 明 教 授 真 嶋 哲 朗 教 授 安 蘇 芳 雄 教 授 芝 田 育 也

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、突起を有する高分子ナノ粒子の1段階合成とその形状制御、そして粒子表面の機能化とその物質吸着特性評価、更に突起を有する高分子ナノ粒子を用いた新規な3次元構造体の作製に関して報告したものであり、緒論、本論4章、結論から構成されている。

緒論では、本研究の背景、目的、そして研究内容の概要について述べている。

第1章では、突起を有する高分子ナノ粒子の合成とその形成メカニズムの解明について述べている。粒子表面に突起が形成した高分子ナノ粒子は、ポリエチレングリコールモノメトキシモノメタクリレート (PEGm)、スチレン、そしてアクリロニトリル (AN) を水/エタノール混合溶媒中で重合することにより作製した。粒子表面の突起は、粒子表面に形成されるポリアクリロニトリル (PAN) ドメインの非平衡膨潤または結晶成長により形成することが示唆された。

第2章では、突起を有する高分子ナノ粒子のサイズや形状を重合溶媒組成の変化により制御したことについて報告している。重合溶媒の水組成が増加するに伴い、粒子サイズと突起数が増加し、突起サイズと突起間距離が減少することが確認された。重合溶媒組成の変化に伴うナノ粒子の形状変化は、粒子表面に存在する PAN ドメインの溶解性と PEGm 鎖の運動性が大きく影響していることが示唆された。

第3章では、突起を有する高分子ナノ粒子の表面機能化とその物質吸着特性について報告している。突起を有する高分子ナノ粒子の機能化 (カルボキシル基の導入) は、重合の際にポリメタクリル酸マクロモノマーを用いることにより行なった。カルボキシル基が導入された突起を有する高分子ナノ粒子は、同サイズの球形ナノ粒子よりもタンパク質の非特異吸着を抑制し、共有結合により効率よく固定化することが可能であった。また、突起を有する高分子ナノ粒子は、赤血球 (10 μ m) とヒト免疫不全ウイルス1型 (HIV-1) (100 nm) が共存する条件下において、HIV-1のみを優先的に捕捉することが可能であった。このサイズ依存的な物質吸着特性は、高分子ナノ粒子の非球形化に伴う表面構造変化により発現していることが示唆された。

第4章では、突起を有する高分子ナノ粒子を用いた3次元構造体の作製について報告している。特定の突起サイズを有する高分子ナノ粒子は、凍結乾燥することにより様々な形状の3次元構造体を作製することが確認された。作製された3次元構造体の中でも球状の構造体は、中空構造を有しており攪拌処理を行なっても崩壊することなく非常に高い安定性を有していることが確認された。この3次元構造体の高い安定性は、高分子ナノ粒子の非球形化に伴う接触面積の増加、または粒子表面に存在する PEGm 鎖の結晶化により得られていることが示唆された。

結論では、得られた主な成果とその意義についてまとめている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、突起を有する高分子ナノ粒子の1段階合成とその形状制御、そして粒子表面の機能化とその物質吸着特性評価、更に突起を有する高分子ナノ粒子を用いた新規な3次元構造体の作製に関して報告した論文である。得られた主な成果を要約すると以下のようになる。

第1章では、突起を有する高分子ナノ粒子の合成とその形成メカニズムの解明について述べている。親水性のマクロモノマーであるポリエチレングリコールモノメトキシモノメタクリレート (PEGm)、疎水性のコモノマーであるスチレン、そして結晶性のモノマーであるアクリロニトリル (AN) を用いることにより、粒子表面に突起が均一に形成された高分子ナノ粒子を1段階で作製した。粒子表面に形成される突起は、粒子表面に形成される PAN ドメインの非平衡膨潤または結晶成長により形成することが示唆された。

第2章では、重合溶媒組成を変化させることにより粒子形状を自由に制御したことについて述べている。重合溶媒組成の変化に伴うナノ粒子の形状変化には、粒子表面に存在する PAN ドメインの溶解性と PEGm 鎖の運動性が大きく影響していることが示唆された。

第3章では、突起を有する高分子ナノ粒子の表面機能化とその物質吸着特性について述べている。突起を有する高分子ナノ粒子の表面機能化は、ポリメタクリル酸マクロモノマーを導入することにより行なった。カルボキシル基が導入された突起を有する高分子ナノ粒子は、同サイズの球形ナノ粒子よりもタンパク質を共有結合により効率よく固定化することが可能であり、更に、サイズ依存的な物質吸着特性を有することが確認された。

第4章では、突起を有する高分子ナノ粒子を用いた3次元構造体の作製について述べている。特定の突起サイズを有する高分子ナノ粒子を凍結乾燥することにより、空気中でも安定に存在することが可能な様々な形状の3次元構造体を作製することが可能であった。

以上のように本論文で報告した、突起を有する高分子ナノ粒子は優れた物質吸着特性を有し、球形では発現しない特異的な性質を有していることが確認された。本研究は、ナノ粒子の形状が物質吸着特性などへ与える影響を知るための重要な知見を提供すると考えられる。

よって本論文は、博士論文として価値あるものと認める。