



Title	ナノ粒子の高分散担持による静電紡糸不織布の機能化と酵素固定化担体への応用
Author(s)	澤田, 光一
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/53957
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (澤田 光一)	
論文題名	ナノ粒子の高分散担持による静電紡糸不織布の機能化と酵素固定化担体への応用
<p>論文内容の要旨</p> <p>静電紡糸不織布は、多量の酵素を固定でき効率的な連続反応プロセスへの適用が可能な酵素固定化担体として期待されている。静電紡糸不織布の繊維表面の多孔性を向上することにより、更なる固定化量の増加を行い飛躍的な反応効率の向上が可能となると考えられる。そこで本研究では、静電紡糸不織布へのナノ粒子の担持を通じた機能化を検討し、特に酵素固定化量の向上を目的にしたメソ細孔(細孔径2-50 nm)を多数有する多孔質静電紡糸不織布の開発、および固定化した酵素をその場脱離する技術を用いて静電紡糸不織布をリサイクルするシステムの開発を行った。第2章では、ポリビニルアルコール(PVA) 静電紡糸不織布への酵素の固定化と流通反応系に関する検討を行った。PVA溶液は紡糸効率が低いことが課題であった。この原因として紡糸溶液が水を溶媒としており、表面張力が高いことが紡糸効率を制限していると考えられた。そこで水と混和する<i>N, N</i>-ジメチルホルムアミドを10%添加することにより表面張力を低減し静電紡糸効率を飛躍的に向上することに成功した。次に第3章では、第2章にて得られた知見に基づき直径15 nmのシリカナノ粒子を担持し鋳型としてメソ細孔を形成することで、$1.33 \text{ cm}^3/\text{g}$と大きなメソ細孔容積を有する不織布を調製することに成功した。第4章、第5章では、静電紡糸不織布への粒子径 5 nm以下の金ナノ粒子の担持とその触媒活性を通じて不織布のリサイクルを行うシステムの開発を行った。第4章では、塩化金酸と高分子溶液を静電紡糸し、紫外線照射により塩化金酸を還元することで、5 nm以下の粒子径の金ナノ粒子を高分散担持した。担持した金ナノ粒子が 4-ニトロフェノールの還元反応において触媒活性を示すことを明らかにした。第5章では、金ナノ粒子表面にて触媒的に塩化金が還元される無電解金メッキ法を用いて金メッキ不織布を作製した。さらに金表面にチオール化合物が化学吸着し自己組織化単分子(SAM)膜を形成することを利用し、アミノ基末端を有するSAM膜を形成しグルタルアルデヒド処理により酵素を共有結合固定した。不織布に固定した酵素の単位体積当たりの酵素活性を金箔に担持した場合と比較した結果、225倍高い酵素活性を示し、非常に優れた酵素固定化担体であることを明らかにした。さらに、SAM膜が電圧印加により脱離することを利用して不織布からの酵素の脱離と新しい酵素の固定化を行うことにより不織布のリサイクルに成功した。</p> <p>以上、本研究は、静電紡糸不織布へのナノ粒子の担持を行い、酵素固定化担体としての機能強化と電気化学的処理による担体の簡便なリサイクル手法の開発に成功した。本研究で得られた知見は、酵素固定化担体としての静電紡糸不織布の利用分野を拡大し、酵素反応が関与する生物プロセスの進展に貢献すると期待される。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (澤 田 光 一)			
論文審査担当者	(職) 氏 名		
	主 査	教 授	田谷 正仁
	副 査	教 授	西山 憲和
	副 査	教 授	平井 隆之

論文審査の結果の要旨

本論文では、静電紡糸不織布へのナノ粒子の担持による機能化を図り、酵素固定化量の向上を目的にしたメソ細孔を多数有する多孔質静電紡糸不織布の開発、および固定化した酵素をその場脱離する技術を用いて静電紡糸不織布をリサイクルするシステムの開発を行った。初めに、ポリビニルアルコール(PVA) 静電紡糸不織布への酵素の固定化と流通反応系に関する検討を行った。PVA溶液は紡糸効率が低いことから、水と混和する*N, N*-ジメチルホルムアミドの添加により表面張力を低減し、静電紡糸効率を飛躍的に向上することに成功した。さらに、上記の知見に基づきシリカナノ粒子を鋳型としてメソ細孔を形成することで、大きなメソ細孔容積を有する不織布を調製することに成功した。次に、静電紡糸不織布への金ナノ粒子の担持とその触媒活性を通じて不織布のリサイクルを行うシステムの開発を行った。塩化金酸と高分子溶液を静電紡糸し、紫外線照射により塩化金酸を還元することで金ナノ粒子を高分散担持した。担持した金ナノ粒子が 4-ニトロフェノールの還元反応の触媒活性をもつことを示した。さらに、金ナノ粒子表面で触媒的に塩化金が還元される無電解金メッキ法を用いて金メッキ不織布を作製した。また金表面にチオール化合物が化学吸着し自己組織化単分子(SAM)膜を形成することを利用し、アミノ基末端を有するSAM膜を形成しグルタルアルデヒド処理により酵素を共有結合固定した。不織布に固定した酵素の単位体積当たりの酵素活性を金箔に担持した場合と比較した結果、非常に高い酵素活性を示し、優れた酵素固定化担体であることを明らかにした。さらに、SAM膜が電圧印加により脱離することを利用して不織布からの酵素の脱離と新しい酵素の固定化を行うことにより不織布のリサイクルに成功した。

以上、本論文は、固定化酵素が関与する生物プロセスの進展に寄与するものであり、博士(工学)の学位論文として価値のあるものと認める。