

Title	Design of Membrane Surface of Self-Assembled Vesicles for Selective Alkylation Reaction in Aqueous Media
Author(s)	岩崎, 文彦
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61807
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

論文内容の要旨

氏名 (岩崎文彦)

論文題名

Design of Membrane Surface of Self-Assembled Vesicles for Selective Alkylation Reaction in Aqueous Media
(水中における選択的アルキル化反応のための自己組織化ベシクルの膜表層の設計)

論文内容の要旨

ベシクルは水中で両親媒性分子が自己組織的に形成する分子集合体であり、非極性・極性環境が凝縮した2分子膜界面 (約5 nm) から構成される。ベシクル膜の物理化学的な特性は温度や構成分子に応じて容易に改変する事が可能であり、膜表層の親水-疎水界面を各種の化学プロセスの場として活用する研究例も報告されている。本研究では各種のアルキル化反応をモデルケースとし、水溶媒中での反応収率や選択性を向上させるためのベシクル膜表層の設計指針を確立することを目的とする。

第1章では、ベシクル膜のミクロな特性を解析する方法論を示した。膜の特性によって基質の分配挙動が制御され、また基質の分配に伴い膜に分配した基質周辺の水和環境が変化することを明らかにした。第2章では、膜特性の違いによる反応への影響を検討するため、ベシクルを共存させた際の環化付加反応挙動を評価した。基質分配に有利な膜環境と反応進行に有利な膜環境が異なるため、反応基質分配による膜特性変化が膜表層での反応制御のための重要なファクターとなっている可能性を見出した。第3章では、不斉選択的なアルキル化反応を検討した。水-有機溶媒二相系ではラセミ体が得られる反応において、ベシクルを共存させることで高い不斉選択性を達成した。この結果からベシクルと反応基質の相互作用についてのモデルを提案し、選択的反応に必要な不可欠な複数の相互作用を明らかにした。第4章では、より広く界面の特性を変化させるために界面活性剤ベシクルの調製ならびに特性評価を行った。界面活性剤ベシクルは従来のリン脂質ベシクルと異なった膜環境を形成し、認識場や反応場としてのベシクルの役割を拡大できる可能性を見出した。第5章では、界面活性剤ベシクルを利用して選択的アルキル化反応を検討した。ベシクルが形成する環境によって生成物の選択性や転化率が異なることから、界面のデザインが非常に重要であることを明らかにした。

以上の様に、本論文では各種のアルキル化反応をケーススタディに選択し、反応場として適切な膜環境をデザインする手法の一端を明らかにした。本研究で示した結果および方法論は自己集合系を反応場とするプロセス設計に留まらず、工業スケールでの親水-疎水界面の制御ならびに界面設計にもつながるものと期待される。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (岩 崎 文 彦)		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教 授 馬越 大
	副 査	教 授 實川 浩一郎
	副 査	教 授 松林 伸幸
	副 査	教 授 西山 憲和

論文審査の結果の要旨

ベシクルは水中で両親媒性分子が自己組織的に形成する分子集合体であり、非極性・極性環境が凝縮した2分子膜界面 (約5 nm) から構成される。水溶媒中でベシクル膜表層を選択的な反応プロセスの場として活用するためには、ベシクルを構成する分子と反応基質間の相互作用について詳細に検討する必要がある。また、ベシクルを反応場として実際に反応プロセスに適用するためには、体系的な膜デザインの設計指針を立てることが必要不可欠である。

本学位論文では、ベシクルと反応基質の相互作用ならびにそれに伴うベシクル膜特性の変化や選択的な反応への展開について検討されており、選択的な反応のためのベシクル膜デザイン設計の指針を提案している。第1章、第2章では膜の特性によって基質の分配挙動が制御され、また基質の分配に伴い膜に分配した基質周辺の水和環境が変化することを明らかにした。また、膜の特性がリポソーム膜表層で行われる反応に大きく影響することを明らかとし、基質分配に伴う膜特性変化が重要な因子となっている可能性を見出した。第3章では不斉選択的なアルキル化反応を検討し、水-有機溶媒二相系ではラセミ体が得られる反応においてリポソームを共存させることで高い不斉選択性を達成した。この結果からベシクルと反応基質の相互作用についてのモデルを提案し、選択的な反応に必要な不可欠な複数の相互作用を明らかにした。第4章では、より広く界面の特性を変化させるために界面活性剤ベシクルの調製ならびに特性評価を行い、第5章で界面活性剤ベシクルを活用した選択的なアルキル化反応について検討された。ベシクルが形成する環境によって生成物の選択性や転化率が異なることから、界面のデザインによって反応の結果が制御される可能性が示された。

以上の様に、本学位論文では、ベシクルを選択的な分子変換反応の場として活用するための重要な因子を明らかにしており、またベシクル膜表層設計のための指針についても示されている。よって、博士 (工学) の学位論文として価値のあるものと認める。