

DNA構造材料の設計指針に関する研究

盛満, 裕真

<https://hdl.handle.net/2324/4060133>

出版情報：九州大学, 2019, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏 名 : 盛満 裕真

論 文 名 : DNA 構造材料の設計指針に関する研究

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

高分子材料は、軽量かつ高強度であるため、構造材料として自動車部材に用いれば軽量化、低燃費化を実現でき、ひいては CO₂ 排出量の抑制が期待できる。また、天然由来高分子は、高い生分解性を有するため、構造材料に応用展開できれば環境低負荷なサイクルが実現でき、持続可能な消費と生産のパターンの実現へ貢献できると期待する。高分子材料の力学特性は、分子鎖凝集構造に強く依存しており、天然高分子の応用展開においても、これらの相関に関する知見の蓄積が重要である。本論文では、食品廃棄物中に多量に含まれるデオキシリボ核酸(DNA)に着目した。DNA は、溶媒キャスト法に基づき、透明な自己支持膜を形成でき、含水率を調整することで力学特性を制御できることが明らかになっている。また、その特異な構造に起因して、生体適合性・多官能性に加え、薬剤担持性などの特徴を有し有望な天然高分子である。しかしながら、DNA 固体膜の応用展開には、その力学特性の更なる向上と安定化が求められる。

本論文では、種々の手法に基づき DNA 固体膜の力学特性の向上および安定化を検討し、高分子の構造と物性の相関に関する基礎的知見を得ることで、DNA 構造材料の設計指針を提案することを目的とした。

第1章では、本論文の背景および目的を述べた。

第2章では、DNA に分子鎖間架橋を導入することで、その固体膜の高靱性化を試みた。還元的アミノ化反応に基づき DNA に分子鎖間架橋を導入し、その直接観察を行った。高含水率において、DNA 固体膜の引張特性に架橋効果が顕著に現れた。具体的には、ヤング率および降伏応力が向上し破断ひずみが低下した。高含水率 DNA 固体膜を延伸すると、分子鎖の配向および分子鎖間距離(d_s)の減少が起こるが、架橋点の導入によりこれらが抑制されることを見出した。その結果、ヤング率および降伏応力は増加したと結論した。

第3章では、水和リン酸二水素コリン(CDP)を用いることで DNA 固体膜の力学特性の安定化を試みた。DNA に対する CDP の混合比を変化させた DNA/CDP (DC)膜を作製した。CDP 含率に比例し d_s が増加することを明らかにした。CDP 含率を調整することで DC 膜の引張特性はガラス状、半結晶性、ひいてはゴム状高分子様に至るまで制御でき、かつ安定であることを明らかにした。CDP 含率の増加に伴いひずみ増加に対する d_s の減少幅が小さくなることも明らかにした。引張挙動はひずみ増加に対する d_s の減少幅に依存すると結論した。

第4章では、固体界面への DNA 鎖の吸着機構を検討した。DNA 鎖は溶液中の持続長や回転半径を保持したまま固体界面に吸着した。長い DNA 鎖の吸着過程では、先行して部分的に吸着した鎖に、他の鎖が絡むことで吸着が促進される協同吸着が生じた。吸着層形成過程においては、分子鎖が長い場合、協同吸着や橋架け吸着が進行し、その結果、吸着鎖の脱着が起こりづらく吸着層の形成が速かった。分子鎖が短い場合は、協同吸着が発生しにくく、また十分な接着点を形成できない

ために、橋架け吸着鎖が脱着しやすく、その結果、吸着鎖の交換が起こり、吸着層はゆっくりと形成した。

第5章では、固体界面におけるDNA鎖吸着形態に及ぼす遠心力の効果を検討した。遠心力の増加に伴い、直線的な吸着セグメントの長さが増加した。遠心力印加開始時の高分子鎖の吸着状態が、その後の形態に大きな影響を及ぼすことが分かった。吸着時間が短く僅かな吸着点しか有していない鎖は、遠心力の効果を顕著に受け、多くのセグメントが遠心方向に配向した。吸着時間が長く、多くのセグメントが良く吸着している場合、遠心力の効果を受けにくいことも明らかにした。

第6章では、無機フィラーの添加に基づき、DNA固体膜の力学特性を向上させることを目的とし、フィラー界面におけるDNA鎖の凝集状態について検討した。分子量の異なるDNAを用いてDNA吸着シリカ粒子を調製し、それぞれのシリカ粒子を含有させたDC膜を調製した。長いDNA鎖を吸着させたシリカ粒子を含有したDC膜では、界面吸着DNA鎖と粒子近傍の鎖との絡み合いが強くなり、DNA鎖が流動する際のエネルギーバリアが増加することで降伏応力が増加すると結論した。

第7章では、第1章から第6章までを総括した。