

論文内容の要旨

博士論文題目

多能性超小型球殻状タンパクによる無機ナノ機能構造作製に関する研究

氏名 上武 央季

(論文内容の要旨)

ナノ粒子の高密度配列構造は、情報やエネルギーの貯蔵、量子伝達の制限、新規物性発現等への様々な応用が期待されている。ナノ粒子の材料表面特性に依存しない汎用的配列構造作製技術は、粒子材料由来の機能を示す多様なナノ粒子配列を同一プロセスで実現するため、機能性ナノ構造開発の鍵となる。本研究では様々なナノ粒子を内部に形成できる超小型球殻状タンパク Dps に着目し、汎用的な高密度ナノ粒子配列構造作製手法の確立を目指した。

水溶液中での分散性が高い *Listeria innocua* 由来の Dps を遺伝子改変し、Dps 表面に SiO₂ 吸着能力を付加することで、高密度ナノ粒子二次元配列構造の形成に特化した変異タンパク (Ti-binding *Listeria innocua* Dps:TLiD1) を作製した。直径約 3 nm のコバルト酸化物ナノ粒子を内包した TLiD1 をスピコートすることで、Si 基板上に 1.2×10^{12} dot/cm² と高密度なナノ粒子二次元配列を形成した。この高密度ナノ粒子二次元配列構造を電荷蓄積層とするフローティングゲートメモリは良好な書込み特性を示した。これは粒子サイズの減少による書込み実行電圧の上昇と、電荷を蓄積するナノ粒子の高密度化による影響であると考えられる。

大腸菌由来の Dps は DNA と結合して結晶化し、Dps に内包されたナノ粒子は三次元的に配列される。本研究ではこの Dps-DNA 自己組織化現象を利用した高密度ナノ粒子三次元配列構造作製プロセスを提案した。吸光度測定と TEM 観察の結果から、Dps-DNA 自己組織化はバッファー濃度変化により制御できることが明らかになった。Dps に内包されていた直径 3 nm の鉄酸化物ナノ粒子は、自己組織化過程で三次元的に配列されていた。最後に自己組織化を DNA 修飾基板上で誘発し、ナノ粒子三次元配列構造を基板上に作製した。本プロセスでは Dps 表面に TiO₂ 析出能力を付加した変異タンパク (Ti-binding *E. coli* Dps:TED1) を用いた。自己組織化によって基板上に高密度ナノ粒子三次元配列構造を形成し、その後の TiO₂ 析出プロセスでこのナノ構造体を固定化できた。基板上の DNA 未修飾領域ではナノ構造が形成されず、選択的なナノ構造形成が確認された。

氏名	上武 央季
----	-------

(論文審査結果の要旨)

本論文は、機能性ナノ構造である高密度ナノ粒子配列構造の作製に関する研究である。ナノ粒子の高密度配列構造は、情報やエネルギーの貯蔵、量子伝達の制限、新規物性発現等への様々な応用が期待されている。ナノ粒子の材料表面特性に依存しない汎用的配列構造作製技術は、粒子材料由来の機能を示す多様なナノ粒子配列を同一プロセスで実現するため、機能性ナノ構造開発の鍵となる。本研究では様々なナノ粒子を内部に形成できる超小型球殻状タンパク Dps に着目し、汎用的な高密度ナノ粒子配列構造作製手法の確立を目指した。本論文は上記の背景と目的を述べた第 1 章から始まり、5 つの章から構成されている。

第 2 章では分散性が高い *Listeria innocua* 由来の Dps を遺伝子改変し、Dps 表面に SiO₂ 吸着能力を付加することで、二次元配列構造の形成に特化した変異タンパク TLiD1 を作製した。直径 3 nm のコバルト酸化物ナノ粒子を内包した TLiD1 分散溶液の塗布により Si 基板上に 1.2×10^{12} dot/cm² と高密度なナノ粒子二次元配列を形成した。この二次元配列構造を電荷蓄積層とするフローティングゲートメモリは良好な書込み特性を示した。これは粒子サイズの減少による書込み実行電圧の上昇と、電荷を蓄積するナノ粒子の高密度化によると考えられる。

第 3 章では大腸菌由来の Dps と DNA の自己組織化現象について調査した。Dps-DNA 自己組織化により、Dps に内包されるナノ粒子は三次元的に配列される。吸光度測定と TEM 観察の結果から、Dps-DNA 自己組織化はバッファー濃度変化により制御できることが明らかになった。Dps に内包されていた直径 3 nm の鉄酸化物ナノ粒子は、自己組織化過程で三次元的に配列されていた。

第 4 章では Dps-DNA 自己組織化現象を利用した高密度ナノ粒子三次元配列構造作製プロセスを提案した。本プロセスでは Dps 表面に TiO₂ 析出能力を付加した変異タンパク TED1 を用いた。自己組織化を DNA 修飾基板上で誘発させ、基板上に高密度ナノ粒子三次元配列構造を形成し、その後の TiO₂ 析出プロセスで基板上に形成されたナノ粒子三次元配列構造を固定化できた。基板上的 DNA 未修飾領域ではナノ構造が形成されず、選択的なナノ構造形成が確認された。

以上のように本論文は高密度ナノ粒子配列構造の作製に向けて、新規手法を考案し、その有効性を実証しており、学術的に意義深い。よって審査員一同は本論文が博士（工学）の学位論文として価値あるものと認めた。