

論文審査の結果の要旨

氏名：呉 鵬

博士の専攻分野の名称：博士（生物資源科学）

論文題名：食品由来の生体高分子の複合化と糖鎖ネットワークの制御による分子認識機能膜の開発

審査委員：(主査) 教授 今井正直

(副査) 教授 小田宗宏 教授 松宮政弘

上記の学位申請者による本申請論文は、食品由来の生体高分子の複合化と、高分子の基本骨格をなす糖鎖ネットワークの制御によって、鋭敏な分子分画機能を有する高分子膜を新規に調製し、多段膜分離プロセスを構築して生物資源由来の生理活性成分の分離・精製の可能性を提案したものである。

海洋性ポリマーの chitosan、並びに海藻由来の κ -carrageenan と pullulan 由来のプルランは共に生体高分子として食品に存在し、安全性並びに生体適合性に優れた高分子素材である。学位申請者は chitosan については、製膜時の流延液中に silica 微粒子を混合し、膜の厚さ方向に非対称の空隙の存在を可能として、溶媒の透過流束の高速化を図った。また、海藻由来の κ -carrageenan とデンプン由来の pullulan の複合化によって高分子膜を調製し、膜が分子サイズの違いを鋭敏に認識する機能を有することを明らかにした。

(1) 改質 chitosan 膜の調製

本研究の改質 chitosan 膜では、silica 微粒子を製膜時の流延液中に分散させ、粒子の存在を鋳型とすることによって、膜の厚さ方向に非対称の空隙の存在を可能とし、平滑な表面を有する一方、反対側の膜表面に微細な凹凸構造を形成し、膜の機械的強度を損なうことなく安定な自立膜として再現性良く調製することに成功した。

(2) 改質 chitosan 膜の溶媒の高速透過

改質 chitosan 膜の純水の透過流束は改質しない chitosan 膜に比べて約 1.4 倍の高流束を実現し、一枚の膜面積の処理能力の向上を図ることに成功した。また、代表的タンパク質として、牛血清アルブミン水溶液の透過を試みたところ、タンパク質の存在によって流束の低下は見られても、なお、改質していないキトサン膜の純水の透過流束に勝る溶媒の高速透過を実現できることが確認された。これは分離プロセスの上流側を担当する物質分離膜として優れた特性であり、本研究のオリジナリティーである。

(3) κ -carrageenan/pullulan 複合膜の調製と高度分子サイズ認識能力の実現

pullulan 単独系では脆弱なゲル膜であるが、 κ -carrageenan を基材として共存させることにより、湿潤状態でも安定な自立膜の調製に成功した。機械的強度も実用に耐える弾性を有している。純水の透過挙動は圧力の一次に比例する透水性を示し、水溶性の物質分離膜としての可能性が認められた。

(4) κ -carrageenan/pullulan 複合膜の鋭敏な分子サイズ認識能力の実現

分子量 60Da から 1017Da の範囲で、膜内の有効拡散係数が 15000 倍に変化する鋭敏な分子分画機能を有することをこの分野で初めて明らかにした点は本研究のオリジナリティーである。また、 κ -carrageenan の質量存在割合を制御因子として、膜内の有効拡散係数が変化することが認められた。鋭い有効拡散係数の差によって低分子成分の速度差分離が実行できることは分離プロセスの下流側を担当する物質分離膜として優れた特性である。

生物資源から機能性成分を分離する場合、多成分共存系から目的成分を取り出す工程が連続しており、その中であって、膜分離は熱的に温和な条件で残留溶媒の懸念なく利用できるプロセスとして有益である。

従来は、膜面上に不溶性成分の蓄積によって溶媒の透過流束の低下が実用上の課題であったが、本研究は改質 chitosan 膜によってこれを克服する実践的解決を提案している。

また、 κ -carrageenan/pullulan 複合膜では、鋭敏な分子分画機能を有することをこの分野で初めて明らかにしている。両者の高分子膜を多段膜分離プロセスに応用することにより、物質分離の上流側で改質 chitosan 膜によって、大きい分子量の物質を溶媒の高速透過で分離し、下流側で κ -carrageenan/pullulan 複合膜の有効拡散係数の差によって低分子成分の精密な速度差分離が実行できることを示している。

上記の研究成果は申請者を筆頭著者とする審査を経た英文原著論文として 2 件、英文著書 1 件、英文総説 1 件として公表され、国際学会では口頭発表者の指名を受けて 4 回発表している。提出された学位請求論文は本研究の内容と独創性を体系的にまとめており、審査員の指摘にも適正に対応して改善が図られている。

本研究の独創性と、日本留学によって開花した申請者の研究者としての公正で旺盛なアクティビティーは博士（生物資源科学）の学位授与に値するものと認める。

よって本論文は、博士（生物資源科学）の学位を授与されるに値するものと認められる。

以 上

平成26年2月7日