【81】

氏　名（本籍）	池（いけ）　祐（ゆう）治（じ）（福岡県）
学位の種類	博　士（工　学）
学位記番号	博　甲　第　4895　号
学位授与年月日	平成21年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	**Dynamics of Biomaterials Probed by Ultra-broadband Spectroscopy** （超広帯域分光法による生体関連物質のダイナミクス）

主　査	筑波大学教授	理学博士	小　島　誠　治
副　査	筑波大学准教授	Ph. D.	小　泉　裕　康
副　査	筑波大学准教授	工学博士	松　石　清　人
副　査	筑波大学准教授	博士（工学）	長　谷　宗　明

論文の内容の要旨

無秩序性を持つ複雑系の科学は，そのダイナミクスが広い周波数帯にわたって起こるのが特徴である。最近は大規模計算が可能となりこのような複雑系の構造安定や，揺らぎ，ダイナミクスについての理論研究が盛んに行われている。しかし，実験において運動の極めて速いテラヘルツ帯から極めて遅いミリヘルツ帯まで同じ試料でそのダイナミクスが調べられたことはなかった。本論文では，新しい測定手法であるテラヘルツ時間領域分光法，顕微ブリルアン散乱法，並びにラマン分光法，温度変調型示差走査熱量計を用いてテラヘルツからミリヘルツに至るきわめて広い周波数帯において生体凍結保護物質の液体・ガラス転移とタンパク質結晶のダイナミクスを初めて明らかにした独創性と新規性の高い優れた研究である。

テラヘルツ時間領域分光法は，長短パルスレーザーの開発により可能となった今世紀の新しい分光法として注目されている。その特徴は従来のインコヒーレントな光源を用いる遠赤外分光法とは異なり透過信号の振幅が測れるだけではなく，フェムト秒パルスレーザーによる光伝導アンテナの励起によってコヒーレントなテラヘルツ光の発生が可能となり，その位相も正確に測れることになった点にある。この長所によりテラヘルツ領域の複素誘電率において実部と虚部を同時に決めることが可能である。しかし従来の方法では，時間領域の信号から周波数領域の感受率に変換するときに複数の解があり，一意的に複素誘電率を求めることはできなかった。本研究では Dual Thickness Geometry という新しい手法により液体試料の複素誘電率を任意性なく決めることに成功し，この手法を生体凍結保護物質のテラヘルツ帯における緩和現象に初めて適用した。ガラス化傾向が高く生体分子を低温下で保存するときに有用なエチレングリコール水溶液では，テラヘルツ帯のダイナミクスをエチレングリコールの濃度の関数として明らかにし，低温凍結保護物質の物性理解に新たな知見を加えた。また，ラマン分光法と広帯域ブリルアン散乱法により同じ周波数帯の光散乱実験も併せて行い，異なるダイナミクスにより選択性が異なるノンコインシデンス効果も明瞭に観測できた。

一方，顕微ブリルアン散乱法は反射型光学顕微鏡と高いコントラストのタンデムマルチパス型ファブリ・ペロー干渉計からなる高分解分光器を組み合わせることにより，極めて微小な結晶の弾性的性質やギガヘルツ帯のダイナミクスを捕らえることができる。一方，タンパク質結晶の弾性的性質については大型の単結晶

が得られないために，測定は音速のみで吸収係数は測れずまた室温における不十分なデータしか得られなかった。本研究では，顕微ブリルアン散乱法を用いて数百ミクロンの微小なタンパク質結品について測定を行い音速だけではなく音波吸収も正確の測定できるようにした。さらに小型冷凍機と組み合わせて低温から高温に至るタンパク質結晶，並びに生態凍結保護物質の広い温度範囲における音波物性の同時測定に初めて成功した。このことにより，溶液中で機能を発現するタンパク質分子と溶媒分子の共同運動のダイナミクスについての新しい知見を得るとともに，そのダイナミクスが溶媒分子の構造により顕著に変わることを明らかにした。このようにタンパク質と溶液の物性を同時に測ることのできる顕微ブリルアン散乱は，溶液中で機能を発現するタンパク質の研究に新しい手法をもたらしたといえる。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は，21 世紀の新しい先端的分光法として注目されているフェムト秒パルスレーザー励起によるテラヘルツ時間領域分光法，微小領域の弾性的性質を非破壊・非接触で測れる顕微ブリルアン散乱法，並びに高分解能ラマン分光法，ミリヘルツ帯の熱緩和を測れる温度変調型示差走査熱量計等の先端的分光手段を用いて，テラヘルツからミリヘルツに至るきわめて広い周波数帯における生体凍結保護物質の液体・ガラス転移，並びにタンパク質結晶のダイナミクスを初めて明らかにした独創性と新規性の高い優れた研究である。生体凍結保護のための高いガラス化傾向を持つことから，生体凍結保護物質（cryoprotectant）として期待されているエチレングリコール水溶液では，そのガラス化の前駆現象である液体状態における複数の緩和モードを広帯域分光手段により初めて明らかにし，生体凍結保護物質の新たな物性理解に重要な貢献をした。さらに，代表的なタンパク質であるリゾチームの結晶については，低温でガラス化の可能なエチレングリコール水溶液を溶媒として用いることにより高温から低温に至る広い温度範囲でブリルアン散乱を詳しく調べ，溶媒と結晶それぞれのブリルアンピークの分離に成功し，その両者の音波物性を同時に観測することに成功した。この結果，溶媒はガラス転移を起こすのに対して，タンパク質結晶ではタンパク質分子と溶媒分子の界面近傍における分子の共同運動が，低温で凍結することを明らかにした。これらの成果は，低温凍結保護物質並びに蛋白結晶の定温における動的揺らぎを同時に実験的に捕らえた重要な研究であり，今後の生物物理学，タンパク質工学等の進歩に大きく貢献できると考えられる。

よって，著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。