

A Thesis for the Degree of Ph.D. in Engineering

Development of bioinspired molecular systems
inducing emergent dynamics of soft matter

January 2025

Graduate School of Science and Technology
Keio University

Tomoya Kojima

主 論 文 要 旨

No.1

報告番号	甲 乙 第	号	氏 名	小島 知也
主 論 文 題 名： Development of bioinspired molecular systems inducing emergent dynamics of soft matter (ソフトマターの創発的なダイナミクスを誘導するバイオインスパイアード分子システムの開発)				
(内容の要旨) 生体システムでは、複数の分子が集合し化学反応ネットワークが形成されることで、生命の特徴である動的な挙動（ダイナミクス）が発現している。したがって、生命システムは化学の観点から「分子システム」と解釈することができる。このような分子システムを模倣し理解するために、これまでベシクル、コアセルベート、エマルション液滴といったソフトマターと呼ばれる柔らかい物質群を用いたバイオインスパイアード化学システムが報告されてきたが、ミクロスケールな分子の緻密な設計に基づきソフトマターの巨視的なダイナミクスを誘導することは困難であった。本研究では分子の観点から設計を行うことで、ソフトマターのダイナミクスを誘導する分子システムを開発した。 第1章では、ソフトマターを用いた化学システムを概括し本研究の目的を示した。 第2章では、多数のベシクルからなる組織様集合体の創製を目的とした。ベシクル間で働くミクロスケールな分子間相互作用を設計することにより、複数のベシクル同士の接着およびそれに伴うマクロスケールなベシクル組織の創製を達成した。 第3章では、第2章で創製したベシクル組織の形状制御困難な課題を克服すべく、組織のファイバー形状への成形を目的とした。ベシクル間で働く分子間相互作用を設計し密に詰まったベシクルを細孔から押し出すことで、ファイバー状組織の創製を達成した。 第4章では、ベシクル膜の透過性を制御可能な酸化還元応答性の高分子ベシクルの開発を目的とした。ベシクル膜を構成する高分子のミクロスケールな架橋反応を設計することで、マクロスケールなベシクル膜の構造変化の誘起を達成した。 第5章では、光照射に伴いベシクルーコアセルベート間を相転移する化学システムの開発を目的とした。光応答性両親媒性分子のミクロスケールな分子構造変化を設計することで、マクロスケールなソフトマター間の構造転移の誘起を達成した。 第6章では、多数のエマルション液滴による集団挙動の誘起を目的とした。光応答性界面活性剤分子のミクロスケールな分子構造変化を設計することで、液滴周囲で生じた対流間の相互作用に基づくマクロスケールな液滴間の集団挙動を達成した。 第7章では、本研究の結論および展望について示した。				

Thesis Abstract

No. _____

Registration Number	☒ "KOU" ☐ "OTSU" No. _____ *Office use only	Name	Tomoya Kojima
Thesis Title			
Development of bioinspired molecular systems inducing emergent dynamics of soft matter			
Thesis Summary			
In biological systems, multiple molecules assemble to form hierarchical biological structures, and within them complex chemical reaction networks between molecules are formed to induce dynamic behavior and metabolism which are characterized in life. Thus, biological systems can be interpreted as "molecular systems" from the viewpoint of chemistry. To imitate and understand such molecular systems observed in life, soft matter has been used because soft matter is a material with softness, such as vesicles, coacervates, and emulsion droplets, which can be adaptive to external stimuli and environment. Recent research reported bioinspired artificial chemical systems using soft matter where life-like adaptive behavior emerged. However, it remained to be difficult to construct and understand macroscopic life-like dynamic phenomena in soft matter based on the design of microscopic molecules due to the high complexity. In this study, bioinspired artificial molecular systems with the emergence of dynamics in soft matter were developed by focusing on intermolecular interactions and molecular conversions. In Chapter 1, details about understanding biological systems as "molecular systems" were described. In addition, recent research on developing bioinspired artificial chemical systems was overviewed, and the objective of this research was described. In Chapter 2, the aim was to create and engineer tissue-like structures where multiple vesicles assembled. Vesicle-to-vesicle adhesion and successive creation of macroscopic vesicle-based tissues were achieved by designing specific microscopic intermolecular interactions between vesicles. In Chapter 3, the aim was to fabricate the abovementioned vesicle-based tissues into fiber shapes to conquer the difficulty in controlling shapes. Fibrous tissues were obtained by extruding concentrated vesicles with pipettes, which showed manipulation functionalities and signal transduction. In Chapter 4, the aim was creation of redox-responsive vesicles composed of polymers where membrane permeability could be controlled, inducing controlled cargo release. Macroscopic changes in membrane structures were achieved by microscopic crosslinking reactions of the polymer molecules. In Chapter 5, the aim was to develop a phase transition between vesicles and coacervates in response to light. The macroscopic transition of different soft matter was achieved by drastic changes in the microscopic molecular structures of photoresponsive amphiphiles. In Chapter 6, the aim was induction of collective motion using multiple emulsion droplets. The macroscopic phenomenon was achieved by changes in microscopic molecular structures of photoresponsive surfactants and interaction of generated specific convection around droplets. In Chapter 7, the conclusion and outlook of this research were described.			