

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 イファンディニ トリビダサリ アングラニルム

本論文は八章より構成されており、導電性ダイヤモンド電極による生化学物質とその代謝物もしくはそれらの関連化合物の電気化学分析への応用について述べている。主に、クロマトグラフィで分離したものをダイヤモンド電極によって同時検出した研究成果を示している。

第二章は序論であり、前半では電気化学分析におけるダイヤモンド電極の特性と応用について述べている。後半では、液体クロマトグラフィの概要とその検出器に対する制約について解説し、本論文の研究の方向付けがなされている。第三章では、ダイヤモンド薄膜の作製法および電気化学実験系について説明している。また、フローインジェクション分析や HPLC 装置の詳細についても述べている。

第四章では、三環系抗うつ薬とその代謝物を同時検出するために、アイソクラティック HPLC による単純な分離にダイヤモンド電極を利用した結果を述べている。この分析法によって血漿中のイミプラミンとデシプラミンの定量に成功している。

第五章では、より複雑な混合物を分離定量するために、グラジエント HPLC の検出器にダイヤモンド電極を適用した結果を述べている。チロシンペプチドとその代謝物の総称として知られるエンケファリンの同時検出を行った結果について述べている。グラジエント HPLC では移動相の濃度変化があるため、バックグラウンド電流の大きな変動とノイズの増大によって、高感度な電気化学検出が不可能とされているが、ダイヤモンド電極を利用することにより、グラッシーカーボン電極や UV 検出器に比べて、再現性に優れた高感度な検出が可能となった結果を示している。このような検出が可能であることもダイヤモンド電極の優位性を示している。

第六章では、矩形波ボルタンメトリを使ったダイヤモンド電極による未修飾核酸の電気化学特性について述べている。一本鎖と二本鎖 DNA の電気化学的酸化反応において、電極の表面終端、イオン強度、pH そして DNA 構造を検討し、水素終端表面であることが必須であることを見出している。続いて第七章では、DNA の直接的な電気化学測定ではなく、DNA を修飾してプリン塩基およびピリミジン塩基としたものを検出した結果について述べている。これらの検出は電極の終端に関係なく観察され、プリン塩基とピリミジン塩基の酸化電位が非常に異なっていることから、測定電位の選定が重要であることを明らかにしている。ダイヤモンド電極の広い電位窓という特長を活かして、簡便で経済的な検出法の可能性を示唆している。

第八章では、本研究で得られた結果の総括および将来への展望が述べられている。ダイヤモンド電極は HPLC 用の電気化学検出器として効果的に応用され、他の電極材に比べて感度、安定性、そして簡便さといった点において優れていることが示されている。本論文における結果は、生体関連物質の簡便で感度に優れた新規な分析法の可能性を示唆している。本論文で報告されている核酸とそのプリン塩基およびピリミジン塩基の電気化学的酸化反応の結果は、血液分析や医用センサといった医用もしくは科学の分野にダイヤモンド電極がより一層応用展開できることを示唆している。さらに本研究は、未だ完全には解明されていないダイヤモンド電極の電気化学反応について、重要な知見を与えるものであり、また、他の電極では検出が困難なものや問題を引き起こしていた化合物の分析へもダイヤモンド電極が利用できる可能性を示しており、基礎、応用いずれの見地からも高く評価でき、かつこれらの分野における今後の発展に寄与するものと認められる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。