

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名

橋本 雄一郎

本論文は9章からなる。第1章では、本研究の背景となるプロテオミクス研究の経緯を述べ、プロテオミクスへの応用に向けた質量分析技術の諸課題について概説している。続いて、第2章から第4章では、RF イオントラップ中で赤外多光子解離および電子捕獲解離を有効に引き起こすための方法論について述べられている。また、第5章から第8章では、このRF イオントラップと飛行時間型質量分析器との効率的な結合方式について議論している。これらを踏まえた結論および研究の展望が第9章にまとめられている。

第2章、および第3章では、従来著しい感度低下を招いていたRF イオントラップ内部での赤外多光子解離を高感度で実現する方法論が纏められている。レーザー光のフォーカスと衝突励起を併用することにより、低真空下での赤外多光子解離を実現するとともに、それらのメカニズムについてイオン軌道シミュレーションを用いて考察した。更に、イオントラップ時と解離時のトラップ内部の圧力を高速で切り替えることにより、感度やダイナミックレンジを損なうことなく赤外多光子解離が進行することを実証した。

第4章では、従来報告例がなかったRF イオントラップ中での電子捕獲解離を実現する方法論について纏められている。電子捕獲解離は衝突誘起解離と相補的なフラグメントパターンを与える点で有用であるが、RF イオントラップでは電子が加速され、イオンへの電子捕獲が難しいという課題があった。本研究では、リニアイオントラップの軸方向に50 mT程度の磁場を印加し、軸方向から電子を入射することにより、RF イオントラップ内での電子捕獲解離反応が進行することを確認した。

第5章、および第6章では、RF イオントラップと飛行時間型質量分析器との効率的な結合方式について纏められている。RF イオントラップと飛行時間型質量分析器との間に約50 mTorrの衝突ダンピング室を設置して、イオン収束が可能なことをシミュレーションと実験結果により検証した。更にRF イオントラップ、衝突ダンピング室それぞれをリニアイオントラップ化することにより、従来比50倍以上の感度向上を実現した。また、RF イオントラップ内部での圧力低下により、プリカーサーイオンの選択性が向上するメカニズムについても考察した。

第7章、および第8章では、独自なリニアイオントラップの開発と、それを用いることによる直交飛行時間型質量分析器の感度向上について述べている。従来、リニアイオントラップからの排出効率は低い(<20%)課題があったが、本論文では新たなイオン排出方式(軸方向励起リニアイオントラップ)を開発することによりその課題を解決した。羽根状の挿入電極にDC電圧を印加することで軸方向に調和ポテンシャルを形成し、従来より3倍以上高い効率でイオン排出が可能なことを実証し、更に、この軸方向励起リニアイオ

ントラップと直交飛行時間型質量分析器の加速タイミングを同期制御することにより、従来、直交飛行時間型質量分析器では不可能であった広い質量範囲での高感度な測定を実現した。

第9章では、上記の結果を踏まえた本論文の結論および研究の展望が纏められている。最後に、本論文で述べられた手法がプロテオームを始めとした生体分子の解析に広く利用されることを示唆して全体を纏めている。

現在、プロテオーム分野において質量分析技術の果たしている役割は非常に大きく、新たな解離手法を高感度、高分解能で実現した本研究の意義は大きい。また、本研究の開発技術の一部は既に市販の分析装置に実装されているなど実用上の有効性も示している。なお、本論文第2章から第8章は、いずれも他研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験と解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。また、すでにこれらの研究結果は学術雑誌で公表され、高い評価を得ている。よって、本論文は博士(学術)の学位申請論文として合格と認められる。