

(様式11)

論文審査の要旨 (課程博士)

生物システム応用科学府長 殿

審査委員 主査 荻野 賢司 (印)

副査 中田 宗孝 (印)

副査 富永 洋一 (印)

副査 Wuled Lenggoro (印)

副査 赤井 伸行 (印)

学位申請者	<u>物質機能システム学</u> 専修 平成 <u>24</u> 年度入学 学籍番号 <u>12701192</u> 氏名 <u>櫻井 隆郎</u>
申請学位	博士 (工学)
論文題目	Development of simplified colorimetric assay method of liquid aiming for on-site discrimination test of unknown samples (未知試料の現場識別検査法を指向した液体の簡易比色分析法の開発)
論文審査要旨 (2,000 字程度) 第1章では研究の背景及び概要について述べている。成分不明の試料が犯罪現場や、駅、公園等の公共の場所に遺留されていることがあり、このような未知の試料は、成分に関する情報が何もないまま扱うことは受傷、爆発等のリスクがあり非常に危険である。また、その成分を検査するための分析においても、何の情報も得られていない場合には多岐にわたる機器分析を必要とし、その検査結果を得るまでに多大な時間と労力を要する。そのため、成分が不明な物質に関して現場において成分の情報を得るための現場試験法は重要である。現在、現場試験法としては化学テロや爆破テロ、放火等の重要事案を想定したものが広く開発されており、検出対象成分ごとに多くの現場検知法が実用化されている。それらの例として、イオンモビリティスペクトロメーター、表面弾性波センサーアレー式検知器、ラマン分光計、赤外分光計、可搬型ガスクロマトグラフ/質量分析計、化学剤の検知紙、ガス検知管等が挙げられる。これらは特定の物質の検知には有効であるが、試料が想定されたものと異なる場合には成分に関する有効な情報を与えることはできない。機器分析によるものでは、電源の確保やメンテナンス等を要するうえ、高価であり導入できる数量は限られ、すべての現場で活用できる訳ではない。試験紙や検知管は安価かつ取り扱いが簡便なため、様々な現場において使用可能であるが、例えば検知管であれば対象成分毎に専用の検知管を使用する必要がある。未知成分を網羅的に識別・検知することはできない。加えて、上に述べた現場検知法は液体試料に対して有効に活用できるものは多くない。このような現状を鑑み、本研究では、成分が不明な液体について既存の現場検知法とは異なる観点で、あらゆる事案の現場において使用でき、安価に液体の成分についての情報を与える、新たな比色法による現場試験法の開発を目的とした。 第2章ではブリリアントグリーンおよびメチルレッドを用いる識別用ピペットの開発について述べている。現場において分析機器や煩雑な操作を必要としない安全かつ迅速な液体の識別法として、ブリリアントグリーン (BG) とメチルレッド (MR) の2種の色素をマーカーとして併用し、1. 色素 (BG 及び MR) の各種液体に対する溶解挙動の違い、2. 各種液体中における色素と固体表面との相互作用、3. 固体表面に吸着した色素の色変化、の3つの基本原理に基づく新たな方法を考案し、これを基に液体の識別用ピペットを開発した。識別用ピペットは先端から液体を吸引するという簡単な操作で、色素の着色した位置や色変化による目視での明確な識別を可能とする。識別用ピペットは市販のガラスパスツールピペット (サイズ: 146 mm) の先端に、PP 不織布をほぐして詰め、BG を吸着させた粒子 MR を吸着させた粒子を順に詰め、その	

後着色層としてシリカゲル，フロリジルおよびPP不織布の3層を配した構造からなる．作成した識別用ピペットにゴム球を着け，先端から試料液体 0.5 mL を吸引し，吸引後の各層の色を観察して識別を行った．液体試料として，トルエン，酢酸エチル，メタノール，エタノール，2-プロパノール，アセトン，アセトニトリルの各有機溶剤と水の計 8 種について検討を行った．その結果，識別用ピペットにより 8 種の液体試料を各々識別することが可能であった．

第 3 章ではオイルレッド O を用いる高濃度の酸溶液のセンシング法の開発について述べている．現在酸溶液の予試験法として用いられている pH 試験紙は，希薄水溶液に対応するものであり，高濃度の酸には対応できない．我々は前記識別用ピペットの開発過程において，疎水性色素であるオイルレッド O (ORO) が高濃度の酸に対して可逆的に色変化することを見出し，これを利用する高濃度の酸溶液の新たなセンシング法を開発した．フロリジルに ORO を担持させた粉体に様々な濃度の硫酸水溶液を滴下すると，硫酸濃度 0.1 M~12 M までの極めて広い濃度範囲でピンク色から濃い緑色へと漸次色に変化し，高濃度の硫酸のセンシングおよび硫酸濃度のおおよその予見が可能であることが示された．この現象は ORO をフロリジルに担持させたときのみを観察され，フロリジルの代わりにシリカゲルを担体とした場合には，硫酸濃度が 4 M 程度までの範囲では ORO の色変化は観察されなかった．このように ORO とフロリジルの組み合わせにより，極めて広い範囲での応答を示すシステムが見出された．

第 4 章では，アセトニトリル中における濃硫酸に対するスダン III の変色特性とこれを用いる少量の濃硫酸の定量法の開発について述べた．第 3 章において，ORO の酸に対する変色機構は未解明であった．そこで ORO と類似し，より簡単な構造を有する色素スダン III を用いてその硫酸に対する変色機構の解明を試みた．アセトニトリル溶媒中で検討を行うことで，スダン III は濃硫酸の添加によりオレンジ色から青色へと変色することを見出した．この機構について¹H-NMR 及び UV-vis 分光法により検討を行った結果，変色は硫酸による色素のプロトン化に起因するものと推定された．さらに，この変色機構を利用することで，少量の試料量で濃硫酸試料の濃度を定量する新たな手法を考案した．スダン III のアセトニトリル溶液に 0.04 mL というごく少量の硫酸を加え，UV-vis 測定を行うことで，6.5-17.99 M の濃度範囲で試料の濃硫酸の濃度を簡易かつ迅速に定量できることが示された．

本論文は，犯罪現場等での現場識別検査法として応用可能な新しい方法論を提案しており工学的，工業的に寄与するものであり博士(工学)の学位論文としての十分な価値があると認めた．