

Title	Studies on Silicone-Rubber Membranes for High-Performance Sodium-Ion Sensors Based on Calix [4] arene Neutral Carriers
Author(s)	辻村, 豊
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/40180
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	つじむら 豊
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 13175 号
学位授与年月日	平成9年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科プロセス工学専攻
学位論文名	Studies on Silicone - Rubber Membranes for High - Performance Sodium - Ion Sensors Based on Calix [4] arene Neutral Carriers (シリコンゴムを感応膜材料とする高性能カリクサレンニュートラルキャリア型ナトリウムイオンセンサーの設計)
論文審査委員	(主査) 教授 横山 正明 教授 柳田 祥三 教授 井上 佳久 教授 城田 靖彦 教授 平尾 俊一 教授 新原 皓一 教授 田中 稔

論文内容の要旨

本論文は、医用分野で有用な、精度、耐久性、安全性に優れたニュートラルキャリア型高性能ナトリウムイオンセンサーの構築を目的としている。すなわち、イオン感応膜材料として耐久性に優れ且つ毒性が低いシリコンゴムとニュートラルキャリアとして極めて高いナトリウムイオン選択性を有するカリクサレンイオノフォアに着目し、シリコンゴム中でも有効な特性を示すカリクサレンイオノフォアを設計合成し、イオンセンサーへの応用を検討している。本論文は緒言、本論5章および総括から構成されている。

緒言では、本研究の背景、目的およびその内容について述べている。

第一章では、シリコンゴム中でも有効に機能する非対称型カリクサレンイオノフォアを設計合成し、それをシリコンゴム中に分散させたイオン感応膜をナトリウムイオン感応性電界効果トランジスター (Na^+ -ISFET) に応用し、その Na^+ -ISFET が優れた応答感度、選択性、および耐久性を有することを明らかにしている。

第二章では、非対称型カリクサレンイオノフォアにシロキサン残基を導入し、シリコンゴムとの相溶性を高めたことで、カリクサレンイオノフォアの分散性が大きく向上し、その Na^+ -ISFET では優れた応答感度、選択性、および迅速な電位応答が得られることを示している。

第三章では、第二章で検討したシリコンゴムイオン感応膜 Na^+ -ISFET と、従来の可塑化ポリ塩化ビニルイオン感応膜 Na^+ -ISFET との特性を比較し、血清等の体液中での測定において、シリコンゴムイオン感応膜 Na^+ -ISFET の測定精度が飛躍的に向上することを明らかにしている。

第四章では、 Na^+ -ISFET ばかりでなく、最も一般的なニュートラルキャリア型イオンセンサーである Na^+ 選択性電極に応用し、優れた応答感度、選択性および迅速な応答が得られることを明らかにしている。

第五章では、更なる耐久性の向上および毒性の軽減を図るために、カリクサレンイオノフォアをシリコンゴム中に化学結合により固定化し、 Na^+ 選択性電極への応用を検討し、カリクサレンイオノフォアがシリコンゴム中に固定化されたにもかかわらず、その Na^+ 選択性電極は優れた応答感度、選択性、迅速な応答、および体液中での高い測定精度が得られることを明らかにしている。

最後に、本研究で得られた成果を総括し、カリクサレンイオノフォアを含むイオン感応膜を用いるイオンセンサーの信頼性の高さを確認している。

論文審査の結果の要旨

医療分野において血中および尿中の Na^+ や K^+ などの特定のイオンのみを選択的かつ定量的に感知し、in situ で迅速にリアルモニタリング可能なイオンセンサーの開発が強く望まれている。そこで用いられるニュートラルキャリア型イオン感応膜材料として、従来から可塑化ポリ塩化ビニルが広く検討されてきたが、耐久性、安全面で問題を抱えている。本研究では、ニュートラルキャリア型 Na^+ センサーの構築を目指して、高分子膜材料として人体に影響のないシリコンゴムを取り上げ、シリコンゴム中でも有効に働くニュートラルキャリアとして高いナトリウムイオン選択性を有するカリクサレンイオノフォアの分子設計を行い、シリコンゴム中への分散性を向上させることによって高性能ナトリウムイオンセンサーの構築に成功している。

その成果を要約すると次の通りである。

- (1) 結晶性が高いカリクサレンイオノフォアの結晶化を抑えるために、カリクサレンイオノフォアの分子構造を非対称構造としてカリクサレンイオノフォアのシリコンゴム中における分散性の向上を図った上でナトリウムイオン感応性電界効果トランジスタ (Na^+ -ISFET) への応用を試み、シリコンゴムのイオン感応膜としての使用に成功している。
- (2) シリコンゴム中でのカリクサレンイオノフォアの更なる分散性向上を目指してシロキサン残基を有する非対称型カリクサレンイオノフォアの分子設計を行っている。電子顕微鏡観察および電気的抵抗測定からカリクサレンイオノフォアの分散性向上を確認し、得られたシリコンゴムイオン感応膜を用いる Na^+ -ISFET が優れた応答感度、選択性、および迅速な電位応答を有することを見いだしている。
- (3) 血清等の体液中での測定におけるシリコンゴムイオン感応膜 Na^+ -ISFET と、従来の可塑化ポリ塩化ビニルイオン感応膜 Na^+ -ISFET との特性を比較し、シリコンゴムイオン感応膜 Na^+ -ISFET の測定精度が飛躍的に向上し、シリコンゴムイオン感応膜の実用上の有用性を確認している。
- (4) Na^+ -ISFET ばかりでなく、最も一般的なニュートラルキャリア型イオンセンサーである Na^+ 選択性電極に応用し、優れたセンサー特性が得られることでより広い応用の可能性を明らかにしている。
- (5) シリコンゴム中にカリクサレンイオノフォアを化学結合により固定化し、耐久性および安全性が著しく向上したナトリウムイオンセンサーの構築が可能であることを明らかにしている。

以上のように本論文は、医療現場における医療用イオンセンサーとしての要望に十分答えることができる耐久性および安全性に優れた高性能ナトリウムイオンセンサーの構築を実現したもので、医療分野ならびに材料化学に貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。