

Title	Study of Magnetophoretic Methods for the Microparticle Characterization
Author(s)	河野, 誠
Citation	大阪大学, 2011, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/58589
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

【43】

氏 名	かわの まこと 河野 誠
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 24338 号
学位授与年月日	平成 23 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科化学専攻
学位論文名	Study of Magnetophoretic Methods for the Microparticle Characterization (磁気泳動を利用する微粒子分析法の開発)
論文審査委員	(主査) 教授 篠原 厚 (副査) 教授 中村 春木 教授 山成 数明

論文内容の要旨

分析化学において低分子領域については HPLC 及び GC が広く用いられている。一方で、蛋白質など高分子、ナノ粒子についてはいくつかの分離法が検討されている段階である。本研究では、磁気力を用いた新しい微粒子の分離分析法の開発を行った。本稿では、粒子の粒径と磁化率の同時測定法として「ナノギャップ磁気泳動法」「粒子のブラウン運動及びナノギャップを用いた粒径と磁化率同時測定法の開発」、粒子の界面磁化率を基にした「粒子磁化率による HPLC 充填剤の粒子特性の評価」及び分離法として「二次元磁気泳動法を用いた微粒子分離法の開発」の 4 題について報告する。

微粒子の磁気泳動速度 v_p は、

$$v_p = \frac{2(\chi_p - \chi_f)r^2}{9\eta\mu_0} B \left(\frac{dB}{dx} \right) \quad (1)$$

で表される。ここで、 μ_0 は真空の透磁率、 $B(dB/dx)$ は磁場勾配、 r は粒子半径、 χ_f は媒体の体積磁化率、 χ_p は粒子の体積磁化率、 η は粘度である。つまり、粒子の磁化率を求めるためには、粒子の速度を解析し、粒子径を決定しておく必要がある。そこで本研究では、ナノギャップデバイスとブラウン運動解析を使って粒径と磁化率の同時測定法を開発した。ナノギャップデバイスはカバーガラス二枚を重ねて生じる空隙に粒子をトラップすることで粒径を測定する装置である。これにより浮遊粒子状物質の粒径と磁化率の同時測定に成功した。また、粒径が特に $1\mu\text{m}$ 以下ではブラウン運動解析が有効であるから、粒子の x 方向の変位を磁気泳動速度解析、 y 方向の変位についてブラウン運動解析を同時に行うポリスチレン粒子の粒径と磁化率の同時測定法を開発した。その結果、直径 $d_{500\text{nm}} = 510 \pm 3\text{ nm}$ 、 $d_{750\text{nm}} = 750 \pm 2\text{ nm}$ 、 $d_{1\mu\text{m}} = 1.00 \pm 0.06\ \mu\text{m}$ 、 $d_{2\mu\text{m}} = 1.99 \pm 0.08\ \mu\text{m}$ 、 $d_{3\mu\text{m}} = 3.02 \pm 0.14\ \mu\text{m}$ と求めることができた。一方、磁化率は $\chi_{p500\text{nm}} = -5.78 \pm 0.22 \times 10^{-6}$ 、 $\chi_{p750\text{nm}} = -6.81 \pm 0.27 \times 10^{-6}$ 、 $\chi_{p1\mu\text{m}} = -7.98 \pm 0.19 \times 10^{-6}$ 、 $\chi_{p2\mu\text{m}} = -8.11 \pm 0.16 \times 10^{-6}$ 、 $\chi_{p3\mu\text{m}} = -8.21 \pm 0.20 \times 10^{-6}$ であった。このように粒径に磁化率が依存していた原因は、表面に媒体の MnCl_2 が吸着したためである。

この界面吸着による磁化率の変化という現象を用いて、微粒子の表面特性の評価法を開発した。試料には HPLC 用 ODS 充填粒子を用い、 MnCl_2 吸着の有無による磁化率変化に基づいて、表面の残存シラノール量の評価を行った。一般に ODS 粒子の疎水性は C% で評価され、この C% と ODS 磁化率は反比例し、 MnCl_2 吸着後の磁化率も反比例した。これは、C% が低い、つまりシラノールが多い粒子では MnCl_2 吸着も多くなるということを示している。これにより磁化率変化から粒子の表面特性を評価できることが示された。

また、二次元磁気泳動法を用いて反磁性微粒子の分離を試みた。この装置は流れに対し垂直方向に磁気力を作用させ微粒子を泳動させることで分離する装置である。特に赤血球は酸素の吸脱着状態で磁化率が変化することが知られており、本装置ではさらに脱酸素化した赤血球の磁化率分布が確認された。交換能は赤血球の寿命に影響されると示唆されているため、脱酸素化赤血球の磁化率分布は赤血球の寿命を反映している可能性がある。このように磁化率から微粒子の内部情報も知ることができると考えられる。

論文審査の結果の要旨

河野 誠君は、磁気泳動を利用する微粒子分析法において課題であった液中微粒子のサイズ決定法として、平板ナノギャップ法を新規に開発し、これを組み合わせた磁気泳動装置を開発した。この装置により、微粒子の直径と磁化率の同時計測を可能とした。本法により、大気中より採取した浮遊粒子状物質 (SPM) のサイズと磁化率を同時に測定し、この微粒子が煤を主成分とすること、表面に Mn

(II) を吸着させることを明らかにした。この装置と、顕微ラマン分光装置を組み合わせ、ナノギャップにトラップされた単一 SPM 微粒子のラマンスペクトルを測定し、微粒子が煤に特有のラマンバンドを示すこと、 sp^2 炭素の割合がバイクの排気ガス中の微粒子とは異なることなどを見出した。また、HPLC 用の充填剤微粒子の磁気回路を用いるキャピラリー磁気泳動分析を行い、HPLC 微粒子の体積磁化率を求めた。そして、微粒子の磁化率より、Mn (II) の表面吸着性と炭素含有率との反比例的関係を明らかにし、さらにピリジンのテーリングファクターとの相関性を実験的に示した。また、より小さ

な $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子を対象とする磁気泳動法として、ブラウン運動解析を組み合わせたキャピラリー磁気泳動法を開発した。さらに、二次元磁気泳動法を開発し、液中微粒子の連続的磁気泳動分離が可能であることを実証した。実際にヒトの赤血球を試料として、脱酸素処理を行った赤血球の磁化率に広い分布があることを見出し、これは赤血球の寿命に関係することが示唆された。このように、河野君の研究は、微粒子磁気泳動法の今後の応用展開に貢献するものであり、よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。