

(論文内容の要旨)

本論文は、構造類似化合物のキャピラリー電気泳動による高性能分離手法についての研究結果をまとめたものであり、序論を含む本編 6 章および総括からなっている。

第 1 章は序論であり、本論文で著されている研究の背景や目的、意義、位置づけなどを述べている。

第 2 章では、キャピラリー電気泳動による中性物質の分離を可能とした動電クロマトグラフィーについて、その分離選択性を改善するため、新たな擬似固定相として平均粒径約 100 nm の無機層状化合物（スメクタイト）の適用を検討し、エチレンオキシド付加型非イオン性化合物の分離を試みている。スメクタイトを擬似固定相に用いることにより、ポリオキシエチレンフェニルエーテルをそのエチレンオキシド付加モル数の違いにより分離可能であることを示し、スメクタイトによるポリオキシエチレンフェニルエーテルの保持機構などについて考察している。本手法は再現性、精度ともに優れ、家庭用製品など実試料中のポリオキシエチレンフェニルエーテルの分析にも適用可能であることを示している。また、スウィーピング法によるオンライン試料濃縮により、保持係数の大きい試料について 100 倍以上の検出感度向上を達成している。

第 3 章では、両性界面活性剤のキャピラリー電気泳動による一斉分析法に関する検討を行っている。泳動液の pH、有機溶媒の添加、間接吸光検出に用いる吸光剤などが分離に及ぼす影響を検討し、4 種の両性界面活性剤について C8～C18 の同族体（計 24 化合物）の完全分離を達成している。保持時間の再現性、定量性などの検討を行い、分析法の実用性についても示している。さらに、複雑な混合物である家庭用品中の両性界面活性剤を選択的に分析できることなど、高速液体クロマトグラフィーと比較した本手法の有用性についても議論している。

第4章では、代表的な非イオン界面活性剤であるアルコールエトキシレートの同族体分離について検討している。アルコールエトキシレートの化学的・物理的性質はエチレンオキシドの平均付加モル数だけでなく、その分布によっても大きく変化する。したがってその解析は重要であるが、特にエチレンオキシド付加モル数の多い同族体の分離は困難で正確な評価は不可能であった。そこでキャピラリー電気泳動によるアルコールエトキシレート同族体の分離を検討し、2-フルオロ-1-メチルピリジニウム塩で誘導体化したアルコールエトキシレートをドデシルトリメチルアンモニウムクロリドを用いたミセル動電クロマトグラフィー (MEKC) で分析することにより、約20分でエチレンオキシド付加モル数0~50の同族体が完全分離できることを示している。また、高速液体クロマトグラフィーでは評価が困難な平均エチレンオキシド付加モル数や分散度が本法では正確に求められることを示し、アルコールエトキシレートの詳細なキャラクタリゼーションに極めて有用な手法であると述べている。

第5章では、通常MEKCでは分離困難な高疎水性試料の分離向上を目的として、泳動液に対する有機添加剤の効果に関する検討を行っている。硫酸ドデシルナトリウムをミセル形成剤、ジメチルスルホキシドおよびアセトンを実験添加剤として、8~13種の多環式芳香族炭化水素の分離が可能であることを示している。

第6章では、*N*-ドデカノイル-*L*-グルタミン酸ナトリウムまたはジギトニン-タウロデオキシコール酸ナトリウムを用いたMEKCによるアミノ酸誘導体の光学分割を検討している。5種のフェニルチオヒダントイン誘導体化DL-アミノ酸の相互分離および各光学異性体の分離が可能であることを見出し、本手法の優位性を実証している。

最後は総括であり、本論文の内容についてまとめるとともに、構造類似化合物のキャピラリー電気泳動による分離分析研究における本論文の位置づけと、将来へ向けた課題についても言及している。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、構造類似化合物のキャピラリー電気泳動による分離分析手法についての研究をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

- 1) 動電クロマトグラフィーにおける新規擬似固定相として無機層状化合物(スメクタイト)を用い、エチレンオキシド付加型非イオン性化合物の分離に関する検討を行った。本系により非イオン性化合物をそのエチレンオキシド付加モル数の違いにより分離可能であることを示し、保持機構について考察した。
- 2) 両性界面活性剤のキャピラリー電気泳動による一斉分析条件について詳細に検討し、4種の両性界面活性剤についてC8~C18の同族体(計24化合物)の完全分離を達成するとともに、定量性および実試料への応用についても検討した。
- 3) 非イオン性界面活性剤であるアルコールエトキシレート同族体の分離を検討した。2-フルオロ-1-メチルピリジニウム塩で誘導体化したアルコールエトキシレートをミセル動電クロマトグラフィー(MEKC)で分析することにより、エチレンオキシド付加モル数0~50の同族体が完全分離できることを示した。
- 4) 疎水性化合物のMEKCによる分離を実現するため有機添加剤の効果に関する検討を行い、8~13種類の多環式芳香族化合物が分離可能となることを示すとともに、熱力学的考察も行った。また、アミノ酸誘導体界面活性剤を用いたMEKCによる光学異性体分離について、種々の添加剤の効果を検討し同手法の実用性を示した。

以上要するに、本論文は構造類似化合物のキャピラリー電気泳動による高性能分離分析についての新たな知見をまとめたものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成21年2月25日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。