

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 乙 第 7190 号
------	--------------

氏 名 石毛 悠

論 文 題 目

電位差計測法およびデジタル計数法を用いた電気化学バイオセンサの研究

(Study on Electrochemical Biosensors Based on Potentiometry or Digital Counting Method)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	工学研究科	教授	中里 和郎
委員	名古屋大学	未来社会創造機構	教授	堀 勝
委員	名古屋大学	未来材料・システム研究所	教授	大野 雄高
委員	名古屋大学	工学研究科	講師	新津 葵一
委員	東京医科歯科大学	生体材料工学研究所	教授	官原 裕二

論文審査の結果の要旨

石毛悠君提出の論文「電位差計測法およびデジタル計数法を用いた電気化学バイオセンサの研究」は、体外診断において重要なイオン、蛋白質、DNA、細菌を対象として、基板電極表面を機能性材料により化学修飾して新しい界面・表面を構築し、新たに提案する電位差計測法及びデジタル計数法と組み合わせて、新しい電気化学バイオセンサを創製したものであり、以下の8章より構成されている。

第1章は序論であり、電気化学バイオセンサの適用例とその課題について述べられている。電気化学バイオセンサの主流である電流計測法の課題を整理し、その解決法として電位差計測法およびデジタル計数法を提案している。

第2章では、イオン吸蔵物質を用いた固体イオン選択電極について述べられている。従来のイオン選択電極は溶液を含むため取扱いが困難であった。固体化ができれば、応用範囲が格段に広がるが、実験報告が少なく、電位を決める機構も明らかにされていなかった。これに対し、高分子イオン感応膜と固体電極との界面における電気化学平衡を考慮して、イオン吸蔵物質を用いた新たな中間層を導入することにより安定で再現性の高い電極電位を実証し、電位を決めている機構の理論を構築し、高精度なイオン濃度計測が固体イオン選択電極により実現できることを示した。

第3章では、酸化還元電位計測方式の酵素センサについて述べられている。電位計測方式のイオンセンサでは、これまで、溶液中の電荷を検出する方法が試みられてきたが、信号が安定しない問題があった。これに対し、化学平衡で決まる酸化還元電位を計測する方式を提案し、電位の安定性を大幅に改善できることを示した。生体分子の検出法として、酵素反応を用い酸化還元物質の濃度比に転写する方式を提案し、コレステロールを安定に測定できることを示した。更に簡易農薬検査法を構築し、従来の光計測と同等の判定能を小型簡易装置で実現できることを示した。

第4章では、延長ゲート型FETセンサを用いたDNAセンサについて述べられている。DNA測定において、ハイブリダイズ時の立体障害性を考慮してDNAプローブの固定化密度を最適化し、ハイブリダイズ効率を最適化した。DNAの固定化密度をDNAプローブとアルカンチオールとの混合により調整し、二本鎖DNAの太さの倍程度のDNAプローブ間隔が最も効率的であることを示した。

第5章では、デジタル計数方式ウイルス細菌センサについて述べられている。細菌・ウイルスの高精度な測定法として、一個一個をカウントするデジタル計数法を提案し、有限要素法を用いたシミュレーションにより原理確認と検出機構の考察を行い、原理の有効性を確認するとともに、課題・限界を明らかにした。また、ビーズによる実験によりその有効性を実証した。

第6章では結論が述べられている。

第7章では今後の展望として、材料技術と表面修飾技術を用いて所望のセンサ特性を実現し、半導体技術と微細加工技術を用いて回路混載のアレイ化センサとし、前処理を含めたシステムとしてデバイス化していくことが述べられている。

第8章では、付録として実験方法の詳細が述べられている。

以上のように本論文は、電気化学バイオセンサについて、独創的な新しい材料や方法論が提案され、実際に適用することによりその有効性を実証しており、学術上多くの知見を得ている。電気化学イオンセンサの実用化には安定性、再現性の課題を解決する必要がある、という観点から取り組んでおり、工業上寄与するところが大きい。よって本論文提出者石毛悠君は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格があるものと判定した。