

ガスクロマトグラフ-質量分析計を用いた無機ガスの 定量分析法の設定に関する研究

辻田, 明

<https://hdl.handle.net/2324/2236298>

出版情報 : Kyushu University, 2018, 博士 (農学), 課程博士
バージョン :
権利関係 : やむを得ない事由により本文ファイル非公開 (3)

氏名	辻田 明		
論文名	ガスクロマトグラフ-質量分析計を用いた無機ガスの定量分析法の設定に関する研究		
論文調査委員	主査	九州大学	教授 松井 利郎
	副査	九州大学	教授 下田 満哉
	副査	九州大学	准教授 井倉 則之

論文審査の結果の要旨

本論文は、ガスクロマトグラフ-質量分析計 (GC-MS) を用いて、無機ガス (He、H₂) に対する定量分析法の構築を行ったものである。He や H₂ は一定濃度以上で致死性を示すものの定量法が確立されていないため、生体でのガス動態を把握することは困難である。そこで、本研究では質量数 (質量電荷比、 m/z) による選択的検出を唯一可能とする電子衝撃イオン化-選択的 MS 検出 (SIM-MS) 法を用いて、He および H₂ 分析のための GC 分離条件の最適化を行っている。さらに、一定濃度で大気中に存在するネオン (Ne) に着目し、空気希釈法による新たな無機ガス定量法を提案している。

まず、He を高感度検出するための GC 分析条件の検討を行っている。モレキュラーシーブ系キャピラリーカラムを 2 連結させたダブルカラムシステム (60 m × 0.32 mm、30 μm)、ならびにキャリアガスとしてイオン化断面積が最も小さい H₂ (線流速: 36 cm/s、2:1 スプリット注入法) を用いることによって、迅速 (保持時間: 3.2 min) かつ高い理論段数 (7,976) での He (m/z 4) の検出に成功している。さらに、He と同等の MS 検出強度を示した ²¹Ne (m/z 21、天然存在量: 0.049 ppm in air) を内標準として、空気希釈法による He (10–1000 ppm) の GC-MS 分析を行ったところ、He/²¹Ne 比と He 濃度の間に良好な直線関係 ($r = 0.9999$) が成立し (相対標準偏差: 4.6%)、²¹Ne が内標準として十分利用可能なことを明らかにしている。また、He 濃度が 100 ppm あるいは 500 ppm となるように調製した真空採血管入りヒト血液を本法に適用したところ、日内および日間の繰り返し精度は相対標準偏差として 5.1% 以下であったことから、²¹Ne-GC-SIM-MS 法による He 分析は生体試料に対しても十分に適用可能であることを示している。

次いで、H₂ を分析対象ガスとする GC-SIM-MS 法の構築を試みている。キャリアガスとして He (線流速: 36 cm/s、5:1 スプリット注入法)、カラムとしてモレキュラーシーブ系ダブルキャピラリーカラムシステム (60 m × 0.32 mm、30 μm) を用いることによって、迅速 (保持時間: 3.3 min) かつ高い理論段数 (12,274、テーリング係数: 3.2) での H₂ (m/z 2) の検出に成功している。さらに、²²Ne を内標準ガス (m/z 22、天然存在量: 1.68 ppm in air) として空気希釈法による H₂ (5–1000 ppm) の GC-SIM-MS 分析を行ったところ、H₂/²²Ne 比と H₂ 濃度の間に良好な直線関係 ($r = 0.9992$) が成立し、高い再現性 (相対標準偏差: 4.5%) と十分な検出感度 (検出限界: 1.7 ppm) が得られることを明らかにしている。ヒト血液を対象とした ²²Ne-GC-SIM-MS 分析においても日内および日間の繰り返し精度は相対標準偏差として 4.7% 以下であったことから、²²Ne を内標準とすることによって生体試料中に存在する H₂ を迅速かつ精度よく定量分析することができることを明らかにしている。

以上要するに、本研究は大気中に一定量存在する Ne の安定同位体 (²¹Ne、²²Ne) が内標準として適用可能であること、モレキュラーシーブ系キャピラリーカラムを用いた Ne-GC-SIM-MS 法が He や H₂ を迅速かつ高選択的に定量可能なガス分析法であることを示したものである。これらの成果は、

他の無機ガスの直接定量分析法として適用可能であることから、食品分析学はもとより食品機能学分野の発展にも寄与する価値ある業績と認める。

よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。