九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

# Study on the application of chemically modified synthetic copolymer columns for liquid chromatographic food analysis

鍾, 璇

https://hdl.handle.net/2324/2236302

出版情報：九州大学, 2018, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

| 氏　　名 | 鍾 璇（ジョン シュエン） |
| --- | --- |
| 論　文　名 | Study on the application of chemically modified synthetic copolymer columns for liquid chromatographic food analysis<br>（液体クロマトグラフィーによる食品分析における化学修飾共重合ポリマー系カラムの適用性に関する研究） |
| 論文調査委員 | 主　査　　九州大学　　教授　　松井　利郎<br>副　査　　九州大学　　教授　　下田　満哉<br>副　査　　九州大学　　教授　　宮本　敬久 |

# 論　文　審　査　の　結　果　の　要　旨

本論文は、液体クロマトグラフィー（LC）におけるポリマー系担体の分離特性について検討を行ったものである。ポリマー系担体は、シリカ系担体と比較して化学修飾が容易であり、耐溶媒性に優れているが、溶離条件や分離特性については未解明な点が多く、汎用性に劣るとされる。そこで本研究では、pH 耐性が高く、イオン交換基の導入が可能な共重合ポリマーに着目し、単糖類の分離分析のための polyethyleneimine 導入 glycidyl methacrylate-ethylene glycol dimethacrylate 担体ならびにカテコールアミン類の分離分析のための硫酸基導入 ethylstyrene-divinylbenzene 担体のカラム特性について詳細な検討を行っている。

まず、低カロリー甘味料として注目される希少糖類（D-allose、D-psicose、D-sorbose、D-tagatose）および単糖類（D-glucose、D-xylose、D-fructose）を分析対象成分として、polyethyleneimine を 8 wt% 導入した glycidyl methacrylate-ethylene glycol dimethacrylate 共重合カラムを用いて示差屈折計による一斉分析法の開発を行っている。90 v/v% アセトニトリルを溶離液とすると（流速 0.9 mL/min）、本カラムでは非還元糖（D-psicose、D-tagatose、D-fructose、D-sorbose）は分離検出されるものの、還元糖（D-glucose、D-allose、D-xylose）は強塩基性 polyethyleneimine とのシッフ塩基形成によりカラム溶出しないことを明らかにしている。他方、イオンペア試薬である 5 mmol/L sodium 1-octanesulfonate を添加した 85 v/v% アセトニトリル溶液（pH 4.8）を用いると、還元糖の溶出と分離が達成できることを示している。すなわち、本共重合ポリマーは溶離液を最適化することによって単糖類の一斉分析あるいは還元糖、非還元糖類の判別分析が可能な LC 担体であることを明示している。

次いで、ethylstyrene-divinylbenzene 共重合ポリマーカラムを用いたカテコールアミン類および代謝物の一斉分析法の設定を行っている。化学修飾されていない共重合ポリマーカラムでは疎水性相互作用による 3,4-dihydroxy phenylacetic acid、homovanillic acid および 3-methoxy-4-hydroxyphenylglycol の分離が達成された（0–50 v/v% メタノール/0.1 v/v% ギ酸、0.20 mL/min）ものの、アミノ基を有するカテコールアミン類（dopamine、norepinephrine、epinephrine）の分離分析は不可能であった。一方、硫酸基（0.81 wt%）を導入した共重合ポリマー樹脂カラム（0.1 v/v% ギ酸−50 v/v% アセトニトリル/50 mmol/L ギ酸アンモニウム、0.20 mL/min）を用いると、陽イオン交換ならびに疎水性相互作用によるミックスモードでの分離が達成され、6 種のカテコールアミン類および代謝物の 25 分以内での分離が可能であることを明らかにしている。また、本カラムを質量分析計に接続することにより、一例として 12.6 nmol/L 濃度以上の norepinephrine を検出できる

ことを示している。

以上要するに、本研究は化学修飾された共重合ポリマー系担体についてその分離特性を明らかにし、これまで一斉分析が困難であった単糖類やカテコールアミン類の分離分析が単一カラムで達成可能であることを示したものである。これらの成果は、食品や生体試料などの多成分混合系での一斉分析に威力を発揮するものであり、食品分析学および食品機能学の発展に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。