

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |                                                                                                                                                                             |
|-------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 題目(和文)            | ドーパミンの電気化学的研究                                                                                                                                                               |
| Title(English)    | Electrochemistry of dopamine                                                                                                                                                |
| 著者(和文)            | イリヤニ イスマイル                                                                                                                                                                  |
| Author(English)   | Iryane Binti Ismail                                                                                                                                                         |
| 出典(和文)            | 学位:博士(工学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第10333号,<br>授与年月日:2016年9月20日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:北村 房男,菅野 了次,富田 育義,稲木 信介,平山 雅章,大坂 武男                                               |
| Citation(English) | Degree:,<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第10333号,<br>Conferred date:2016/9/20,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner:,,,,, |
| 学位種別(和文)          | 博士論文                                                                                                                                                                        |
| Category(English) | Doctoral Thesis                                                                                                                                                             |
| 種別(和文)            | 審査の要旨                                                                                                                                                                       |
| Type(English)     | Exam Summary                                                                                                                                                                |

(博士課程)

## 論文審査の要旨及び審査員

| 報告番号        | 甲第  |       | 号 | 学位申請者氏名 |     | Iryane Binti Ismail |               |
|-------------|-----|-------|---|---------|-----|---------------------|---------------|
| 論文審査<br>審査員 |     | 氏 名   |   | 職 名     |     | 氏 名                 | 職 名           |
|             | 主査  | 北村 房男 |   | 准教授     |     | 平山 雅章               | 准教授           |
|             | 審査員 | 菅野 了次 |   | 教 授     | 審査員 | 大坂 武男               | 神奈川大学<br>客員教授 |
|             |     | 富田 育義 |   | 教 授     |     |                     |               |
|             |     | 稲木 信介 |   | 准教授     |     |                     |               |

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は“Electrochemistry of Dopamine”（ドーパミンの電気化学的研究）と題し、英文で書かれ、7 章から構成されている。

Chapter 1 “General Introduction”では、論文全体に関わる研究の背景や意義、目的などについて述べている。

Chapter 2 “Electrochemical behavior of Dopamine”では、ドーパミン(DA)の基本的な電気化学特性、すなわち酸化還元挙動の pH 依存性、濃度依存性、電位掃引速度依存性などを実験的に検討するとともに、密度汎関数法を用いた分子軌道法計算による反応電位や反応経路の解明を行った結果について述べている。その結果、従来曖昧であった反応電位に対する理論的な裏付けが得られ、これを基に DA の電極反応経路を提案している。

Chapter 3 “Electrochemical behavior of 5-methyldopamine (5-MDA)”では、DA の芳香環の 5 位にメチル基を導入した誘導体である 5-MDA の電気化学的挙動について検討している。DA は酸化されると環化反応を起こし、引き続いて起こる重合反応によりメラミンに類似した構造をもつポリマーとなって電極表面に析出する。このメカニズムでは  $\alpha$ -キノンの 5 位を末端のアミノ基が攻撃するので、5 位にあらかじめ置換基を導入しておくことで環化が防がれる。以上のことを、本章では電気化学的な手法を用いた実験に基づき検討し、確証を得ている。

Chapter 4 “DA and 5-MDA incorporated Nafion modified electrode”では、Nafion を分散媒として用いた DA あるいは 5-MDA 修飾電極の作製を試みている。DA は、高い反応可逆性と生体親和性を有するため、優れたレドックス触媒分子となり得るが、前章で明らかにした副反応が存在するため、電極触媒への応用は困難である。一方、5-MDA は DA と同様の可逆性を示し、副反応も起こらないために、センサなどへの応用が期待される。本章では、静電相互作用を利用した DA や 5-MDA の Nafion への導入過程に関し比較検討を行っている。その結果、5-MDA のメチル基と Nafion 間での疎水性相互作用により、DA よりも媒質への導入が促進されることを明らかにしている。

Chapter 5 “DA and 5-MDA covalently bonded on p-aminobenzoic acid-modified electrode”では、化学結合を利用して DA や 5-MDA を電極基板に直接固定した電極の作製を行っている。分散媒を用いた場合、基板電極との間で電子移動距離が長くなり、触媒として有効に働く分子数が減少することに加え、使用中に触媒分子が溶出しやすい。この問題を克服するため、共有結合を利用して DA や 5-MDA を基板に強固に固定した修飾電極の作製と、その電気化学特性の評価を実施している。その結果、基板に用いる炭素電極の構造性によって、修飾電極上でのアスコルビン酸酸化応答が変化することなどを明らかにしている。

Chapter 6 “DA and PQQ covalently bonded on p-phenylenediamine modified electrode”では、PQQ を基板表面に化学的に結合した修飾電極の作製を試みている。PQQ は酸化還元補酵素の一つで、酵素を利用したバイオセンサを作製する際に重要なレドックスメディエーターである。従来の研究では、PQQ の固定化において吸着や静電相互作用などを利用してきたが、本章では基板表面に分子を化学的に固定して安定かつ電子伝達特性に優れた電極の作製を行っている。さらに、PQQ のカルボキシル基部位に DA を導入して一体化させ、両者の酸化還元電位の差を利用して AA と尿酸の分離検出に挑んだ結果についても述べている。

Chapter 7 “General Conclusions”では、本論文の総括と将来の展望について述べている。

これを要するに、本論文は生体由来物質であるドーパミンおよびその類縁体の電気化学反応特性の解明および、電気化学センサとしての応用に向けた基礎研究を実施したものであり、工学上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として十分な価値があると認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。