

平成23年3月31日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20550078

研究課題名(和文) 開放系で行う環境関連微粒子の分級とその構成元素の多元素同時定量

研究課題名(英文) Simultaneous Determination of Elements in Environmental Particles Following Size Separation

研究代表者

岡本 泰明(OKAMOTO YASUAKI)

広島大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：40213988

研究成果の概要(和文):微量元素分析は非常に重要である。工業材料においては、その製品中に環境に悪影響を与える元素が含まれないように規制されている。この例としてプラスチック中に含まれる有機臭素化合物の高感度定量法を提案した。また、リサイクルが繰り返されると不純物元素が蓄積されて製品そのものの性能を劣化させる場合がある。ここでは鉄鋼の性能を劣化させる元素の迅速定量を確立した。さらに分子1個を直接観察する例として、DNAやタンパク質分子を直接観察できる顕微鏡を完成させた。

研究成果の概要(英文): A tungsten boat furnace vaporisation inductively coupled plasma atomic spectrometry has been applied to the determination of bromine species in plastics. The system was extended to the magnet hanging sample introduction scheme for the analysis of steels. Fluorescence microscope system was developed to the observation of single molecule of DNAs and/or proteins.

交付決定額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
年度	0	0	0
年度	0	0	0
総計	3,900,000	1,170,000	5,070,000

研究分野:分析化学

科研費の分科・細目:複合化学・分析化学

キーワード:電気加熱気化 誘導結合プラズマ質量分析 誘導結合プラズマ原子発光分析

1. 研究開始当初の背景

溶媒に可溶性の比較的小さな高分子を分離する手段としてはGPCなどの方法があり、その平均的な成分を定量する方法も確立されていたが、粒子1粒毎の成分に関する情報は得られなかった。他方光学顕微鏡でその外形を視認できる0.01～10μm程度の大きさを有する比較的大きい粒子の計数は行えたが、粒子1粒毎の成分に関する情報は得られない。ナノ粒子サイズの直接・多元素・多成分同時計

測はJSTにもとりあげられている重要なテーマであり巨大設備の構築を要する。研究当初の頃は、研究室レベルの汎用装置を活用した簡便な測定手段でもう一桁程度直径の大きい0.01μm程度以上から10μm程度までの微粒子をターゲットとした研究が求められていた。

2. 研究の目的

高感度で元素を定量できるICP-MSを

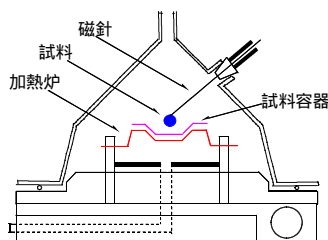
検出器として粒子サイズによって元素組成がどのように変化しているかを主成分から微量成分まで定量する手法を確立する。可能ならば、微小粒子1粒1粒の主成分のみならず微量成分までもも定量することを目的とする。さらに個々の微粒子における化学組成の違いを積極的に認識させる点にも研究の重点を置いて研究する。

3. 研究の方法 まず、予備実験として2波長を同時に独立に測定できるICP発光分析装置を使用して、組成既知の金微粒子を模擬試料として成分分析をおこなう。通常の分析では、化学天秤による秤量操作で試料量を、高性能分析装置で微量成分を測定し、その両者から「濃度」を算出する。ここでは化学天秤を使用することなく、検量範囲が広いことを活用して主成分と微量成分をとともにICP発光分析法で求める方法を確立する。

微粒子の分級については、組成既知のDNA分子またはタンパク質分子を電気泳動法で「分子運動」させ、その運動速度の差や界面への吸着平衡の差を利用した分離手法を構築する。

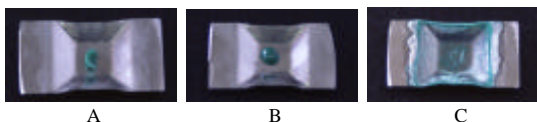
4. 研究成果

粒子1粒を測定装置に簡単便利に導入する方法として、右図の磁



気落下式加熱気化炉を考案した。これは磁性粉末試料にしか応用できないが、ごく簡単な改造で煩雑な試料出し入れ操作を失敗することなく確実に行える。仕組みは、磁針の先端に秤量した試料を吊り下げておき、下の加熱炉を試料のキュリー温度以上に急速加熱する。すると適温になったとき自動的に落下して試料は溶融し、揮発成分がICPへ導入される。(発表論文 参照)

環境関連物質として、プラスチック中の臭素の定量をICP-MSにて行った。

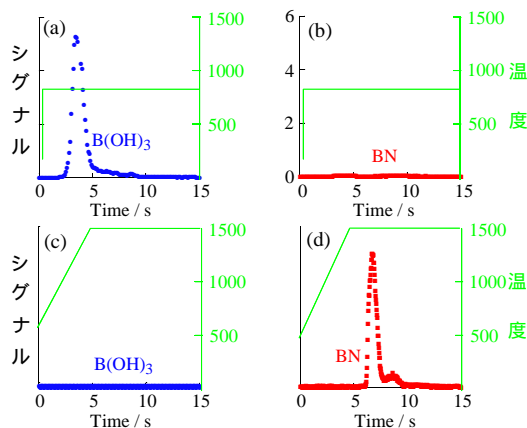


元のプラスチックは写真Aであるが、このまま加熱炉上に置いて加熱したのではBのような球状になって気化効率が悪く、感度

良く測定することはできない。そこで気化導入に先立ってプラスチックを溶解できる適当な有機溶媒を添加することで、Cのような表面積が広がり、かつ熱伝導性のよい状態にできる。(発表論文 参照)

いずれも加熱気化導入装置を組み合わせることでICP発光分析法やICP質量分析法の劇的な感度の向上と煩雑な前処理操作の簡略化が達成できた。

加熱気化導入ICP定量法の応用としてホウ素の化学形態別定量を試みた。通常の加熱気化導入ICP分析法で得られる定量値は目的元素の全量であり、何らかの化学的な前処理やクロマトグラフィー等の分離操作を行わない限り、目的元素を化学形態別に定量することはできない。ホウ素には、主にホウ酸に代表されるような揮散しやすいホウ素と窒化ホウ素に代表されるような熱的に安定なホウ素があり、毒性などの性質が大きく異なっていることからそれぞれを化学形態別に分離して定量する必要がある。加熱温度を正確かつ再現性良く設定できることを利用して、まず800でホウ酸のみを気化させてICP質量分析法で定量した。残った難揮発性ホウ素は分解試薬を加えてホウ酸に変換した後、1500で加熱気化させることで定量した。1回の試料採取で逐次定量できるので、特に貴重な試料には好適な定量法といえる。(発表論文 参照)



ホウ酸と窒化ホウ素のシグナル

(a) (b), 温度が低いので、ホウ酸は気化するが窒化ホウ素は気化しない。
(c) (d), ホウ酸は無い。分解試薬を加えたので窒化ホウ素は気化する。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計5件)

Yasuaki Okamoto, Hiromi Komori, Hiroko Kataoka, Satoshi Tsukahara, Terufumi Fujiwara, Direct Determination of Bromine in Plastics by Electrothermal Vaporization/Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry Using a Tungsten Boat Furnace Vaporizer and an Exchangeable Sample Cuvette System, Rapid Communications in Mass Spectrometry, 査読有 24巻 1265-1270ページ 2010年

Yasuaki Okamoto, Keisuke Yamamoto, Hiroko Kataoka, Satoshi Tsukahara, Terufumi Fujiwara, Hiroshi Uchihara, Masahiko Ikeda, Bunji Hashimoto, Kazuaki Wagatsuma, Direct Determination of Bismuth in Steel Samples by Magnetic Drop-In Electrothermal Vaporization Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry, Applied Spectroscopy, 査読有 63巻 1403-1406ページ 2009年

Hiroko Kataoka, Yasuaki Okamoto, Satoshi Tsukahara, Terufumi Fujiwara, Kazuaki Ito, Separate vaporisation of boric acid and inorganic boron from tungsten sample cuvette-tungsten boat furnace followed by the detection of boron species by inductively coupled plasma mass spectrometry and atomic emission spectrometry (ICP-MS and ICP-AES), Analytica Chimica Acta, 査読有 610巻 179-185ページ 2008年

Hiroko Kataoka, Sachiko Tanaka, Chie Konishi, Yasuaki Okamoto, Terufumi Fujiwara, Kazuaki Ito, Sensitive Determination of Bromine and Iodine in Aqueous and Biological Samples by Electrothermal Vaporization Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry Using Tetramethylammonium Hydroxide as a Chemical Modifier, Rapid Communications in Mass Spectrometry, 査読有 22巻 1792-1798ページ 2008年

Hiroko Kataoka, Yasuaki Okamoto, Takaya Matsushita, Satoshi Tsukahara, Terufumi Fujiwara, Kazuaki Wagatsuma, Magnetic Drop-In Tungsten Boat Furnace

Vaporisation Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry (MDI-TBF-ICP-AES) for the Direct Solid Sampling of Iron and Steel, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 査読有 23巻 1108-1111ページ 2008年

〔学会発表〕(計39件)

1 Xiao Zhang, Direct Determination of Scandium and Yttrium in Plastic Samples by Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry with Sample Cuvette - Tungsten Boat Furnace Vaporizer, ICAS2011、2011年5月22日、京都市 (発表決定)

2 Yusuke Tsunemine, Flow-Injection Method for Determination of Antimony(V) Based on Cerium(IV) Rhodamine B Chemiluminescence Using a Reversed Micelle System of Cetyltrimethylammonium Chloride Following Extraction, ICAS2011、2011年5月22日、京都市 (発表決定)

3 Naoki Shinomori, Microscopic Measurements of Lateral Diffusion of Rhodamine B at Liquid/Liquid Interfaces by Total Internal Reflection-Fluorescence Recovery after Photobleaching, ICAS2011、2011年5月22日、京都市 (発表決定)

4 Daiki Nakai, Microscopic Measurements and Analysis of Velocity Profiles of Laminar Flow Formed Near Interfaces, ICAS2011、2011年5月22日、京都市 (発表決定)

5 Kazuya Katayama, In Situ Fluorescence Microscopic Measurements of Phase Transfers of Single DNA Molecules in Aqueous Two-Phase System, ICAS2011、2011年5月22日、京都市 (発表決定)

6 Yusuke Tsunemine, Chemiluminescence of Cerium(IV)-Rhodamine B System in a Reversed Micellar Medium of Cetyltrimethylammonium Chloride in 1-Hexanol-Cyclohexane and Invention of New Flow Injection Analysis, Pacificchem 2010、2010年12月19日、Kalakaua Avenue Honolulu Hawaii USA

7 Tamer Hasanin, Spectroscopic Study of Acid-Base Ionization and Tautomerism

of Fluorescent Dyes in a Reversed Micellar Solution of Cetyltrimethylammonium Chloride in 1-Hexanol-Cyclohexane、Pacifichem 2010、2010年12月17日、Kalakaua Avenue Honolulu Hawaii USA

8 渡辺翔太、リン脂質単分子膜を形成させた液液界面に対するタンパク質の吸着挙動の全内部反射顕微蛍光測定、日本分析化学会第59年会、2010年9月17日、仙台市

9 川原那津子、液液界面における金ナノロッドの動的挙動の in situ 顕微測定、日本分析化学会第59年会、2010年9月16日、仙台市

10 中居大貴、界面近傍に発生させた定常流の流速分布の顕微測定と解析、日本分析化学会第59年会、2010年9月16日、仙台市

11 張笑、メタル炉加熱気化導入 - ICP 発光分析法による純金中の銀の直接定量、日本分析化学会第59年会、2010年9月16日、仙台市

12 山本圭介、固体試料の直接加熱気化導入 - ICP 質量分析法によるプラスチック中の不純物元素の定量、日本分析化学会第59年会、2010年9月15日、仙台市

13 八坂栄次、液液界面に吸着したマンガン(II)ポルフィリン錯体の会合体の in situ 顕微分光測定と解析、日本分析化学会第59年会、2010年9月15日、仙台市

14 篠森直樹、液液界面における蛍光色素分子の全内部反射 - 光退色後蛍光回復の顕微測定、日本分析化学会第59年会、2010年9月15日、仙台市

15 片山和也、水性二相系を用いた単一 DNA 分子の抽出挙動の in situ 顕微蛍光測定、日本分析化学会第59年会、2010年9月15日、仙台市

16 玉井祐貴、ハロゲン化物生成 - メタル炉加熱気化導入 - ICP 発光分析法によるスカンジウム元素の定量分析、日本分析化学会第59年会、2010年9月15日、仙台市

17 渡辺翔太、液液界面に生成したリン脂質単分子膜近傍におけるリゾチーム分子の動的挙動の顕微蛍光測定と解析、日本分析化学会第71回分析化学討論会、2010年5月15日、松江市

18 塚原聡、液液界面に形成したリン脂質単分子膜の相転移挙動の in situ 顕微蛍光測定、日本分析化学会第71回分析化学討論会、2010年5月15日、松江市

19 常峰裕介、逆ミセル反応場におけるセリウム - ローダミンB化学発光(CL)と新規FI-CL法の開発、日本分析化学会第71回分析化学討論会、2010年5月15日、松江市

20 張笑、メタル炉加熱気化導入 - ICP 発光分析法による金合金試料の直接分析のための基礎的検討、日本分析化学会第71回分析化学討論会、2010年5月15日、松江市

21 篠田哲宏、食品中のヨウ素の定量、日本分析化学会第71回分析化学討論会、2010年5月15日、松江市

22 川原那津子、有機相/ヒドロゲル相界面で生成する金コロイドの in situ 顕微測定、日本分析化学会第58年会、2009年9月26日、札幌市

23 渡辺翔太、液液界面に生成したリン脂質単分子膜近傍における膜結合性タンパク質の動的挙動の顕微蛍光測定、日本分析化学会第58年会、2009年9月25日、札幌市

24 芳賀徳光、CTAC 逆ミセル吸着シリカカラムにおける金属ポルフィリンの分離挙動、日本分析化学会第58年会、2009年9月25日、札幌市

25 高橋秀行、CTAC 逆ミセル界面を反応場としたフローインジェクション化学発光への触媒作用に対する媒質効果、日本分析化学会第58年会、2009年9月25日、札幌市

26 山本圭介、ETV-ICP-AES による鉄鋼中の不純物元素の直接定量、日本分析化学会第58年会、2009年9月25日、札幌市

27 Hasanin Tamer、Acid-Base and Aggregation Processes of Rhodamine B in a Reversed Micellar Medium of Cetyltrimethylammonium Chloride in 1-Hexanol-Cyclohexane、日本分析化学会第58年会、2009年9月24日、札幌市

28 塚原聡、局所交流電場による気液および液液界面の微小振動の顕微測定と強制振動モデルを用いた解析、日本分析化学会第5

8年会、2009年9月24日、札幌市

29 向井一晁、液液界面におけるリン脂質単分子膜の相分離挙動の in situ 顕微蛍光測定、日本分析化学会第58年会、2009年9月24日、札幌市

30 八坂栄次、液液界面に吸着したマンガン(I II)ポルフィリン錯体のマイクロドメインの in situ 顕微分光測定、日本分析化学会第58年会、2009年9月24日、札幌市

31 篠田哲宏、粉乳中のヨウ素の定量、日本分析化学会第58年会、2009年9月24日、札幌市

32 塚原聡、液液界面で生成する金コロイドの動的挙動の in situ 顕微測定、日本分析化学会第70回分析化学討論会、2009年5月16日、和歌山市

33 藤崎慶子、メタル炉加熱気化導入 ICP質量分析法によるプラスチック中の鉛の定量、日本分析化学会第70回分析化学討論会、2009年5月16日、和歌山市

34 小林龍太郎、液液界面で生成する金コロイドの in situ 顕微分光測定、日本分析化学会第57年会、2008年9月12日、福岡市

35 向井一晁、水中に形成した平面脂質二分子膜のダイナミクスの顕微蛍光測定、日本分析化学会第57年会、2008年9月11日、福岡市

36 井下翔平、液液界面における単一DNA分子の動的挙動の in situ 顕微蛍光測定、日本分析化学会第57年会、2008年9月11日、福岡市

37 山本圭介、Drop-in メタル炉加熱気化導入 - ICP原子発光分析法による鉄鋼中のアンチモンの直接定量、日本分析化学会第57年会、2008年9月11日、福岡市

38 鶴田剛士、局所交流電場による液体表面の微小振動の顕微測定と解析、日本分析化学会第69回分析化学討論会、2008年5月16日、名古屋市

39 松本裕史、液液界面近傍のポリスチレン微粒子の局所電場内における泳動挙動、日本分析化学会第69回分析化学討論会、2008年5月16日、名古屋市

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡本 泰明 (OKAMOTO YASUAKI)
広島大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号：40213988

(2) 研究分担者

藤原 照文 (FUJIWARA TERUFUMI)
広島大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：80127703

塚原 聡 (TSUKAHARA SATOSHI)
広島大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50207338

(3) 連携研究者

()

研究者番号：