

博士論文審査の結果の要旨

氏名	岡田 拓也
学位名	博士（理学）
学位番号	甲 第 137 号
論文題目	液状炭素電極およびカーボンペースト電極を用いる新規電気化学測定法
論文審査委員	主査 異 広輔 金 継業 高橋 史樹 西 直哉（京都大学）

（博士論文審査の結果の要旨）

ポーラログラフィーは、滴下水銀電極を作用電極とする電気化学測定法であり、かつては様々な化学分析の現場で幅広く用いられた方法であるが、近年は水銀の使用に対する規制から、ほとんど用いられなくなった。それにとって代わって用いられるようになった固体電極は、取り扱いが簡便という利点を有するものの、測定中に生じる電極表面の汚れを取り去るためにはその都度電極を測定系から取り外し、研磨等を行わなければならない。またその研磨の程度は実験者の技量に依存し、測定対象によっては再現性が得られにくいという問題がある。この点では、水銀を滴下することにより自動的に、しかも測定系から取り外すことなく電極表面を更新できる滴下水銀電極が優れている。このようにポーラログラフィーは、現在ほとんど用いられなくなったが、現在汎用されている固体電極にはない利点を有している。

ポーラログラフィーのこのような利点を活かしつつ、しかも水銀を用いないような測定法の開発に取り組んだのが、申請者の研究の主要な点と言える。本論文は5章から成っており、第1章は研究の歴史的背景等を述べた序論、第2章は液状炭素電極を用いる微分パルスポーラログラフィー、第3章はインクジェットポーラログラフィー、第4章はフッ素材料で修飾したカーボンペースト電極の特性、第5章は全体の総括である。まず第1章では、先に述べたポーラログラフィーおよび滴下水銀電極の特徴が述べられ、またそれを踏まえうえて本研究の研究対象である液状炭素電極ならびにカーボンペースト電極について、先行研究を引用しつつ的確に述べられている。第2章では、初めに米国のAdamsが1950年代に提唱したものの、その後頓挫した液状炭素電極について述べられ、それを2010年代以降に復活させた近年の先行研究について述べられている。そして近年の先行研究において問題となっていた炭素滴の強制滴下装置について検討が加えられ、またその装置による炭素滴脱離と同期した微分パルスポーラログラフィーが検討されている。ここで微分パルスポーラログラフィーは滴下水銀電極においてしばしば用いられた、とくに微量分析において有用な方法であるが、ここで申請者は水銀以外の電極で初めて微分パルスポーラログラフィーを行なうことに成功している。また本測定法の検出下限は滴下水銀電極での微分パルスポーラログラフィーに及ばなかったが、それに近い性能を有することを示している。第3章では、先行研究で問題となっていた炭素滴の強制滴下装置について、インクジェット技術を用いる検討がなされている。通常の印刷用ピエゾ式インクジェットは、極めて低粘度の流体しか吐出できないため、液状炭素電極のような高粘度流体を吐出するのは困難であるが、高粘度流体の吐出のために特別に開発されたピエゾ式インクジェットを用い、かつ液状炭素電極の素材を再検討することにより比較的low粘度の液状炭素を得て、炭素滴を安定的に吐出しながらポーラログラフィーを行なうことに成功している。第4章では、第2、第3章の研究において有用性が見出されたフッ素油（パーフルオロアルカンならびにパーフルオロエーテル）およびポリテトラフルオロエチレン等のフッ素素材粉末を混合した、簡便に作製可能なフッ素修飾カーボンペースト電極が検討されている。反応物との静電相互作用や、通常のカーボンペースト電極では困難である非水溶液中での測定が試みられ、いずれも興味深い結果を得ている。第2、3、4章の検討結果は、いずれも査読付き学術論文にて発表されている。

以上、申請者はきわめて興味深い研究成果を上げており、本論文は学位論文として十分な内容を有するため、博士（理学）の学位に相当すると判断できる。

(公表主要論文名)

- 1) Takuya Okada, Kei Kubo, Hirosuke Tatsumi, Differential pulse polarography at a dropping carbon fluid electrode, *J. Electroanal. Chem.*, **854**, 113526 (2019).
- 2) Xianmei Liu, Takuya Okada, Fumiki Takahashi, Jiye Jin, Hirosuke Tatsumi, Inkjet polarography, *Electrochem. Commun.*, **128**, 107069 (2021).
- 3) Takuya Okada, Fumiki Takahashi, Jiye Jin, Hirosuke Tatsumi, Electrochemical Properties of Carbon Paste Electrodes Modified with Fluorinated Materials, *Electrochemistry*, **89**, 100 (2021).

以上 3 報, いずれもレフェリー制のある学術雑誌