

(様式7)

学位論文審査結果の要旨

氏名	稲垣 徹
審査委員	委員長 _____ 大観 光徳 _____ 印 委員 _____ 市野 邦男 _____ 印 委員 _____ 李 相錫 _____ 印 委員 _____ _____ 印 委員 _____ _____ 印
論文題目	生体イメージング用近赤外ナノ蛍光体に関する基礎研究
<p>審査結果の要旨</p> <p>本研究は、癌診断などに有効なin vivo蛍光イメージング用蛍光体に関する研究成果を纏めたものである。特に生体内の水分やヘモグロビンに対して高い透過性と低い散乱性を有する近赤外波長域、いわゆる「生物の窓（波長 約700～1200nm）」に着目し、同波長域に励起・発光特性を有するバイオマーカーとして、無機ナノ蛍光体の研究・開発を行った。in vivoバイオマーカーとして、(1)生体内において化学的に安定、(2)生体に対し低毒性、(3)Drug Delivery System(DDS)への利用が可能な粒子サイズ(約20～80 nm)、等の条件が求められる。本研究では、発光中心としてNd³⁺とYb³⁺の組み合わせを、また母体材料として生体内で安定かつ無毒なバナジウム酸塩結晶 YVO₄、GdVO₄を選択した。またナノ蛍光体の前駆体の合成手段として、pH値や温度を精密に制御しつつ微小空間内で反応することが可能なマイクロリアクター（MR）法を採用した。更に前駆体を水熱合成により結晶化させることで、目的とするナノ蛍光体試料を得た。</p> <p>合成したナノ蛍光体試料は、バルク蛍光体試料に比べると、Nd³⁺に対するYb³⁺の発光強度が低くなり、その原因はYb濃度が低いためであることが組成分析により分かった。この問題は、MR合成時のpH値を下げることで解決され、同現象は熱力学計算プログラムSTABCALにより算出した各金属イオンのpH-溶解度曲線から理論的にも裏付けられた。また水熱合成条件についても詳細に検討し、ナノ粒子どうして凝集が生じない適切な温度180℃を見出した。以上の検討により、平均粒子径 40 nm のGdVO₄:Nd, Ybナノ蛍光体試料において、内部量子効率 3% を得た。近赤外波長域において無機ナノ蛍光体で量子効率の実測例はこれまで殆どない。また、現在市販されている有機系バイオマーカー Indocyanine Green (ICG)も同程度の効率であるので、GdVO₄:Nd, Ybナノ蛍光体は十分に実用の可能性を有していると結論した。</p> <p>一方で、GdVO₄:Nd, Yb バルク蛍光体試料の量子効率は55%であった。ナノ蛍光体の発光効率が著しく低い原因を探るべく、発光減衰特性を解析した。その結果、Nd³⁺からYb³⁺へのエネルギー伝達効率には大差がなく、Nd³⁺の⁴G_{5/2} から⁴F_{3/2} への緩和過程と、Yb³⁺の²F_{5/2}から²F_{7/2}への発光過程におけるエネルギー損失が大きいのが主な要因であることを見出した。</p> <p>以上のように、本研究で得られた成果は、in vivo 蛍光イメージングの研究・開発に対し有益な指針を与えるものであり、その学術的および技術的な貢献は大きい。従って、本論文は学位論文（博士（工学））として十分な価値を有するものと判定した。</p>	