

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		糖から発電する酵素電池の高性能化に関する開発			
研究テーマ (欧文) AZ		Development of high performance enzymatic fuel cells			
研究氏 代表名 者	カナ CC	姓) ツジムラ	名) セイヤ	研究期間 B	2013 ~ 2014年
	漢字 CB	辻村	清也	報告年度 YR	2015年
	ローマ字 CZ	Tsujimura	Seiya	研究機関名	筑波大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		筑波大学 数理工学系 准教授			
<p>概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)</p> <p>酵素電池とは、酵素を電極触媒とする燃料電池であり、非常に穏やかな条件で糖から発電でき、環境負荷が少ない安全な次世代ユビキタス電源として注目を集めている。環境モニタリングへの応用を志向した自立駆動型センサ・無線通信デバイスへの応用を目指し、本研究では、酵素と電極間の電子移動反応速度・担持酵素の安定性・物質輸送速度の向上を目指し、階層構造が制御された多孔質炭素電極を開発し、電池の耐久性および出力の向上を達成する。本研究では酵素固定用メソ孔炭素をベースに物質輸送を考慮したマクロ孔が発達した多孔質炭素の薄膜電極を作製した。メソ孔炭素としてナノメートルオーダーで細孔サイズが制御可能な酸化マグネシウムを鑄型にした炭素を新たに開発した。基板上に MgO 鑄型炭素を固定するために泳動電着法を導入することでマクロ孔構造が制御でき、炭素層全体を有効に活用できるようになり、物質輸送速度も向上し性能が格段に向上した。オスミウム錯体を有する高分子を酵素とともに炭素表面にコーティングすることで酵素固定および酵素-電極間電子移動が促進し、非常に安定かつ大きなグルコース酸化応答電流をえることができた。また、電極の表面に 2,2'-Azinobis(3-ethylbenzothiazolin-6-sulfonate) を修飾することで酸素還元酵素の性能が向上し、少量の酵素で大きな電流をえることができた。これらの技術をベースとした自立発電型デバイスを開発した。酸化還元酵素を固定化した後に得られるサイクリックボルタンメトリおよび交流インピーダンス解析等による電気化学をベースに、多孔質内部でのナノからマイクロメートルオーダーでの酵素電極反応および固定化酵素の安定性を評価することが可能になった。</p>					
キーワード FA	酵素電池	酸化還元酵素	センサ	環境発電	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Electrochemical Oxygen Reduction Catalyzed by Bilirubin Oxidase with the Aid of 2, 2'-Azinobis(3-ethylbenzothiazolin-6-sulfonate) on a MgO-templated Carbon Electrode							
	著者名 <sup>GA</sup>	S. Tsujimura, K. Murata	雑誌名 <sup>GC</sup>	Electrochim. Acta					
	ページ <sup>GF</sup>	555~559	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	180
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Effect of pore size of MgO-templated carbon on the direct electrochemistry of D-fructose dehydrogenase							
	著者名 <sup>GA</sup>	H. Funabashi, K. Murata, S. Tsujimura	雑誌名 <sup>GC</sup>	Electrochemistry					
	ページ <sup>GF</sup>	372~375	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	83(5)
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Redox hydrogel of glucose oxidase on MgO-templated carbon electrode							
	著者名 <sup>GA</sup>	A. Suzuki, K. Murata, N. Mano, S. Tsujimura	雑誌名 <sup>GC</sup>	Bull. Chem. Soc. Japan					
	ページ <sup>GF</sup>	in press	発行年 <sup>GE</sup>					巻号 <sup>GD</sup>	
図書	著者名 <sup>HA</sup>								
	書名 <sup>HC</sup>								
	出版者 <sup>HB</sup>		発行年 <sup>HD</sup>					総ページ <sup>HE</sup>	

#### 欧文概要<sup>EZ</sup>

Enzymatic biofuel cell is a kind fuel cell that uses enzyme as an electrocatalyst and directly converts chemical energy into electricity. For the application of this enzymatic biofuel cell to the self-powered environmental sensor system, durability and output power density should be further improved. In this study, we developed size-controlled MgO-templated mesopores carbon (MgOC) as an enzyme scaffold to increase the enzyme loading and its stability. The carbon is deposited on the current collector by the electrophoretic deposition method to form size-controlled macropore. Owing to the hierarchical meso-macropore structure, the penetration of enzyme and redox mediator through the carbon layer in fabricating the enzyme-modified electrode and the diffusion of substrate during the electro-enzymatic reaction are both improved. MgOC having an average pore diameter of 38 nm was used as a scaffold for a glucose oxidase-hydrogel consisting of an Os-complex-tethered polymer. Stable and high glucose oxidation current as high as 60 mA·cm<sup>-2</sup> at a loading of 1000 µg·cm<sup>-2</sup> at 37 °C was demonstrated. On the contrary, 2,2'-Azinobis(3-ethylbenzothiazolin-6-sulfonate) adsorbed on the MgOC surface serves as a redox mediator of bilirubin oxidase for oxygen-reduction catalytic current. The carbon material is also effective for the bioelectrocatalytic reaction of fructose dehydrogenase for fructose oxidation without redox mediator. The study demonstrates that the enzyme electrode can be improved in terms of output current densities and stability by optimizing the pore size of MgOC for efficient enzyme loading and electron transfer, as well as carbon particle morphology of the carbon particles and 3D carbon layer structure for enzyme loading and mass transfer of reactants, products, and electrolytes. Based on these results, disposable type high-power density biofuel cells consisting of carbon cloth as a current collector with MgOC for enzyme scaffold produced 2 mW cm<sup>-2</sup> for 3 days continuous operation at 25 °C.