ペーパーバイオケミカルセンサにおける電極構造が電気化学特性に与える影響

Impact of Electrode Structure on Electrochemical Characteristics in Paper-based Biochemical Sensors

立命院理工, ⁰深山 賢一, 宇野 重康

Ritsumeikan Univ., ^OKenichi Fukayama and Shigeyasu Uno

E-mail: ro0024hx@ed.ritsumei.ac.jp, suno@fc.ritsumei.ac.jp

1. 導入

近年、在宅医療や簡易医療診断が広まっており、小型 センサ機器の導入が進んでいる。商用の血糖値センサな どでは PET 素材の電気化学センサが使用されているが [1]、紙を基板としたセンサに代替することで更なる低コ スト化が期待できる。従来研究では3電極を有したペー パーバイオセンサでのサイクリックボルタンメトリー (CV)測定が報告されており[2]、多少の波形の乱れが見ら れるものの、2電極測定でのCV測定も報告されている[3]。 しかし、異なる電極構造間での性能比較の報告は見られ ず、与えられた用途に最適な電極構造の判断基準に乏し い。本研究では、異なる3種類の電極構造について CV 測定法を用いて比較評価を行った。

2. 実験方法

Fig.1は各種電極構造のセンサを写真と断面図で示し たものである。土台となるクロマトグラフィーペーパー (ChrPr)に測定溶液が浸透し電気化学測定が行われるため、 これを測定層と呼ぶこととする。測定層は Whatman 社1 CHR(厚み 0.18mm)を 20mm×45mm にカットして用いた。 測定層の長辺(5mm×45mm)にダーマトグラフ(三菱鉛筆, No. 7600)を塗布し、130℃で5分間加熱し疎水性部分を 作成したため、実際の吸水部分は10mm×45mmとなる。 ペーパー電極(10mm×30mm)はChrPrの両面にカーボンイ ンク(十条ケミカル, JELCON CH-8)を塗布し, 室温乾燥 させたものを用いた。電極は粘着テープを用いて測定層 に固定した。Fig. 1(a),(d)に示された構造 A(Structure A:SA) は基本的な3電極測定法の構成である。作用電極(WE) を中心として、対極(CE)と参照電極(RE)が反対側に位置 しているため、溶液抵抗による電圧降下が抑制される。 また、各電極間の距離はそれぞれ 5mm となっている。 Fig. 1 (b),(e)の構造 B(Structure B:SB)は WE と、CE 及び REを統一した電極(CE/RE)を平面上に並べて配置した2 電極構造である。Fig. 1 (c),(f)の構造 C(Structure C:SC)は 測定層をWEとCE/REで挟んだ立体的な2電極構造で ある。測定溶液としてリン酸緩衝液 (pH = 7.0, 100 mM) に K₄ [Fe(CN)₆] (ferro)1mM または 50mM 添加したものを 使用した。測定には ALS/CH Instruments Electrochemical Analyzer Model 6081E および 6108D(BAS)を用いた。

3.結果と考察

Fig. 2は各電極構造(SA/SB/SC)に対してCV測定を行った結果である。今回の実験では掃引速度を100mV/s で行った。Fig. 2(a)は各電極構造に対してferro濃度1mMの溶液90µLを測定層に浸透させ、CV測定した結果を示す。 ピーク電流量はSAで高くなっており、SCのほうがSBより電流量が多少大きくなった。SBとSCはCE/REの併用のためREでWEとは逆の反応が起こる。そのため、 測定層中で電圧降下がおこり、REが独立しているSAに比べて電流量が小さくなったと考えられる。

SB と SC の電流量の差が明確ではないため、ferro 濃度 を高くして再度 SB と SC の比較を行った。Fig. 2 (b)は SB・SC に対して ferro 濃度 1mM の溶液 90 μ L を測定層に 浸透させ、CV 測定した結果を示す。ferro の酸化還元電 流のピークが現れる電位の間隔(V_{pp})は SC の方が小さく なっており、電流量は SC のほうが大きい。SB では電極 間距離が 5mm であり電流が生じる断面積が 10mm× 0.18mm と小さい一方で、SC では電極間距離が紙の厚み (0.18mm)程度に小さく、断面積は 10mm×10mm と大きい。 このため SC の方が溶液抵抗が小さくなるため V_{pp}が減少 し、電流量が大きいと考えられる。

4. 結論

SAはREを独立させているために溶液抵抗による電圧 降下がほとんどない。また、SCでは電極間距離と電流が 生じる断面積により溶液抵抗が小さくなるためSBより 明瞭に酸化還元ピークが見られ、Vppも小さい。将来的に、 紙の厚みを更に薄くすればSCでもSAと変わらない性能 が得られる可能性がある。



Fig. 1 Cross sectional views and photographs of three paper-based biochemical sensors. (a),(d):structure A(SA), (b),(e):structure B(SB), (c),(f):structure C(SC).



Fig. 2 Cyclic voltammograms of three paper-based biochemical sensor structures, $(a)K_4$ [Fe(CN]₆]:1mM, (b)50mM. SA, SB, and SC denote electrode structures shown in Fig. 1.

謝辞

本研究は JSPS 科研費 26289111 の助成を受けたものである。 参考文献

[1]「バイオ電気化学の実際」 CMC 出版 第 10 章(p.172-184).

[2] Zhihong Nie et al Lab Chip, (2010) 10, 477-483.

[3] Murilo Santhiago et al Anal. Chem. (2013) 85, 5233-5239.