

バイオ燃料電池応用に向けた酵素/グラフェン電極の電気化学特性評価

Study on electrochemical characteristics

of enzyme/graphene electrodes for biofuel cell applications

青学大理工 ○中川 典駿、高田 了太、靱山 佳貴、平野 正浩、梁井 皓平、黄 晋二

○N. Nakagawa, R. Takada, Y. Momiyama, M. Hirano, K. Yanai and S.Koh

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University

E-mail: noritoc0802@ee.aoyama.ac.jp

酵素バイオ燃料電池 (enzyme biofuel cell : EBFC) は、糖やアルコールなどの還元物質の酸化及び酸素の還元を利用し、酸化還元反応のギブズエネルギー変化を電気エネルギーに変換するデバイスである。電極材料として比表面積が大きく高電気伝導性を持つ 2 次元炭素材料のグラフェンを利用することで、高出力電力の発電が期待できる。本研究ではグラフェンを用いた EBFC の実現に向けて、酵素の固定化技術の確立と酵素/グラフェン電極の電気化学特性の評価を行った。

CVD (chemical vapor deposition) 法により 1000°C、H₂ (20 sccm)、CH₄ (2 sccm) の条件で Cu 上にグラフェンを成膜させ、PMMA (polymethyl methacrylate) を用いた転写技法により、電気化学的に不活性な SiO₂/Si 基板にグラフェンを転写した。ピレン基を持つ芳香性分子 (1-pyrenebutanoic acid, succinimidyl ester : PBSE) の π - π 相互作用とアミノ結合を利用して、酸化触媒酵素のフルクトースデヒドロゲナーゼ (fructose dehydrogenase : FDH) をグラフェン表面に固定化させた。電気化学特性を評価するために、FDH (3.7 μ M) を含むマッキルベイン酸緩衝液 (pH5.0) 中で FDH/グラフェン電極のサイクリックボルタンメトリー (cyclic voltammetry : CV) 測定を行った。またアノードに FDH/グラフェン電極、カソードに Pt 電極を用いた EBFC を作製し、フルクトースを 100 mM 添加した時の電流値および電圧値を測定した。

Fig.1 に FDH/グラフェン電極の CV 曲線を示す。基質であるフルクトースを添加することにより、シグモイド型の触媒酸化電流を観測した。フルクトースの濃度上昇に伴い、電流密度は徐々に増加し、50 mM 付近で最大電流密度の 14.0 μ A/cm² に達した。これはミカエリス・メンテン動力学的機構を示しており、ラインウィーバー・バークプロットを適用することができる。このプロットからミカエリス・メンテン定数 K_m は 4.7 mM と求められた。過去に FDH の酵素反応の K_m 値は 10 mM 前後と報告されているが^[1]、FDH/グラフェン電極では約 1/2 の値を示した。これは FDH の表面濃度が低いことに起因していると考えられ、共有結合を利用した固定化法などにより、強固に酵素を固定化する必要がある。また作製した EBFC の開回路電圧と短絡回路電流は、それぞれ 0.23 V、26.5 μ A であり、300 k Ω の外部負荷抵抗を接続時に、1.4 μ W/cm² の最大電力密度を得た。以上、本研究では酵素/グラフェン電極の電気化学特性を評価し、グラフェンのバイオ燃料電池応用への可能性を見出した。

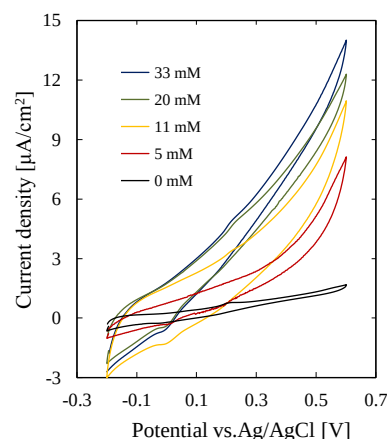


Fig.1 CV curves of the FDH/graphene electrode

[1] Y. Kamiyama et al., Phys. Chem. Chem. Phys. **9**, 1793 (2007).