

フェニルボロン酸自己組織化単分子膜修飾電極を用いた非酵素グルコースセンサの改良
Improvement of non-enzymatic glucose sensor using phenylboronic acid self-assembled
monolayer-coated electrode

○加治佐 平¹, 香門悠里², 北山雄己哉², 竹内俊文², 坂田利弥^{1,3}

PROVIGATE Inc.¹, Kobe Univ.², Univ. of Tokyo.³

○Taira Kajisa¹, Yuri Kamon², Yukiya Kitayama², Toshifumi Takeuchi², Toshiya Sakata³

E-mail: kajisa@provigate.com

1. 緒言

糖尿病は生活習慣病の代表的疾患とされている慢性疾患であり、世界の有病者集は 4 億人を超えることから医療費の増大が課題となっている。その課題を解決するためには血糖値の管理が重要な予防策であり、糖尿病の罹患および重症化予防に向けて、簡便で安価なグルコースセンサが求められている。そこで、我々のグループは、血液や涙といった体液中のグルコース濃度を非酵素的に高感度センシングする電気化学デバイスに関する研究を行ってきた。その一つとして、フェニルボロン酸自己組織化単分子膜(PBA-SAM)を修飾した電極を用いて、フェニルボロン酸とグルコースの結合による電荷変化を電界効果トランジスタ(Field Effect Transistor, FET)によって検出することに成功した。¹ しかしながら、PBA の化学的特性により中性付近における電荷変化が小さいことが課題となっていた。そこで、本研究においては、様々な PBA 分子側鎖の官能基を改良することによる PBA-SAM 修飾電極の中性付近でのグルコース検出感度について評価を行い、生体液中でのグルコースセンシングの開発を目的とした。

2. 実験方法

PBA 分子の *p*-位をカルバモイル基に、そして *m*-位に水素、塩素、フッ素、そしてニトロ基をそれぞれ導入した PBA-SAM を 10 mmΦ 金電極表面に修飾した。そしてリン酸緩衝液(pH 7.0)中におけるグルコースと PBA の結合によるボロン原子の電荷変化を金電極の表面電位変化として電位計を用いて計測し、各側鎖官能基の導入によるグルコース感度について評価を行った。さらに、PBA とオリゴエチレングリコール(OEG)の混合 SAM を先端径 1 μmΦ の微小針金電極上に修飾した。PBA/OEG 混合 SAM 修飾金電極を 1 mmΦ シリコンチューブ内に刺入し、グルコース濃度を 2~20 mM に調整した 50 mg/mL ヒト血清アルブミン含有 PBS 緩衝液(pH 7.4)をフローしたときの表面電位変化を経時測定した。

3. 実験結果

4 種類の *m*-位の側鎖官能基を導入した PBA-SAM 修飾金電極の中で、ニトロ基導入 PBA-SAM(NO₂PBA-SAM)が他の官能基と比較して高いアフィニティを示した。また、NO₂PBA/OEG 混合 SAM 修飾微小針電極を用いて体液を模した溶液の中で 2-20 mM におけるグルコース濃度変化を表面電位変化として計測することに成功した。本発表においては、各 PBA-SAM の電子求引性とシミュレーションによるボロン原子の電子密度との相関、そして中性付近におけるグルコース定量的な評価について議論する。 1: Kajisa & Sakata, ChemElectroChem (2014).