

Title	STUDY ON DEVELOPMENT OF NOVEL BIOSENSING METHODS FOCUSING ON HIGH SELECTIVE DETECTION
Author(s)	高馬, 卓也
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48487
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏 名	高 馬 卓 也
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 2 1 1 4 9 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 19 年 3 月 23 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科物質化学専攻
学 位 論 文 名	STUDY ON DEVELOPMENT OF NOVEL BIOSENSING METHODS FOCUSING ON HIGH SELECTIVE DETECTION (高選択性の発現を目指した新規バイオセンシング法の開発に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 桑 畑 進 (副査) 教 授 甲 斐 泰 教 授 今 中 信 人 教 授 宇 山 浩 教 授 平 尾 俊 一 教 授 大 島 巧 教 授 林 高 史 教 授 町 田 憲 一 教 授 田 川 精 一

論 文 内 容 の 要 旨

本研究では、グルコースオキシダーゼによるグルコースの酸化反応をモデル反応として用い、高基質選択性を有するバイオセンシング法の開発を目的として行った。以下に得られた主な成果をまとめた。

第 1 章には、電気化学バイオセンサの妨害物質であるパラ-アセトアミドフェノール (PAAP) を用いたグルコースセンシング法の開発と、その選択性の向上について調査した結果を記した。PAAP とグルコースオキシダーゼ (GOx) を含むリン酸緩衝液中でサイクリックボルタメトリー測定を行うことにより、PAAP が GOx の電子メディエーターとして働くことを明らかにした。また、ナフィオンを被覆したグラッシーカーボン電極と組み合わせることにより、アスコルビン酸と尿酸の酸化電流を抑制し、PAAP のみを選択的に酸化することができることを示した。さらに、5 mM PAAP を反応系に加えることにより、PAAP による妨害反応を除去できることを明らかにした。

第 2 章には、ルテニウムと GOx を電気化学析出させた微小電極を用いたグルコースセンサの開発について調査した結果を記した。ルテニウム-GOx 触媒層内の GOx 含有量を増加させることにより、アスコルビン酸、尿酸、ドーパミン、PAAP による妨害反応を取り除くことができることを示した。その結果、透過選択性を有する高分子膜を用いることなくグルコースの選択的な適量が可能であることを明らかにした。

第 3 章には、電気化学インピーダンス測定法を用いたグルコースセンシングについて調査した結果を記した。妨害物質の酸化反応が、拡散律速になる電位より貴な電位を有する電子メディエーターを用いることにより、アスコルビン酸と尿酸の酸化反応を抑制することなく、高選択的なグルコースの検出が可能であることを明らかにした。

第 4 章では、テルル化カドミウム (CdTe) 半導体量子ドットを用いた蛍光検出型グルコースセンサについて調査した結果について記した。CdTe 半導体量子ドットを含む水溶液に過酸化水素 (H_2O_2) を加えることにより、 H_2O_2 が消光剤として働くことを明らかとした。またアスコルビン酸、尿酸、PAAP は CdTe 半導体量子ドットのに光学特性に直接影響を与えないことを示した。さらに CdTe 量子ドットと GOx を組み合わせることにより、蛍光強度変化からグルコースの定量が可能であることを明らかにした。

論文審査の結果の要旨

本論文は、グルコースオキシダーゼによるグルコースの酸化反応をモデル反応として用い、高基質選択性を有するバイオセンシング法の開発を目的としたものである。主な結果を要約すると以下の通りである。

(1)パラ-アセトアミドフェノール (PAAP) とグルコースオキシダーゼを含むリン酸緩衝液中でサイクリックボルタメトリー測定を行うことにより、(PAAP) がグルコースオキシダーゼの電子メディエーターとして働くことを見出している。また、ナフィオン被覆したグラッシーカーボン電極と組み合わせることにより、アスコルビン酸、尿酸、(PAAP) の妨害反応を除去できることを明らかにしている。

(2)電気化学的に析出させたルテニウム-グルコースオキシダーゼ触媒層内のグルコースオキシダーゼ量を増加させることにより、アスコルビン酸、尿酸、ドーパミン、PAAP による妨害反応を取り除くことを明らかにしている。その結果、透過選択性を有する高分子膜を用いずにグルコースの定量が可能となることを見出している。

(3)電気化学インピーダンス測定法を用いてグルコースの定量が可能であることを見出している。また、妨害物質であるアスコルビン酸と尿酸の酸化反応が拡散律速となる電位より貴な酸化還元電位を持つメディエーターと組み合わせることにより、グルコースの選択的な定量が可能であることを明らかにしている。さらに、一つの周波数によるインピーダンス計測からグルコースの定量を行うことにより、定量時間の短縮が可能であることを明らかにしている。

(4)テルル化カドミウム (CdTe) 半導体量子ドットの蛍光が過酸化水素により消光されることを明らかにしている。この結果を利用して、グルコースオキシダーゼと CdTe 半導体量子ドットを組み合わせることにより、蛍光強度からグルコースの定量できることを見出している。また、CdTe 半導体量子ドット表面はアスコルビン酸、尿酸、および PAAP の影響を受けないことを見出している。

以上のように、本論文は、グルコースオキシダーゼによるグルコースの酸化反応を用いて、種々のグルコースセンサの開発と選択性の改善を詳細に検討している。本研究で得られた知見は、グルコースセンサの選択性の改善ならびに高性能化に極めて重要な情報を与えた。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。