

2021年8月23日

報道関係各位

尿糖から安定して出力する自己発電型バイオ燃料電池の開発に成功
～尿糖センシング技術として、糖尿病の予防と介護負担の軽減に期待～

東京理科大学
筑波大学

研究の要旨とポイント

- 紙を基材とした小型で軽量かつ尿糖から自己発電できる、環境負荷の低いバイオ燃料電池を作製することに成功しました。
- 作製したバイオ燃料電池を無線発信機と接続することで、尿糖を検出するバイオセンサとして応用できることを実証しました。
- おむつに設置して使用することで、患者の尿糖の早期発見および糖尿病の早期治療、また介護者のおむつ交換作業などの負担軽減につながると期待されます。

東京理科大学工学部先端化学科の四反田功准教授、板垣昌幸教授、同大学大学院工学研究科先端化学専攻の藤村優輝氏（2019年度博士前期課程修了）、筑波大学数理物質系物質工学域の辻村清也准教授らの研究グループは、紙を基材とした非常に薄くて軽く、尿糖から自己発電可能なバイオ燃料電池を開発することに成功しました。また、この燃料電池は尿糖濃度に応じた出力密度を示すため、無線発信機と接続することで、尿糖濃度を測定するバイオセンサとしても活用できることを明らかにしました。将来的には、おむつに設置して使用することで、患者の尿の有無や尿糖を随時モニタリングできる尿糖センシング技術の開発につながることが期待されます。

血糖値を間接的にモニタリングするための自己発電型バイオセンサについては、今までに広く研究されてきました。例えば、唾液中の糖を検出するものやコンタクトレンズ型で涙中の糖を検出するものなどが挙げられます。本研究グループは、尿糖が血糖値と密接に関係していること、尿糖の検出には血液検査ほどの手間が掛からないこと、食後高血糖などの一時的な血糖値の変化も追跡できることなどの理由から、尿糖を検出する自己発電型バイオセンサに注目し、実際にその開発に取り組みました。

研究を進めた結果、紙を基材とし、繰り返し使用しても尿糖から安定的に出力を得られるバイオ燃料電池と、それを応用した尿糖センシング・デバイスを開発することができました。このデバイスはバイオ燃料電池と無線発信機から構成されており、尿糖を検出するとバイオ燃料電池が

発電し、無線発信機で蓄電され、一定量で電波を発信する機構を有しています。有機物のみで構成されることから、環境負荷が低いことも特長です。発信された電波の周波数を尿糖濃度に換算することで、簡易的に尿糖濃度を測定でき、随時計測により、尿糖の経時変化を追跡することも可能です。発信された電波はスマートフォンなどの外部機器で受信できるので、おむつのチェックなどの介護者の作業を大幅に減少させることができます。

本研究成果は、2021年7月15日に[国際学術雑誌「ACS Sensors」](#)にオンライン掲載されました。

おむつに設置できるワイヤレスセンサーを開発、介護負担の軽減に期待

尿糖濃度は血糖値と密接に関係しています

血糖値

尿糖濃度を測定することで、糖尿病の発症や進行をモニタリングすることができます

グルコースに反応する酵素とメディエータをグラフト重合により安定に結合

耐久性が高く、長期間にわたり高い精度を保つバイオ電極

- フラビンアデニンヌクレオチド-グルコース脱水素酵素 (酵素)
- アズールA(メディエータ)
- ポリ(メタクリル酸グリシジル) 多孔質炭素

尿糖センサーとして応用できる紙を基材としたバイオ燃料電池

尿糖を燃料として発電する

自己発電センサ (電池を必要としない!)

グルコース濃度はBluetooth経由で伝達される

糖尿病患者や糖尿病予備軍の方を高い精度でモニタリング

尿糖の有無を遠隔で検知できる

今回提案したシステムは糖尿病の発症防止と長期間にわたる介護負担の軽減に役立ちます



Self-Powered Diaper Sensor with Wireless Transmitter
 Powered by Paper-Based Biofuel Cell with Urine Glucose as Fuel
 Shitanda et al. (2021) | ACS Sensors | DOI: 10.1021/acssensors.1c01266

【研究の背景】

尿糖とは、尿中に糖が検出される症状を指します。血液中に含まれる糖は、腎臓でこし取られる過程で体内に再び吸収されますが、血糖値が異常に高い状態が続くと、体内で処理できなかった糖が尿中に排出されます。一般的に尿糖が検出された場合、血糖値も高い状態になっていることが想定されるので、すぐに病院で詳細な検査を行う必要があります。しかし、食後高血糖という症状では、食事をした直後のみ急激に血糖値が上昇し、時間の経過とともに正常な数値に戻ります。このため、通常空腹時血液検査では異常値を検出することができず、糖尿病が水面下で進行し、症状を自覚できる頃には重症化していることもあります。そこで本研究グループは、尿糖を検出し、濃度を随時かつ簡易的にモニタリングできるセンシング・デバイスがあれば、糖尿病の早期発見や予防につながると考えました。

本研究グループでは、今までに酸化マグネシウム(MgO)微粒子を鋳型としたメソ多孔性炭素(MgOC)やこの表面を高分子鎖で修飾したメソ多孔性炭素(GMgOC)を有する酵素電極を作製し、バイオ燃料電池へ応用するための研究を重ねてきました。過去に、これらの材料を使用して、汗中の乳酸から自己発電するバイオ燃料電池や乳酸量をモニタリングするバイオセンサを作製することに成功しています。今回、これらの経験と技術を応用すれば、目的の自己発電型の尿糖センシング・デバイスを作製できるのではないかと考え、開発に取り組みました。

【研究結果の詳細】

本研究では、最初にメソ多孔性炭素層(MgOC または GMgOC)を有する電極およびバイオ燃料電池の作製を行いました。撥水性を有する紙上に導電性のカーボン層、MgOC 層または GMgOC 層の順にスクリーン印刷により積層しました。各電極を切り離し、正極には BOD(ビリルビンオキシダーゼ)、負極には FAD-GDH(フラビンアデニンジヌクレオチド-グルコース脱水素酵素)と Azure A(アズール A、糖バイオセンサのメディエータ)を固定化して、目的物を作製しました。

次に、各電極の電気化学的性質を調べるために、サイクリックボルタンメトリー(CV)測定を 10 回繰り返して行いました。正極、負極ともに、1 回目の電流密度に大きな違いは見られませんでした。10 回目の電流密度を比較すると、GMgOC 層を有する電極の方が安定した値を得られることがわかりました。MgOC 層を有する電極では、酵素と MgOC 表面の吸着力が比較的弱く、繰り返し電圧をかけることにより酵素が脱離してしまうので、電流密度の減少につながったと考えられます。一方で、GMgOC 層を有する電極では、MgOC 表面の高分子鎖と酵素の一部が共有結合によって吸着しているので、繰り返し電圧をかけても、酵素が脱離せずに残ったためと考えられます。以上のことから、GMgOC 層を有する電極がより安定した出力を得られる可能性が唆されました。

また、実際に 100mmol/dm^3 の糖溶液と反応させることにより、バイオ燃料電池としての電気化学的性質を評価しました。MgOC 層を有する電池では、開回路電圧 0.76V 、最大電流密度、 0.49mA/cm^2 、最大出力密度 0.17mW/cm^2 、GMgOC 層を有する電池では、開回路電圧 0.77V 、最大電流密度 0.42mA 、最大出力密度 0.12mW/cm^2 という結果が得られました。これらの結果から、最大電流密度や最大出力密度は MgOC 層を有する電池の方がわずかに高くなることがわかりました。しかしながら、GMgOC 層を有する電池の方が繰り返し安定性に優れているため、尿糖センシング・デバイスへの応用を考えると、GMgOC 層を有する電池の方が適していることがわかりました。

最後に、GMgOC 層を有するバイオ燃料電池と様々な糖濃度の溶液($1, 3, 5, 7, 10\text{mmol/dm}^3$)を反応させることで、電池の出力密度と糖濃度の相関性を評価しました。その結果、糖濃度の増加に伴い、出力密度も増加する線形相関があることがわかりました。また、この性質を応用した尿糖センシング・デバイスの設計、作製、評価も行いました。このデバイスは、バイオ燃料電池と無線発信機(CLEAN-Boost, ABLIC 社製)から構成されており、糖を検出すると、バイオ燃料電池が発電し、無線発信機で蓄電され、電波を発信する機構を有しています。発信された電波をスマートフォンなどの外部機器で受信することにより、その周波数を確認できます。応答間隔と周波数には逆数の関係があるので、無線発信機から送られる電波の周波数を糖濃度に換算が可能です。本研究チームは実際に、各糖濃度の溶液を反応させて、発信された電波の周波数から糖濃度を決定できることを実証しました。

今回の研究成果について、四反田准教授は「今回開発したデバイスが介護福祉現場に応用されると、要介護者のおむつの適切なサイズや交換時期がわかるだけでなく、介護者が負荷なく、遠隔でヘルスケアモニタリングができます。有機物のみで構成されているため、環境負荷が低いことも特長です。今後は尿糖を含まない健常者向けに、あらかじめ燃料として糖を仕込む形で排尿を検知するデバイスへ展開していきたい」と話しています。

【論文情報】

雑誌名： ACS Sensors
論文タイトル： Self-Powered Diaper Sensor with Wireless Transmitter Powered by Paper-Based Biofuel Cell with Urine Glucose as Fuel
著者： Isao Shitanda, Yuki Fujimura, Tatsuya Takarada, Ryo Suzuki, Tatsuo Aikawa, Masayuki Itagaki and Seiya Tsujimura
DOI： [10.1021/acssensors.1c01266](https://doi.org/10.1021/acssensors.1c01266)

【発表者】

四反田功 東京理科大学 理工学部 先端化学科 准教授 <責任著者>
藤村優輝 東京理科大学大学院 理工学研究科 先端化学専攻 修士課程修了
寶田達也 東京理科大学大学院 理工学研究科 先端化学専攻 修士課程修了
鈴木遼 東京理科大学大学院 理工学研究科 先端化学専攻 修士課程修了
相川達男 東京理科大学 理工学部 先端化学科 助教（現：住友金属鉱山（株））
板垣昌幸 東京理科大学 理工学部 先端化学科 教授
辻村清也 筑波大学 数理物質系物質工学域 准教授

【研究に関する問い合わせ先】

東京理科大学 理工学部 先端化学科 准教授
四反田 功（したんだ いさお）
E-mail： shitanda@rs.tus.ac.jp

筑波大学 数理物質系 准教授
辻村 清也（つじむら せいや）

【報道・広報に関する問い合わせ先】

東京理科大学 広報部（担当：清水）
TEL：03-5228-8107 FAX：03-3260-5823
E-mail： koho@admin.tus.ac.jp

筑波大学 広報室
TEL：029-853-2040 FAX：029-853-2014
E-mail： kohositu@un.tsukuba.ac.jp