

日本ーフランス 国際共同研究「分子技術」 平成29年度 年次報告書	
<b>研究課題名（和文）</b>	分子設計に基づく生体適応型高耐久性3次元グルコースバイオ燃料電池の創出
<b>研究課題名（英文）</b>	Molecular design of biocatalytic 3D nanocarbon architectures for long-lasting glucose fuel cells
<b>日本側研究代表者氏名</b>	仁科 勇太
<b>所属・役職</b>	岡山大学異分野融合先端コア・准教授
<b>研究期間</b>	平成27年11月 1日～平成31年 3月31日

## 1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
仁科 勇太	岡山大学 異分野融合先端コア 准教授	研究の統括
富永 昌人	佐賀大学 大学院工学系研究科 教授	グラフェン-カーボンナノチューブ複合体の作成
辻村 清也	筑波大学 数理物質系物質工学 域 准教授	各種カーボン電極を用いたバイオ燃料電池の評価
鈴木 秀幸	岡山大学 異分野融合先端コア 助教	メディエーター分子の設計と合成 酸化グラフェンの合成と構造解析

## 2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

これまではメディエーターとしてアントラキノンに注力してきたが、今後はナフトキノンや9

10-フェナントレンキノンにも着手する。ケッチエンブラックをグラッシーカーボン電極に塗布し、その上からメディエーターを滴下して、電気化学特性を測定する。さらに高い応答電流を得るために、3次元階層構造を持つ酸化グラフェン-カーボンナノチューブ複合体を用いて評価する。酵素と酸化グラフェンの相互作用は、酸素官能基の量だけでなく、互いの表面電荷も大きく影響する。酵素のゼータ電位を測定することで、酵素の固定化に適した酸化グラフェンを選択する。また、カーボンナノチューブ等を導入することにより、グラフェンの間隙を拡げ、酵素の固定化量の増大や、グルコース等の拡散性を向上させる。以上を

組み合わせて、発電特性を評価する。

### 3. 【日本側研究チームの実施概要】

計算化学に基づき、バイオ燃料電池のメディエーターとなるナフトキノン誘導体の設計と合成、電気化学的評価を行った。これにより、優れた特性を有するメディエーター分子を計算から抽出することが可能になり、研究の加速が可能になった。さらに、ナフトキノンからリンカーを伸ばし、その末端にカーボン電極への固定基であるピレンを持つ化合物を合成した。結合位置はキノン側とベンゼン環側の2か所を検討し、それぞれ強固なエーテル結合でリンカーを連結させた。リンカーには長さを変化させるために、エチレングリコールとテトラエチレングリコールの2種類を用いた。また、メディエーター分子とエチレングリコール鎖との間にメチレン基を1つ挟むことでリンカー長の微調整も可能とした。

ナフトキノンには適切な酸化還元電位を有しており、バイオ燃料電池のメディエーター分子として期待されているが、安定性に問題がある。この理由として、アルケン部位が不安定である可能性を考え、その部位に官能基を導入することにより、安定性を高めることにした。新たに開発した銀触媒を用いて、ナフトキノンにアルキル基を導入したところ、3000サイクル後でも当初の90%が維持されていた。このような分子設計により、今後も長期安定性を有するメディエーター分子を開発していく。

電極として、本研究では酸化グラフェンに着目している。酸化グラフェンの酸素含有量が多くなると親水性が向上し、生体分子との相互作用が強くなるという利点がある一方で、電気伝導性が低くなるという欠点もある。そのため、電極として用いる酸化グラフェンの酸素含有量を適切に制御する必要がある。酸化グラフェンの酸素含有量を変えて電極を作製し、そのキャパシタンスを評価した。その結果、酸素含有量が29%のものが優れているということがわかった。