

プログラム名：進化を超える極微量物質の超迅速多項目センシングシステム

PM名：宮田 令子

プロジェクト名：人工嗅覚システム

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成29年度

研究開発課題名：

有害低分子認識センサの開発

研究開発機関名：

九州大学

研究開発責任者

都甲 潔

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

本プロジェクトにおける研究課題は有害低分子（爆薬・生物剤・化学剤・ストレスマーカー・危険ドラッグ関連物質）の種類を同定・検出する原理ならびに装置の開発を行うことである。当グループはこの中でこれらの物質を検出するための受容材料を開発することを目的とする。その様な材料としてガスクロマトグラフィ固定相物質（GC materials：受容物質1）、分子インプリント材料（MIP：受容物質2）、ペプチド（受容物質3）を選定した。本年度はGC materialsに関してはカーボンブラック（CB）と混合することでガスに対して電気抵抗が変化する Chemosensitive resistor（ケモレジ）素子を作製した。CBとGC materialsの混合比の検討を行った。またこのケモレジ素子への湿度の影響を調べたところ影響が大きいことが分かった。また熱処理などを行うことで応答特性がどのように変化するかを調べた。MIPに関しては吸着特性の評価を継続した。ペプチドに関してはTNT抗体模倣ペプチドの一つである TNTCHDR3を固定した表面でTNTの計測を電位計測で行った。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

まず検出対象は1stステップとして次の物質に絞った。

アルデヒド類（ノナナール, ベンズアルデヒド）

ピロール, フェネチルアミン

爆薬物質（TNT, RDX）

(1) 受容物質1：GC materials

27年度に評価した21種類のGC materialsとカーボンブラック(CB)を溶媒を用いて混合し、インク状の液体サンプルを得た。この液体を絶縁された2つの電極上に塗布し、溶媒を蒸発させることでガスに対して電気抵抗が変化する Chemosensitive resistor（ケモレジ）を作製した。このうち、16種類の材料について自動塗布装置を使用して7mm角のチップ上に安定して作製できるようになった。次にCBとGC materialsの混合比を評価したところ、混合比を変更するだけでもそれぞれの材料の応答特性が変化することが分かった。さらにこのセンサの湿度の影響を調べた。湿度が高くなると応答は小さくなることが分かった。

(2) 受容物質3：ペプチド

当グループが保有する抗体産生細胞の内、抗TNT抗体と抗RDX抗体を産生できる2株の遺伝子解析を東工大・大河内グループに依頼し、その遺伝情報から抗体の分子認識部のアミノ酸配列を決定した。また大河内グループにてその配列と同じ配列のペプチドを作製した。

得られた3種類のペプチドに対してSPR測定装置を用いて結合性や選択性の評価を行った。そのうちTNTへの結合能力の高かったTNTCHDR3ペプチドについて自己組織化単分子膜(SAM)を用いて電極表面に固定し、電位計測でTNTの検出を行ったところ検出限界600 ppbが得られた。次に検出感度の上昇を目指し、カーボンナノチューブ(CNT)を用いてペプチドの固定を行い、SPR測定装置を用いて評価を行ったところ、従来の7倍の信号強度が得られた。

(3) 受容物質 2 : 分子インプリント材料

QCM およびガスクロマトグラフィ質量計 (GCMS) を用いて吸着特性を調べた。実験の再現性に問題があり、その点の改善を行ってきた。また爆薬マーカであるジメチルジニトロプロタン (DMNB) に対するインプリント材料を作製し、GCMS にて特性評価を行った。

2-2 成果

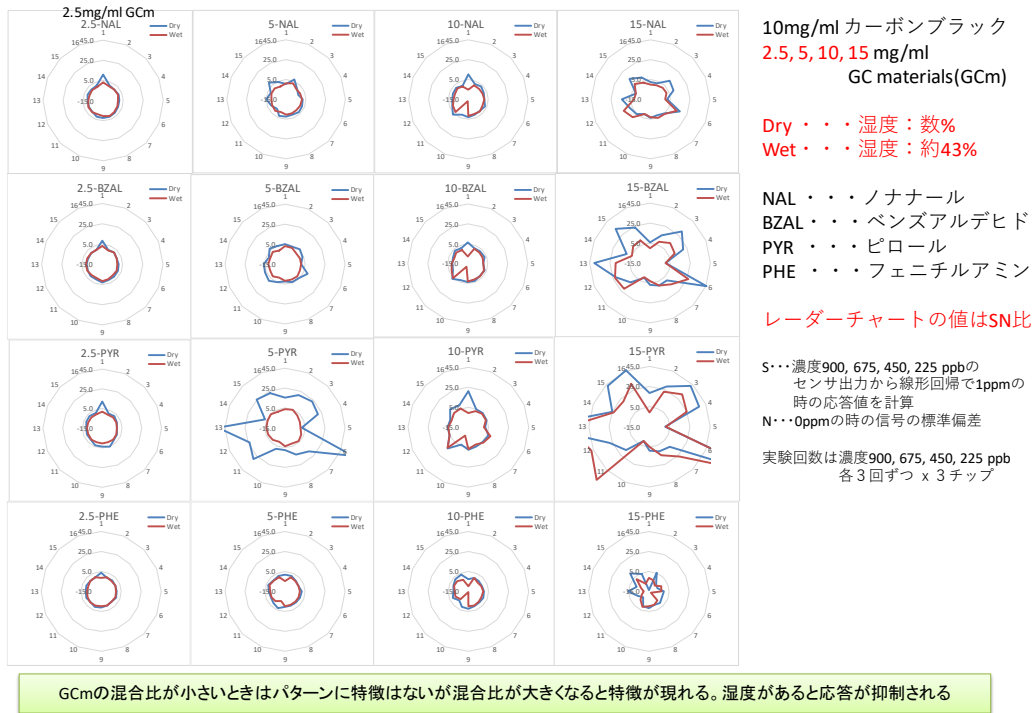


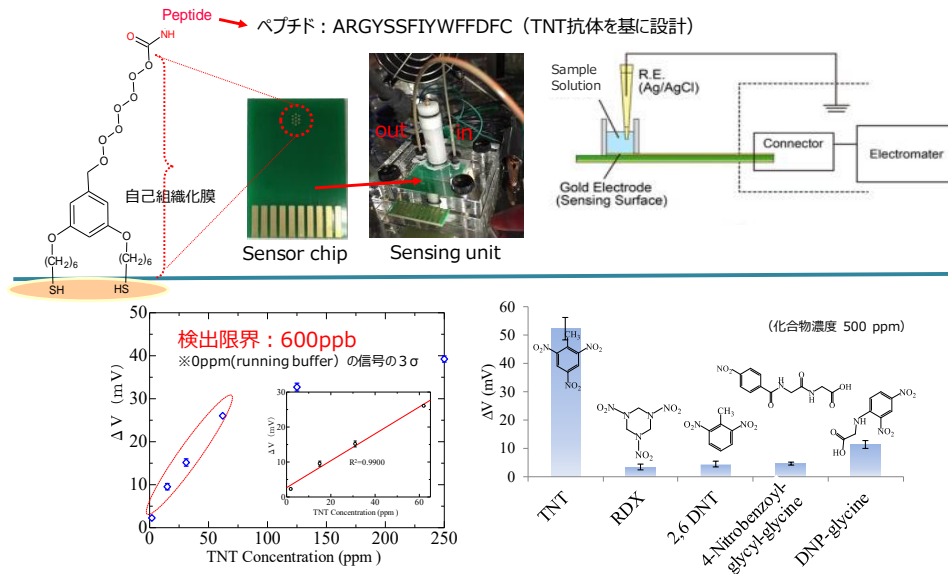
図 1 Chemosensitive resistor 混合比と湿度の影響

(1) 受容物質 1 : GC materials

16 種類の GC materials を CB と混合させ、ガスに対して電気抵抗が変化する 16 チャンネルの Chemosensitive resistor を作製し、その混合比と湿度の影響を調べた (図 1) . CB に対して GC materials の量が少なければ応答の特徴が少なく、GC materials の量が多いときは特徴的かつ高感度であることが分かった。また湿度が高くなると応答が減少することが分かった。

(2) 受容物質 3 : ペプチド

当グループが保有する抗 TNT, RDX 抗体産生ハイブリドーマ細胞の遺伝子解析から抗体の分子認識部のアミノ酸配列を解析し、それらに対応するペプチドを合成した (東工大 大河内研) . 得られたペプチドの内、TNT に対して相互作用が強い TNTHCDR3 について自己組織化単分子膜を用いて電極に固定し、電位計測にて TNT を検出したところ、検出限界 600 ppb となった。また類似物質により選択性を評価したところ、高い選択性が得られた。



TNTに対して高い選択性が得られ、感度はサブppm ⇒ 濃縮によりサブppbの可能性

図2 TNT抗体模倣ペプチドによるTNTの検出

(3) 受容物質2: 分子インプリント材料

爆薬マーカーであるDMNBに対する分子インプリントゾルゲル材料(MISG)を作製し、その吸着特性を前年度に引き続きGC-MSにて評価した。応答特性はあまり改善しなかった。

2-3 新たな課題など

(1) 受容物質1: GC materials

1. センサの応答の経時変化
2. 感度の向上
3. 湿度があると応答が低下する

(2) 受容物質3: ペプチド

1. 感度の向上

(3) 受容物質2: 分子インプリント材料

1. 交差反応性未評価
2. 低感度

3. アウトリーチ活動報告

なし