平成 19年 2 月22 日

昭 田参孝敬()

21世紀COEプログラム

拠点:大学院工学系研究科 応用化学専攻、化学システム工学専攻、 化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

"化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成"

平成18年度リサーチ・アシスタント報告書

| ふりがな | たまき たかのり 生 年 月 日 |
|---------|------------------------------------|
| 氏 名 | 田巻 孝敬 |
| | 東京大学大学院工学系研究科 化学システム工学専攻 |
| 所属機関名 | |
| | |
| | 東京都文京区本郷 7-3-1 東京大学工学部 5 号館 |
| 所 在 地 | |
| | |
| 申請時点での | 博士課程 2 年 |
| 学 年 | |
| | 新規なパイオ燃料電池材料システムの開発 |
| 研究題目 | (プロジェクト名: 人工細胞新規マイクロ・リアクタ・システムの開発) |
| | |
| 指導教員の所属 | ・氏名 東京大学大学院工学系研究科 化学システム工学専攻 |
| | 山口 猛央 |
| L | |

I 研究の成果 (1000 字程度)

(図表も含めて分かりやすく記入のこと)

本研究では、酵素を触媒に用いることで、生体に安全・安心な燃料を利用できるバイオ燃料電池の高出力密度化に関する研究を行っている。これまでに、従来の研究で問題であった酵素から電極への電子伝達を担うレドックスポリマーの電子伝導律速を解消し、有効に働く酵素量の増加させるために、レドックスポリマーをカーボン微粒子上へグラフト重合した新規酵素電極を開発している。本電極システムにより、従来研究より高い電流密度が得られた。しかし、レドックスポリマーで用いたメディエータの酸化還元電位が比較的貴であるために作動電圧が低いことや、酵素電極中のプロトン伝導律速が要因で、出力密度は従来研究より低い値にとどまっている。そこで、本年度は、電圧増加へ向けてメディエータの固定化手法の検討を行った。

これまでに本研究室で用いてきたビニルフェロセン(VFc)より電位が卑で作動電圧の増加が期待されるメディエータとして、キノン化合物を選択した。しかし、キノン化合物は重合停止作用があるため、直接重合は難しい。そこで、カーボンブラック表面へグラフト重合したポリマーの官能基との反応によりキノン化合物を導入する手法を開発した。反応スキームを Scheme 1 に示す。本反応は、縮合反応によるキノン前駆体のポリマーへの導入と、脱保護基反応によるキノン化合物への変換の二段階反応である。

IR、NMR 測定より、キノン前駆体のポリマーへの固定化および脱保護基反応によるキノン化合物への変換を確認した。合成したキノン

Scheme 1 Reaction scheme for immobilization of hydroquinone derivative to poly(acrylic acid)

固定化ポリマーを電極に物理的に混合した電極の CV 曲線を Fig. 1 に示す。Fig. 1 には VFc ポリマーの CV 曲線を同時に示す。Fig. 1 より、キノン 固定化ポリマーで酸化還元のピークが確認され、酸化還元電位の値より、固定化したキノン化合物 による酸化還元挙動であると考えられた。また、 VFc と比較して酸化および還元が約 0.3 V 卑な領域でおきたことから、本研究で合成したキノン固定ポリマーの利用により、0.3 V 程度の開放起電力の増加が可能である。

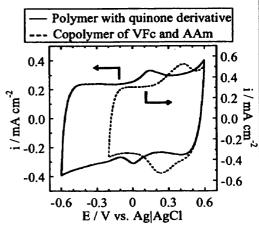


Fig. 1 CVs of redox polymer with hydroquinone derivative and with VFc

- II (1) 学術雑誌等に発表した論文A(掲載を決定されたものを含む.) 共著の場合、申請者の役割を記載すること. (著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)
- 1. Takanori Tamaki, Takeo Yamaguchi,

"High-Surface-Area Three-Dimensional Biofuel Cell Electrode Using Redox-Polymer-Grafted Carbon,"

Ind. Eng. Chem. Res., 2006, 45(9), 3050-3058

申請者の役割: Takeo Yamaguchi(助教授)は指導を担当し、それ以外のコンセプト立案、実験、データ解析等は全て Takanori Tamaki(申請者)が行った。

2. 田巻孝敬、山口猛央

「グルコース燃料を用いた高密度酵素集積型バイオ燃料電池の開発」

燃料電池, Vol. 6 (1), 83-88 (2006)

申請者の役割は1と同様

- II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文 (共同研究者(全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)
- 1. ○田巻孝敬、長谷川馨、山口猛央 レドックスポリマーのグラフト重合を用いたバイオ燃料電池材料システムの開発 電気化学会第 73 回大会、 首都大学東京、 2006 年 4 月
- 2. ○田巻孝敬、山口猛央 バイオ燃料電池における酵素固定化電極の評価と性能向上へ向けた検討 2006 年電気化学秋大会、同志社大学、2006 年 9 月
- 3. ○田巻 孝敬、山口 猛央 バイオ燃料電池における酵素固定化電極の評価と性能向上へ向けた検討 化学工学会 第 38 回秋季大会、福岡大学、2006 年 9 月
- 4. ○Takanori Tamaki, Takeo Yamaguchi (ポスター発表)
 Development of a Biofuel Cell Using Redox-Polymer-Grafted Carbon Electrode
 4th COE 21 International Symposium on Human-Friendly Materials Based on
 Chemistry, The University of Tokyo, October, 2006
- 5. OTakanori Tamaki, Takeo Yamaguchi Development of a Biofuel Cell Using Redox-Polymer-Grafted Carbon Electrode AIChE 2006 Annual Meeting, San Francisco Hilton, CA, November, 2006
- 6. ○Takanori Tamaki, Takeo Yamaguchi (ポスター発表)

 Development of a High Surface Area and All Solid-Type Membrane Electrode

 Assembly Biofuel Cell

UT Symposium on NanoBio Integration NANOBIO-TOKYO, The University of Tokyo, December, 2006

7. ○田巻孝敬, 伊藤大知, 山口猛央 レドックスポリマーをグラフト重合したバイオ燃料電池酵素電極の性能向上へ向けた検討 高分子材料開発のための俯瞰的シンポジウム、東京大学、2007 年 1 月