

導電性中空糸膜電極を用いた電気化学検出法による 糖センサへの応用

非会員 五十嵐 治 (株式会社ニックス) 非会員 宇都 正幸 (北見工業大学)
 非会員 井上 貞信 (北見工業大学) 非会員 星 座 (北見工業大学)
 非会員 菅原 俊継 (北海道工業大学) 非会員 木村 主幸 (北海道工業大学)
 正 員 三澤 顕次 (北海道工業大学) 非会員 有沢 準二 (北海道工業大学)

Application of the Metal Coated Hollow Fiber Membrane Electrode to the Sugar Sensor by Amperometric Detection Method

Osamu Igarashi, Non-member (NIX,INC.), Masayuki Uto, Non-member (Kitami Institute of Technology), Sadanobu Inoue, Non-member (Kitami Institute of Technology), Suwaru Hoshi, Non-member (Kitami Institute of Technology), Toshitsugu Sugawara, Non-member (Hokkaido Institute of Technology), Kazuyuki Kimura, Non-member (Hokkaido Institute of Technology), Kenji Misawa, Member (Hokkaido Institute of Technology), and Junji Arisawa, Non-member (Hokkaido Institute of Technology)

The electrochemical behavior of metal coated hollow fiber membrane electrodes was studied and the application to the amperometric detection of sugars in high-performance liquid chromatography (HPLC) was tried. In the cyclic voltammetry in 0.15M NaOH of the copper coated hollow fiber membrane electrode, broad reduction wave from Cu(III) to Cu(II) was observed, and the peak current decreased with the dependence on the concentration of glucose. This is because the electrocatalytic oxidation of glucose by the metal oxide has been generated. The electrochemical detector for HPLC was designed using in the copper coated hollow fiber membrane electrode, and it was controlled in the potential of which the oxidation current of glucose was observed. In addition, electroconductive hollow fiber membrane electrodes covered with nickel, gold, platinum were developed. The peak current of glucose and value of the noise in each electrode were measured. The detection limits ($S/N=3$) for glucoses were 9.8pmol in case of nickel coated, 2.1pmol on copper coated, 3.5pmol on platinum coated and 19.9pmol on gold coated, respectively. The copper coated hollow fiber membrane electrode was applied as an electrochemical detector in HPLC for the analysis of sugars. At the applied potential of +0.55V against Ag/AgCl, the linear responses of sugars on the copper coated hollow fiber membrane electrode were found in the range from 10 to 200 μ M. We concluded from the experiment described above that application of the metal coated hollow fiber membrane electrode to the sugar sensor was useful.

キーワード：導電性中空糸膜電極，高速液体クロマトグラフィ，電気化学検出器，サイリックボルタンメトリ

Keywords: metal coated hollow fiber membrane electrode, high-performance liquid chromatography, electrochemical detector, cyclic voltammetry

1. まえがき

糖類およびその関連物質に関する分析は，食品学，薬学，生化学，臨床化学などのさまざまな分野で研究が進められ

ている。糖類の多くは，それ自身強い紫外吸収や光学的に検出できる発色基を持たないことから未修飾の糖の検出は，示差屈折率検出器を用いる方法⁽¹⁾⁽²⁾や紫外領域に吸収をもつソルビン酸塩などを用いる間接吸光検出法⁽³⁾が一

般的となっている。しかし、これらの方法は、いずれも感度および選択性に問題があり、これらの問題を解決する手段として、糖類を誘導体化させ紫外吸光検出や蛍光検出するなどの試みがなされている^{(4) (5)}。特に蛍光検出法は、高感度で選択性も良いが誘導体化させる操作が煩雑で反応の収率の問題や試薬による汚染の問題が残されている。一方、糖類を誘導体化させずに直接検出する方法として、強アルカリ条件下で金属 (Ni, Cu, Pt, Au) 電極を用いて糖類を高感度に検出するものがある^{(6) ~ (10)}。これは金属酸化物電極が、糖類の酸化反応に対して触媒的活性を示すことを利用して電気化学的に検出する方法である。

電気化学検出器の電極は、一般的に平面電極を使用し、その電極表面を厚さ 10~100 μm の溶液が通過することにより、電極表面に到達した分子やイオンが反応し検出される。しかし目的成分が低濃度の場合、測定精度が極端に低下するため、表面積の大きい高感度な電極が望まれている。そこで我々は、浄水器などに用いられているポリエーテルスルホンやポリプロピレンなどの多孔質中空糸膜が、極めて大きな表面積を有することに着目した。もし、この膜表面に金属層を形成することが可能であれば、反応効率の高い高感度な電極になると考え、金属被覆導電性中空糸膜 (Metal Coated Hollow Fiber Membrane; MCH) を開発した⁽¹¹⁾。そして、高速液体クロマトグラフィ (High-Performance Liquid Chromatography; HPLC) を用いた電気化学検出器の電極として糖類を検出するセンサへ応用する検討を行ってきた^{(12) (13)}。この新たに開発された膜電極は電極であると同時に、独自の袋構造ゆえに検体の反応室の機能を兼ね備えている。したがって、構造が簡単で安価なセンサを実用化することが可能である。また、微量な化学物質が金属被覆された多孔質中空糸膜の細孔を通過するごとに細分化され、細孔部の金属と接触することから反応効率が高く、高感度な電極として期待されている⁽¹³⁾。仮に、この電極が糖類の検出において極めて高い感度のセンサとなれば、糖鎖を軸とするポストゲノム解析や漢方剤の薬理効果をモニタリングする生体分析などの研究に大きく寄与することが可能となる。

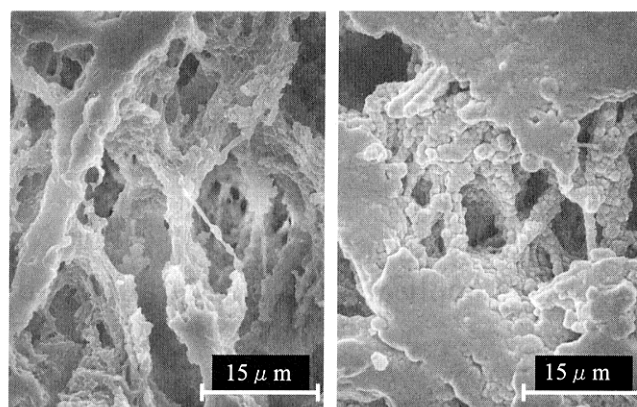
本論文では、導電性中空糸膜⁽¹¹⁾を HPLC を用いた電気化学検出器の電極として用い、糖類を検出する上で最も高感度な金属材料の選定をはじめて行った。また最適金属材料の電極を用いてサイクリックボルタンメトリ (Cyclic Voltammetry: CV) の作用電極とし、糖の共存下での酸化還元反応の評価を行った。次に、この膜電極をフローセルタイプの糖センサに改良し、繰り返し応答性や電極寿命などの評価および従来電極との比較を行い、実用化の可能性を具体的に検討した。

2. 実験方法

〈2.1〉 試薬 糖は、グルコース (和光純薬株式会社 特級) を用いた。CV に用いた各糖溶液は 0.15M の水酸化ナトリウム溶液で、HPLC に用いた糖溶液は、蒸留水でそ

れぞれ目的濃度へ希釈した。

〈2.2〉 電極材料 本研究で使用した導電性中空糸膜は、ポリプロピレン製でアクゾ社 S6/2 タイプ (外径 1.8 mm, 内径 1.2 mm, 膜厚 0.2 mm, 細孔径 0.2~0.6 μm) に無電解メッキ法を用いて金属を被覆したものである⁽¹¹⁾。導電性中空糸膜電極長は、8 mm に統一し金属被覆材質をニッケル、銅、白金および金の 4 種類とし、それぞれ用意した。導電性中空糸膜の電子顕微鏡写真を Fig.1 (a), (b) に示す。



(a) Enlarged view of the original (b) Enlarged view of the metal layer

図1 金属被覆導電性中空糸膜の電子顕微鏡写真
Fig. 1. SEM photographs of the metal coated hollow fiber membrane.

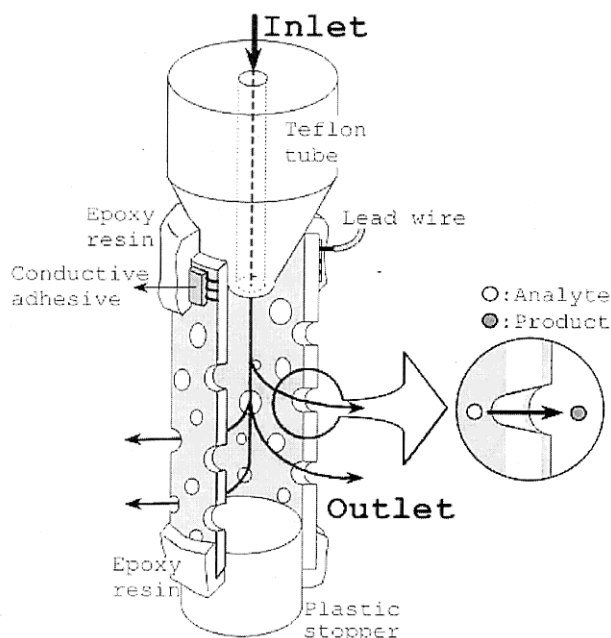


図2 導電性中空糸膜電極の概念図
Fig. 2. Schematic diagram representation of the metal coated hollow fiber membrane electrode.

膜の形状は円筒状でポリプロピレン層と金属層（表面から数十 μm の厚さ）から成っている。実験では、この導電性中空糸膜を Fig.2 のようにモジュール化して使用した。電極に移動相を導入する際のテフロンチューブの内径は、0.5 mm とした。

(2.3) 装置とその方法

(2.3.1) 液体クロマトグラフィ 被覆金属材質の違いによる糖の応答挙動試験に用いた測定系の模式図を Fig.3 に示す。ここで、高速液体クロマトグラフィ (HPLC) には DIONEX 社製 AS7 陰イオン交換カラムを組み込み HPLC ポンプには日立 L-6010pump, レコーダには、日立 D-2500Chromato-Integrator, ポテンシオスタット, 作用電極に導電性中空糸膜電極, 参照電極に銀/塩化銀電極, 対極は白金コイルを使用した。Fig.3 の各電極は、ポテンシオスタットに接続し、ポンプの流速を 1ml/min, 移動相に 0.45 μm のメンブランフィルターで濾過した 0.15M 水酸化ナトリウム溶液を用いた。移動相を使用している間は、空気中の二酸化炭素吸収を防ぐため、二酸化炭素吸収剤であるソーダライムを移動相溶液タンクに設置した。各被覆金属材質 (Ni, Cu, Pt, Au) の最適電極電位を決定するために、電極長さを 8 mm と一定にして、異なる濃度のグルコース (Ni ; 2 μM , Cu ; 20 μM , Pt ; 20 μM , Au ; 1 mM) を電極電位を変えながら注入し、ピーク電流値, ピーク面積, 反応率, ベース電流値およびノイズを測定した。

(2.3.2) サイクリックボルタモグラム サイクリックボルタモグラム (Cyclic Voltammogram) の測定は、電極電位を一定速度で変化させながら電極上で起こる電気化学的な反応を電流としてとらえるもので、ポテンシオスタットに扶桑製 HECS 311B15-01 型, ポテンシャルスイーパーに扶桑製 HECS 321B 型, XY レコーダは理化電子製 PW-21, 作用電極に導電性中空糸膜電極, 参照電極に銀/塩化銀電極, 対極は白金コイルを使用した。0.15M の水酸化ナトリウム溶液を支持電解質溶液とし、電位掃引幅を -0.1V ~ +0.8V, 掃引速度を 100mV/sec で計測した。電位掃引開始後、サイクリックボルタモグラムが一定となるまで繰り返し、次にグルコース濃度が 1 mM, 2mM, 3mM になるように調整して注入し各濃度におけるサイクリックボルタモグラムを得た。

(2.3.3) 開発した糖センサの評価 今回開発したフローセルタイプ糖センサの原理図を Fig.4 に示す。セル全体の材質は強アルカリ溶液に対して耐性のあるビクトレックス・エムシー社の PEEK (Poly Ether Ether Ketone) 樹脂を使用した。作用電極に導電性中空糸膜電極, 参照電極に銀/塩化銀電極, 対極は白金コイルを使用した。他の測定器は、2.3.1 節と同じものを使用した。

(1) 検量線 銅被覆導電性中空糸膜電極を用いグルコース濃度を 10, 20, 50, 100, 200 μM に設定し、1 回あたりの注入量を 20 μl として検量線を得た。

(2) 再現性および耐久性 この膜電極は、深部の細孔部まで金属被覆されていることによって、高感度・高出力を

可能にしているが独自の電極構造であるために基礎的性能の評価が必要である。すなわち、フロー系において繰返し注入される糖が、膜電極界面で連続的に酸化還元反応を行い、正確に電気信号として出力し続ける応答性の評価である。また、高濃度の糖を注入することで細孔部の目詰まりが進行し、注入圧力の上昇による膜電極の耐久性を評価する必要もある。そこで、銅被覆導電性中空糸膜電極を用いグルコース濃度を 20 μM に設定した溶液を 1 回あたり 20 μl 注入し、この測定を 30 回繰返し再現性の評価を行った。次に、銅被覆導電性中空糸膜電極を 2 本用意し、グルコース濃度を再現性試験の 10 倍の 200 μM に設定する。1 回あたりの注入量を 20 μl とし 1 日に 5 回注入する。その日に使用した電極は、測定終了後その状態で放置し翌日、再び使用してその耐久性の評価を行った。

(3) 従来電極との比較 反応金属系を統一するためニッケル被覆した導電性中空糸膜を用い、グルコース濃度を 50 μM に設定した溶液を 1 回あたり 20 μl 注入し、BAS (Bioanalytical Systems, Inc., West Lafayette, USA) 薄相型フローセルのニッケルロッド電極との応答比較を行った。

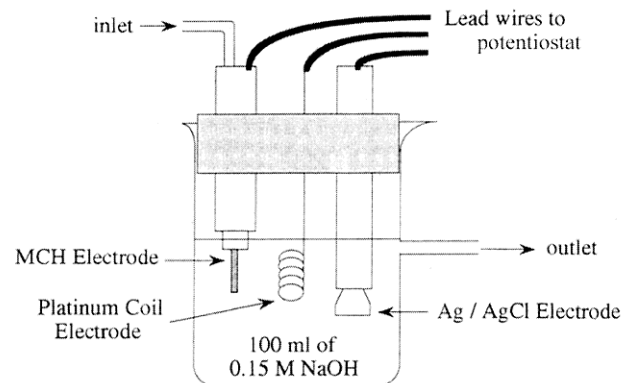


図3 フローセル模式図

Fig. 3. Diagram of the cell assembly.

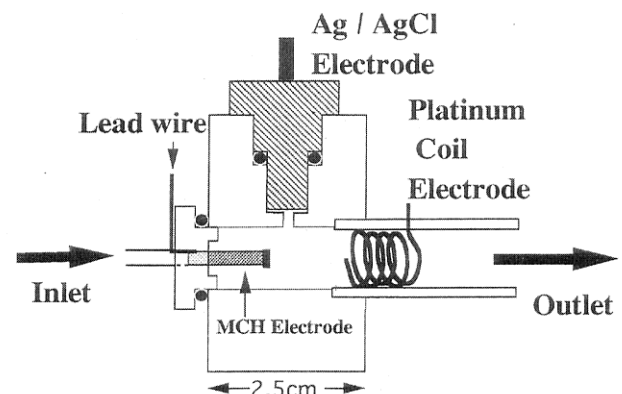


図4 開発したフローセル糖センサ

Fig. 4. Diagram of the flow cell assembly.

3. 実験結果と考察

(3・1) 導電性中空糸膜における糖検出の最適金属材料

遷移金属以外の貴金属系金属電極においても糖の電気化学的酸化を電流としてとらえられることが知られている。そこで、ニッケル、銅に加えて白金と金の4種類を被覆した導電性中空糸膜を準備し、HPLC用電気化学検出器としての機能を評価した。導電性中空糸膜電極の各被覆金属における電極電位は、Ni; +0.50 V, Cu; +0.60 V, Pt; +0.50 V, Au; +0.25 Vで糖に由来するピーク電流値が極大を示し、その後減少した。しかし、ベース電流値、ノイズは、電極電位の増大に依存して上昇した。ピーク電流値が高く、かつノイズが低い電極電位がより高感度な検出には必要で、結果としてそれぞれの電極電位は、Ni; +0.45 V, Cu; +0.55 V, Pt; +0.50 V, Au; +0.20 Vとなった。また、各電極電位のグルコース検出に適した金属材料の実験結果を Fig.5, Fig.6 に示す。

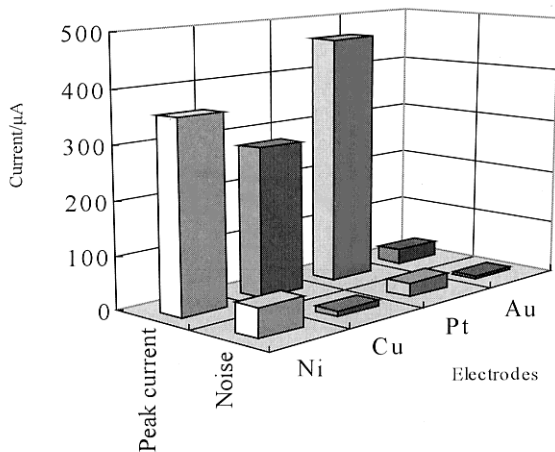


図5 各電極材質による最大電流とノイズ

Fig. 5. Evaluation of the maximum electric current and the noise by the difference of the coated metal.

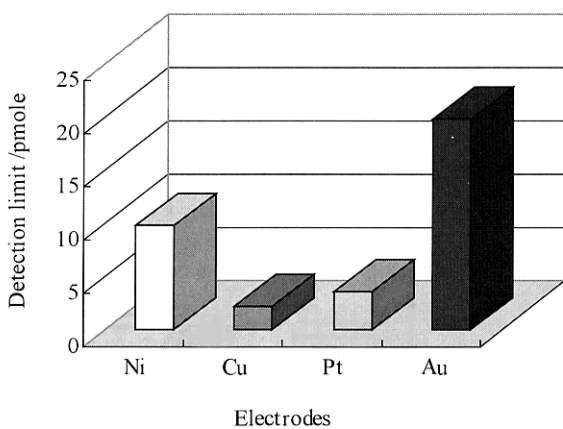


図6 各電極材質による検出限界

Fig. 6. Detection limit of each metal coated hollow fiber membrane electrode obtained from 20 pmol of glucose in 0.15M NaOH (defined as signal-to-noise ratio of 3).

比較項目は 20pmol のグルコースを検出した際のピーク電流値、ノイズそして信号対ノイズ比(S/N)を3とした時の検出限界値である。ピーク電流値は電極材質によって異なるが、より大きな出力が得られている金属材料は①白金②ニッケル③銅④金の順となった。また、低ノイズとなる場合には①金②銅③白金④ニッケルの順となった。次に S/N=3とした際の糖の検出限界値では、①銅②白金③ニッケル④金の順となった。導電性中空糸膜の各種金属層は、無電解メッキ法で形成されている。そのため、析出された金属層の厚さや密度は、一般のロッド電極表面と異なっている。したがって、これらの違いがピーク電流値やノイズの結果に影響を与えていると考えている。本実験では銅被覆電極の検出限界が一番低く、高感度であることを明らかにした。

(3・2) 導電性中空糸膜電極の電気化学的応答挙動

水酸化ナトリウム 0.15M 溶液中に四種類の金属材料で一番高感度の結果が得られた銅被覆導電性中空糸膜電極のサイクリックボルタモグラムを Fig.7 に示す。

金属の酸化還元起因する電流の変化が観測されているが、導電性中空糸膜は数Ω/cm程度の電気抵抗を持つために金属棒を電極として用いた場合に比べてブロードなピークとなった。糖を共存させると、その濃度に依存して還元波は減少した。銅電極はアルカリ性溶液中で Cu(II)(OH)₂を

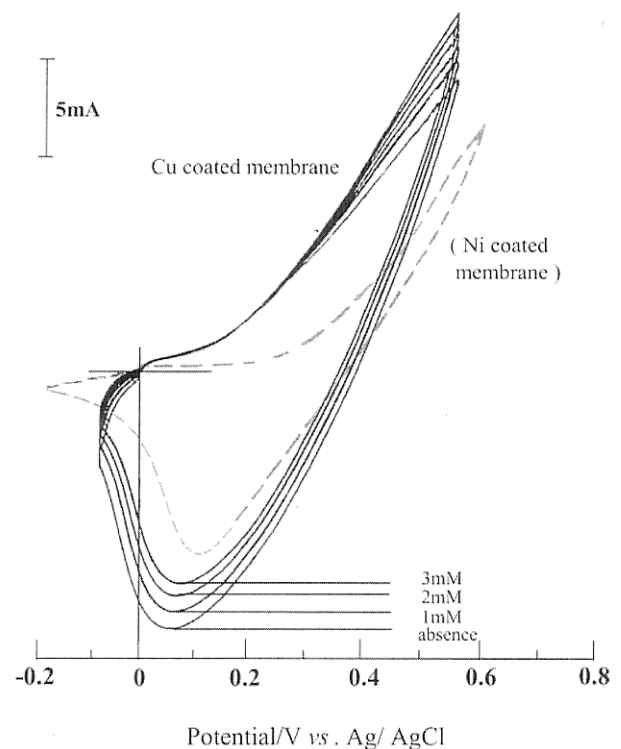


図7 銅被覆中空糸膜電極のサイクリックボルタモグラム

Fig. 7. Voltammetric responses of copper-coated hollow fiber membrane electrode at a scan rate of 100 mV/sec, which were observed at the glucose concentration being from 0 to 3 mM.

経て Cu(III)OOH となり、グルコース (糖分子) 共存下で電気化学的な触媒作用が働き、糖のヒドロキシル基の酸化と金属の酸化物の還元反応が生じることが知られている^{(14) (15)}。この反応は糖のラジカル形成を経由するために、1 個のヒドロキシル基が酸化されるとき 2 個の Cu(II)(OH)₂ を生成する 2 電子反応である。共存する糖によって Cu(III) が消費されるためにサイクリックボルタモグラムにおける還元波は糖の濃度に依存して減少する。これらのことから検出限界値が最も低かった銅被覆導電性中空糸膜電極において電気化学触媒反応によって糖が酸化されることがわかった。

〈3・3〉 開発した糖センサの性能 グルコース濃度を変化させた際の検量線を Fig.8 に示す。

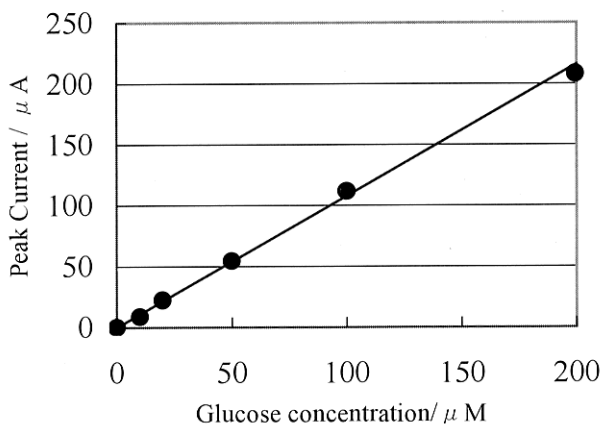


図 8 銅被覆導電性中空糸膜電極の検量線

Fig. 8. Calibration curve of a copper-coated hollow fiber membrane electrode, mobile phase: 0.15M NaOH, flow rate: 1.0 ml/min, sample: 20μl of glucose, applied potential; +0.55 V against Ag/AgCl.

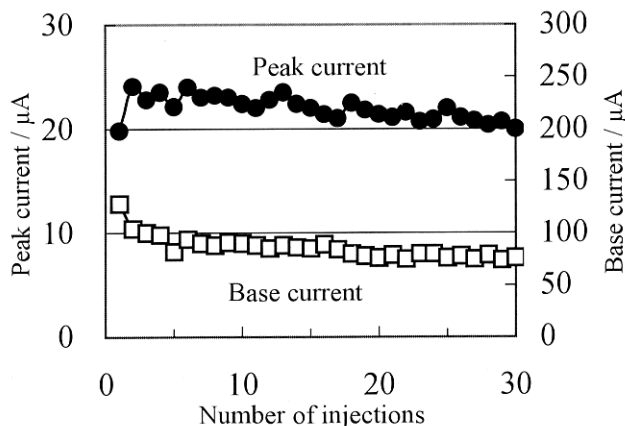


図 9 銅被膜導電性中空糸膜の再現性

Fig. 9. Reproducibility of the copper-coated hollow fiber membrane electrode in 0.15M NaOH, 20 μM glucose solution.

銅被覆導電性中空糸膜電極で得られた電流信号は 10~200 μM の範囲でグルコースに比例して増大した。また、検量線の相関係数は 0.998 であり、良い直線性を示している。グルコース濃度を 20 μM と一定にし、20 μl の注入を 30 回繰り返した際の再現性の結果を Fig.9 に示す。ベース電流がやや減少する傾向になっているが、ピーク電流値は安定しており 30 回のグルコース注入に対する応答再現性は相対標準偏差で 5.3% であり良好といえる。尚、初回の注入に対するピーク電流値の低さは、銅電極表面に形成される糖を酸化する銅酸化物が十分に形成されていなかったためと考えている。次に、この結果を参考に 1 回に注入するグルコース濃度を 10 倍の 200 μM に増し 1 日に 5 回注入する条件にて耐久性を評価した結果を Fig.10 に示す。

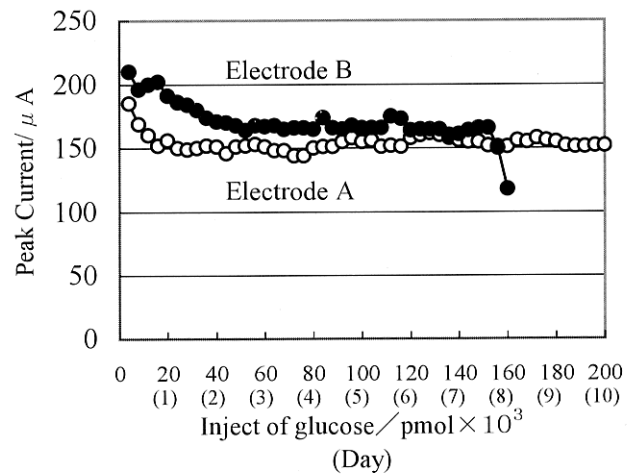


図 10 銅被膜導電性中空糸膜電極の耐久性

Fig. 10. Life test of the copper-coated hollow fiber membrane electrode in 0.15M NaOH, 200 μM glucose solution.

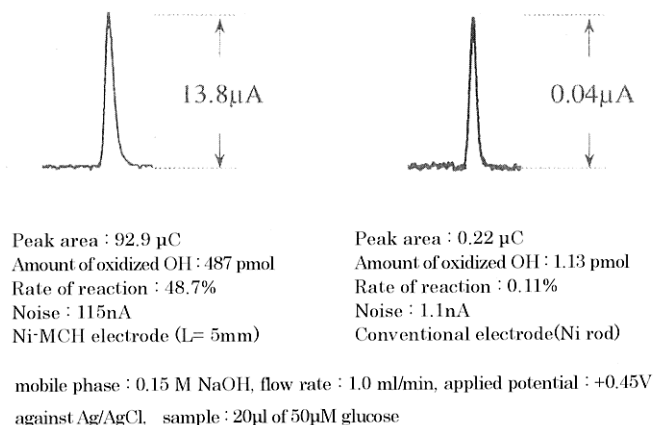


図 11 導電性中空糸膜電極と従来電極の応答比較
Fig. 11. Chromatograms obtained with metal coated hollow fiber membrane and conventional electrodes.

電極Bは、8日目で導電性中空糸膜電極にクラックが入り測定値が不確定となり翌日は測定不能となった。

電極Aは10日目に入ってクラックが目立ち始めたのでここを限界として試験を中止した。次に、BAS製のフローセルとの応答信号の比較をFig.11に示す。グルコース濃度を50 μM とし20 μl 注入した際のピーク電流値は、導電性中空糸膜電極の方が約350倍高くなっている。反応率では、得られた電流量からモル数を計算しグルコース1分子中にある水酸基は、反応の一つしか関与しないものとして計算し約500倍高い結果となっている。今回のフローセルを一体化させた糖センサは、ピーカーに組み込まれた簡易型の場合と比べ、電極近くに反応後の溶液が存在しないことから検量線の直線性が向上した。

4. むすび

本論文では、導電性中空糸膜を電気化学検出器の電極として、はじめて糖センサに応用することを試みた。ニッケル、銅、白金および金を被覆した導電性中空糸膜電極について、グルコースの検出を行った結果、ピーク電流値は、白金が高く、ノイズが低いのは金であった。また、 $S/N=3$ とした際の検出限界は、銅が最も低く2.1pmolであった。この検出限界値の応用分野は、乾燥きのこ中のマンニトールの分析や昨今、虫歯抑制甘味料として脚光を浴びているキシリトールの血清や唾液中の残存量の検出⁽¹⁶⁾に適している。また、検出する試料が微量で、なおかつ希釈分注し多項目の検査が必要な際にも検出限界値の低いセンサは有効である。次に、フロー系に改良した糖センサの再現性評価では、電極電位を+0.55Vに保つことで、注入された糖による銅の還元反応に伴った金属の再酸化を電流信号として繰返し捉えることができ、再現性は良好な結果であった。また、耐久性については、この糖センサを数ピコモル以下の高感度領域で使用するのであれば、一回に注入するグルコース濃度を今回ほど高くする必要はなく、濃度設定を再検討する必要はあるが、導電性中空糸膜電極としての限界を見極める意味では有効であったと考えている。

この導電性中空糸膜電極の今後の課題は、高い出力と同時にノイズも多く検出してしまうことである。したがって、この改善が検出限界値を低減させる上で重要である。特に導電性中空糸膜電極の内径が糖を注入するテフロンチューブの内径より大きいために膜電極内部で糖溶液が乱流を起こすことの構造的改善や電極自身の持つ電気抵抗の低減を行うことは、HPLCにおけるピーク部のシャープ化を可能にし、さらに高感度となることが期待できる。

以上の結果は、導電性中空糸膜が被覆する金属材質によって検出限界値が違うものの極めて高い出力が得られる画期的な糖センサの電極として応用できることを示したものと考えている。

終わりに、本研究にあたって糖に関する高感度検出のご指導をいただいた北里大学大学院感染制御科学府の山田陽城教授、清原寛章助教授に感謝いたします。また、高速液

体クロマトグラフィに関してご指導いただいた東京理科大学薬学部の中村洋教授に感謝いたします。

(平成14年4月25日受付, 平成14年6月28日再受付)

文 献

- (1) A. E. Bruno, B. Krattiger, F. Mayster, and H. M. Widmer : "On-Column Laser-Based Refractive Index Detector for Capillary Electrophoresis", *Anal. Chem.*, **63**, pp.2689-2697 (1991)
- (2) B. Krattiger, G. J. M. Bruin, and A. E. Bruno : "Hologram-Based Refractive Index Detector for Capillary Electrophoresis : Separation of metal Ions", *Anal. Chem.*, **66**, pp.1-8 (1994)
- (3) A. Klockow, A. Paulus, V. Figueiredo, R. Amado, and H. M. Widmer : "Determination of carbohydrates in fruit juices by capillary electrophoresis and high-performance liquid chromatography", *J. Chromatogr. A*, **680**, pp.187-200 (1994)
- (4) A.Klockow, R.Amado, H.M.Widmer, and A.Paulus : "Separation of 8-aminonaphthalene-1,3,6-trisulfonic acid-labelled neutral and sialylated N-linked complex oligosaccharides by capillary electrophoresis", *J. Chromatogr. A*, **716**, pp.241-257 (1995)
- (5) N. Kiba, K. Saegusa, and M. Furusawa : "Post-column enzyme reactors for chemiluminometric detection of glucose, 1, 5-anhydroglucitol and 3-hydroxybutyrate in an anion-exchange chromatographic system", *J.Chromatogr. B*, **689**, pp.393-398 (1997)
- (6) D. C. Johnson and W. R. LaCourse : "Liquid Chromatography with Pulsed Electrochemical Detection at Gold and Platinum Electrodes", *Anal. Chem.*, **62**, pp.589A-597A (1990)
- (7) I. G. Casella, T. R. I. Cataldi, A. M. Salvi, and E. Desimoni : "Electrocatalytic Oxidation and Liquid Chromatographic Detection of Aliphatic Alcohols at a Nickel-Based Glassy Carbon Modified Electrode", *Anal. Chem.*, **65**, pp.3143-3150 (1993)
- (8) M. B. Jensen and D. C. Johnson : "Fast Wave Forms for Pulsed Electrochemical Detection of Glucose by Incorporation of Reductive Desorption of Oxidation Products", *Anal. Chem.*, **69**, pp.1776-1781 (1997)
- (9) P. Singhal, K. T. Kawagoe, C. N. Christian, and W. G. Kuhr : "Sinusoidal Voltammetry for the Analysis of Carbohydrates at Copper Electrodes", *Anal. Chem.*, **69**, pp.1662-1668 (1997)
- (10) Z. L. Chen and D. B. J. Hibbert : "Simultaneous amperometric and potentiometric detection of sugars, polyols and carboxylic acids in flow systems using copper wire electrodes", *J. Chromatogr. A*, **766**, pp.27-33 (1997)
- (11) M.Sano, N.Katsuura, O.Igarashi, A.Nakayana, T.Imamura, and K.Kadotani, : "Resin Membrane Having Metallic Layer and Method of Producing the Same", U.S.patent 5510195 (1992.2.27)
- (12) M. Uto, K. Kodama, K. Ishimori, Y. Kudo, S. Hoshi, and M. Matsubara : "Nickel-Coated Hollow-Fiber Electrode for the Electrochemical Detection of Carbohydrates", *Anal. Sci.*, **10**, pp.835-837 (1994)
- (13) O.Igarashi, M.Uto, S.Inoue, S.Hoshi, T.Sugawara, K.Kimura, K.Misawa, and J.Arisawa, : "Electrochemical Behavior of the Metal Coated Follow Fiber Membrane Electrodes and Application to the Amperometric Detection of Sugars" MEMBRANE **27** (3), pp.145-150 (2002-3) (in Japanese)
五十嵐治・宇都正幸・井上貞信・星座・菅原俊継・木村主幸・三澤頭次・有澤準二 : 「導電性中空糸膜電極の電気化学的応答特性と糖類の電気化学検出への応用」, 膜学会論文誌, **27**, 3, pp.145-150 (2002-3)
- (14) N. Watanabe and M.Inoue : "Amperometric Detection of Reducing Carbohydrates in Liquid Chromatography", *Anal. Chem.*, **55**, pp.1016-1019 (1983)
- (15) K.Kano, M.Torimura, Y.Esaka, M.Goto, and T.Ueda : "Electrocatalytic oxidation of carbohydrates at copper(II)-modified electrodes and its application to flow-through detection", *J. Electroanal. Chem. Interfacial Electrochem.*, **372**, pp.137-143 (1994)

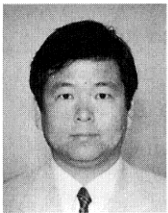
- (16) K. Ohsawa, Y. Yoshimura, S. Watanabe, H. Tanaka, A. Yokota, K. Tamura, and K. Imaeda: "Determination of Xylitol in Human Serum and Saliva by Ion Chromatography with Pulsed Amperometric Detection", *Anal. Sci.*, 10, p.165 (1986)

五十嵐 治



(非会員) 1954年1月24日生まれ。1977年北海道工業大学電気工学科卒業。同年日幸工業株式会社開発部入社。同年より株式会社日立製作所大みか工場にて、電磁接触器の開発に従事。1981年より導電性樹脂、導電性中空糸膜の応用研究に従事。現在、NIXAM(ニグザム)製品事業部事業部長。

宇都 正幸



(非会員) 1960年6月14日生まれ。1983年北海道大学理学部化学科卒業。1988年同大学院理学研究科博士後期課程化学系専攻修了。1990年北見工業大学環境工学科助手。1995年同大地域共同研究センター助教授、現在に至る。主に人工細胞膜を用いた電気化学的センシングに関する研究に従事。理学博士。

井上 貞信



(非会員) 1943年3月2日生まれ。1966年北海道大学水産学部水産製造学科卒業。同年北見工業大学環境工学科助手。1977年同講師。1978年同助教授。1994年同大機能材料工学科教授、現在に至る。主に希土類元素の抽出分離に関する研究に従事。工学博士。

星 座



(非会員) 1951年4月16日生まれ。1975年室蘭工業大学工学部工業化学科卒業。1980年北海道大学大学院工学研究科博士後期課程化学専攻修了。同年北見工業大学環境工学科助手。1987年同講師。1989年同助教授。1996年同大化学システム工学科教授、現在に至る。主に微量成分の光学検出分析法の設計、機能性分離素材の開発に従事。工学博士。

菅原 俊継



(非会員) 1973年7月9日生まれ。1996年北海道工業大学応用電子工学科卒業。2001年同大学大学院工学研究科応用電子工学専攻博士後期課程修了。同年同大学福祉生体工学科講師。現在に至る。電気殺菌、細菌・ウイルスの遺伝子抽出に関する研究に従事。工学博士

木村 主幸



(非会員) 1952年8月28日生まれ。1977年北里大学大学院修士課程修了。1978年北海道大学大学院医学研究科細菌学専攻博士課程中退。同年同大学助手。1990年北海道工業大学講師。1991年同助教授。1997年同教授、現在に至る。主に磁場の細菌感染・ウイルス感染に関する研究に従事。医学博士。

三澤 顕次



(正員) 1954年2月13日生まれ。1976年北海道工業大学電気工学科卒業。同年同大学電気工学科助手。1987年同大学応用電子工学科講師。1990年同助教授。1996年同教授、現在に至る。主として興奮性生体人工膜、人工膜による味センシングなどの研究に従事。工学博士。

有澤 準二



(非会員) 1952年3月31日生まれ。1974年北海道工業大学電気工学科卒業。1980年北海道大学大学院博士課程修了。同年北海道工業大学電気工学科講師。1983年同助教授。1992年同教授、現在に至る。主にバイオセンサ、生体人工膜、環境電磁工学に関する研究に従事。工学博士。