

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5186633号
(P5186633)

(45) 発行日 平成25年4月17日(2013.4.17)

(24) 登録日 平成25年2月1日(2013.2.1)

(51) Int. Cl. F I
GO 1 N 27/327 (2006.01) GO 1 N 27/30 3 5 3 F
GO 1 N 27/416 (2006.01) GO 1 N 27/30 3 5 3 R
 GO 1 N 27/46 3 3 8

請求項の数 7 (全 25 頁)

(21) 出願番号	特願2010-203899 (P2010-203899)	(73) 特許権者	000002897
(22) 出願日	平成22年9月13日 (2010.9.13)		大日本印刷株式会社
(65) 公開番号	特開2012-58168 (P2012-58168A)		東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号
(43) 公開日	平成24年3月22日 (2012.3.22)	(74) 代理人	110000408
審査請求日	平成24年1月30日 (2012.1.30)		特許業務法人高橋・林アンドパートナーズ
早期審査対象出願		(72) 発明者	渡辺 正直
			東京都新宿区市谷加賀町一丁目一番一号
			大日本印刷株式会社内
		(72) 発明者	伊藤 健一
			東京都新宿区市谷加賀町一丁目一番一号
			大日本印刷株式会社内
		(72) 発明者	石井 睦
			宮城県仙台市宮城野区苦竹3丁目5番1号
			株式会社DNP東北内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイオセンサ及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

絶縁性を有する表面を含む第1の基材と、
 前記第1の基材の前記絶縁性を有する表面上に配置された第1の接着層と、
 前記第1の接着層を介して前記第1の基材に固着された電極系及び配線部と、を備え、
 前記電極系は上部電極層と下部電極層と、を含み、前記下部電極層は前記上部電極層よりも導電性の高い材料で形成され、
 前記電極系は作用極及び対極を含み、前記作用極上に位置する酵素及び電子受容体を含む酵素反応部を備え、
 前記下部電極層と前記配線部とは一体で構成され、
 前記上部電極層はカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して形成され、厚みが0.3 μm以上2 μm以下であり、
 前記下部電極層及び前記配線部はアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含み、
 前記作用極及び前記対極は、前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して形成されることを特徴とするバイオセンサ。

【請求項2】

前記下部電極層と前記配線部は同一の材料から構成されていることを特徴とする請求項1記載のバイオセンサ。

【請求項3】

前記電極系は少なくとも1つの参照極を含み、
 前記参照極は、上部電極層と下部電極層と、を含み、前記下部電極層は前記上部電極層よりも導電性の高い材料で形成され、
 前記下部電極層と前記配線部とは一体で構成され、
 前記上部電極層はカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して形成され、厚みが0.3 μm以上2 μm以下であり、
 前記下部電極層及び前記配線部はアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含み、
 前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して形成されることを特徴とする請求項1又は2に記載のバイオセンサ。

10

【請求項4】

前記第1の基材の上部に、第2の基材、第3の基材が順に積層され、
 前記第1の基材と前記第2の基材とを貼り合わせる第2の接着層と、前記第2の基材と前記第3の基材とを貼り合わせる第3の接着層と、を有し、
 前記第2の基材は、前記第2の基材の外縁及び前記作用極に通じる試料供給路を備え、
 前記第1の基材と前記第2の基材とは、前記第1の接着層及び前記第2の接着層を介して密着され、
 前記第3の基材は前記第2の基材を覆うように、前記第1の接着層を介して前記第1の基材に固着されていることを特徴とする請求項1乃至3の何れか一に記載のバイオセンサ。

20

【請求項5】

前記試料供給路に接続され前記第2の基材の外縁に通じる流路を有することを特徴とする請求項4に記載のバイオセンサ。

【請求項6】

第1の基材の絶縁性を有する表面上に第1の接着層を形成し、
 前記第1の接着層にアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含む金属箔を貼合し、該金属箔をパターンングして下部電極層及び該下部電極層に一体で構成された配線部を形成し、
 前記下部電極層の上部表面にカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して、厚みが0.3 μm以上2 μm以下の上部電極層を形成し、
 前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して作用極及び対極を含む電極系を形成することを特徴とするバイオセンサの製造方法。

30

【請求項7】

基材の下面に第3の接着層を形成し、上面に第2の接着層を形成し、試料供給路及び空気抜き流路を形成して第2の基材を製造し、
 前記第2の基材と、第3の基材とを前記第3の接着層を介して貼合し、
 前記電極系を形成した前記第1の基材の面と、前記第2の基材とを前記第1の接着層及び前記第2の接着層を介して密着して貼合し、且つ、前記第1の基材の面と前記第3の基材とを前記第1の接着層を介して貼合することを特徴とする請求項6に記載のバイオセンサの製造方法。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はバイオセンサに関し、特に試料中の特定成分を高感度に測定するバイオセンサ及びその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

血液等の生体試料中の特定成分について迅速かつ簡便に濃度等を測定する方法として、電気化学的検出手段によるバイオセンサが実用化されている。このようなバイオセンサの一例として、電気化学的に血液中のグルコースを定量化するグルコースセンサがある。

50

【 0 0 0 3 】

グルコースセンサでは、作用極と対極を含む電極系、酵素及び電子受容体を基本構成として備えている。酵素は血液中のグルコースを選択的に酸化してグルコン酸を生成し、また同時に電子受容体を還元して還元体を生じる。この還元体に電極系で一定の電圧を印加することで還元体が再び酸化され、その際に電流が発生する。この電流が血液中のグルコース濃度に依存することから、血液中のグルコースを定量化することができる。

【 0 0 0 4 】

従来のバイオセンサでは銀ペーストをスクリーン印刷することでリード配線を形成し、リード配線上に導電性カーボンペーストを印刷して電極系を形成していた（特許文献 1、特許文献 2 参照）。従来のバイオセンサでは電極系を導電性カーボンで形成するため、配線の抵抗が大きなものとなり、電極表面の電位にばらつきが生じやすく、グルコース濃度の測定精度の低下につながっていた。また、銀ペーストは、空気に触れている面は酸化し易く酸化銀となり高抵抗となるため、リード配線の配線抵抗が安定しない。

10

【 0 0 0 5 】

特許文献 3 には、絶縁性基板上に導電層を備え、導電層上に設けた第 1 炭素層と、第 1 炭素層を覆う第 2 炭素層を備えた電気化学センサが提案されている。しかし、特許文献 3 における電気化学センサでは長時間測定、繰り返し測定を目的としており、用いる導電層、特に参照極の材料に貴金属を用いざるを得ない、且つ真空成膜により形成する必要がある等の制約があり、そのような電気化学センサを製造するには材料コスト、工程の増加を招くという問題があった。さらに絶縁性基板と導電層の密着を高めるために Cr、Ti 等の密着性の導電層を形成する必要があり、更なる工程及びコスト増を招くという問題があった。

20

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 0 6 】

【 特許文献 1 】 特開平 8 - 1 5 2 2 0 号公報

【 特許文献 2 】 特開平 8 - 5 6 0 0 号公報

【 特許文献 3 】 国際公開第 W O 2 0 1 0 / 0 0 4 6 9 0 号パンフレット

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

30

【 0 0 0 7 】

グルコースセンサ等に代表される医療用のバイオセンサは使い捨てで、患者は次の検査時には新しいバイオセンサを使用する。また、測定時間も数秒～数十秒と非常に短く、長時間の測定安定性は求められない。このような使い捨て型のバイオセンサにおいては、(1) 高感度であること、(2) 材料及び製造にかかるコストが低いこと、が主として望まれる。しかし、上述の従来技術ではこれらの要請に応えることは困難であった。

【 0 0 0 8 】

上記の実情を鑑みて、本発明の目的は、試料中の特定成分についてその濃度等を高感度に測定し、かつ安価に製造可能なバイオセンサ及びその製造方法を提供することにある。

【 課題を解決するための手段 】

40

【 0 0 0 9 】

本発明の一実施形態によると、絶縁性を有する表面を含む第 1 の基材と、前記第 1 の基材の前記絶縁性を有する表面上に配置された第 1 の接着層と、前記第 1 の接着層を介して前記第 1 の基材に固着された電極系及び配線部と、を備え、前記電極系は上部電極層と下部電極層と、を含み、前記下部電極層は前記上部電極層よりも導電性の高い材料で形成され、前記電極系は作用極及び対極を含み、前記作用極上に位置する酵素及び電子受容体を含む酵素反応部を備え、前記下部電極層と前記配線部とは一体で構成され、前記上部電極層はカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して形成され、厚みが 0 . 3 μ m 以上 2 μ m 以下であり、前記下部電極層及び前記配線部はアルミニウム、銅、鉄の何れか 1 種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を 1 種以上の合金を含み、前記作

50

用極及び前記対極は、前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して形成されることを特徴とするバイオセンサが提供される。

【0010】

上部電極層と、上部電極層よりも導電性の高い、すなわち低抵抗の材料で形成された下部電極層とを積層することにより、従来に比べて電極系の抵抗値を大幅に下げることができ、高感度のバイオセンサを提供することができる。また、下部電極層と配線部とを一体的に構成することにより、さらに高感度のバイオセンサを提供することができ、かつ簡便に製造可能なバイオセンサを提供することができる。アルミニウム、銅、鉄のいずれか1種あるいはこれらを1種以上含む合金により形成することで、従来の銀ペーストによる電極層に比して薄く形成することができるため、電極層の抵抗を抑え、感度を高めることができる。また、カーボンを含む上部電極層で下部電極層を被覆することで、下部電極層の防錆に寄与し、酵素と下部電極層との直接の接触を防止する。上部電極層で被下部電極層を被覆することで、下部電極層の防錆に寄与し、酵素と下部電極層との直接の接触を防止することができる。導電性カーボン顔料及び有機バインダーを含有するインキを印刷法により下部電極層に塗布することで、簡便に上部電極層を形成することができる。また、上部電極層の厚みを0.3 μm以上2 μm以下とすることで、上部電極層を挟んだ酵素反応部と下部電極層との隔絶を保証することが可能となり、電極層の物理的、電気的安定性を確保することができる。

10

【0011】

前記バイオセンサにおいて、前記下部電極層と前記配線部は同一の材料から構成されてもよい。これにより、より簡便に製造可能なバイオセンサを提供することができる。

20

【0012】

前記バイオセンサにおいて、前記電極系は少なくとも1つの参照極を含み、前記参照極は、上部電極層と下部電極層と、を含み、前記下部電極層は前記上部電極層よりも導電性の高い材料で形成され、前記下部電極層と前記配線部とは一体で構成され、前記上部電極層はカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して形成され、厚みが0.3 μm以上2 μm以下であり、前記下部電極層及び前記配線部はアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含み、前記作用極及び前記対極は、前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して形成されてもよい。これにより、従来に比べて電極系の抵抗値を大幅に下げることができ、高感度のバイオセンサを提供することができる。アルミニウム、銅、鉄のいずれか1種あるいはこれらを1種以上含む合金により形成することで、従来の銀ペーストによる電極層に比して薄く形成することができるため、電極層の抵抗を抑え、感度を高めることができる。また、カーボンを含む上部電極層で下部電極層を被覆することで、下部電極層の防錆に寄与し、酵素と下部電極層との直接の接触を防止する。上部電極層で被下部電極層を被覆することで、下部電極層の防錆に寄与し、酵素と下部電極層との直接の接触を防止することができる。導電性カーボン顔料及び有機バインダーを含有するインキを印刷法により下部電極層に塗布することで、簡便に上部電極層を形成することができる。また、上部電極層の厚みを0.3 μm以上2 μm以下とすることで、上部電極層を挟んだ酵素反応部と下部電極層との隔絶を保証することが可能となり、電極層の物理的、電気的安定性を確保することができる。

30

40

【0016】

前記バイオセンサにおいて、前記第1の基材側上に、第2の基材、第3の基材が順に積層され、前記第1の基材と前記第2の基材とを貼り合わせる第2の接着層と、前記第2の基材と前記第3の基材とを貼り合わせる第3の接着層と、を有し、前記第2の基材は、前記第2の基材の外縁及び前記作用極に通じる試料供給路を備え、前記第1の基材と前記第2の基材とは、前記第1の接着層及び前記第2の接着層を介して密着され、前記第3の基材は前記第2の基材を覆うように、前記第1の接着層を介して前記第1の基材に固着されているように構成してもよい。このように構成されることより、外部から供給される試料を作用極に導くことができ、かつ、第3の基材が第2の基材を覆うように第1の基材に固着

50

されることで、外部から供給される試料や酸素が下部電極層を腐食するのを防ぐことができる。

【0017】

前記バイオセンサにおいて、前記試料供給路に接続され前記第2の基材の外縁に通じる流路を有していてもよい。このように構成されることより、外部から試料が供給された場合に、試料供給路内の空気が逃げる空気抜き流路として機能する。

【0018】

本発明の一実施形態によると、第1の基材の絶縁性を有する表面上に第1の接着層を形成し、前記第1の接着層にアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含む金属箔を貼合し、該金属箔をパターンングして下部電極層及び該下部電極層に一体で構成された配線部を形成し、前記下部電極層の上部表面にカーボン顔料及び有機バインダーを含むカーボングラビアインキを印刷して、厚みが0.3 μ m以上2 μ m以下の上部電極層を形成し、前記上部電極層で前記下部電極層の少なくとも一部の上面及び側面を被覆して作用極及び対極を含む電極系を形成することを特徴とするバイオセンサの製造方法が提供される。

10

【0019】

接着層を介してアルミニウム、銅、鉄の何れか1種あるいは、アルミニウム、銅、鉄を1種以上の合金を含む金属箔を第1の基材の表面に貼合して下部電極層を形成することで、従来の銀ペーストを印刷するよりも、厚さを均一にすることができる。下部電極層と配線部とを一体的に構成することにより、高感度のバイオセンサを提供することができ、かつ簡便にバイオセンサを製造することができる。また、簡便に上部電極層を形成することができる。

20

【0021】

前記バイオセンサの製造方法において、基材の下面に第3の接着層を形成し、上面に第2の接着層を形成し、試料供給路及び空気抜き流路を形成して第2の基材を製造し、前記第2の基材と、第3の基材とを前記第3の接着層を介して貼合し、前記電極系を形成した前記第1の基材の面と、前記第2の基材とを前記第1の接着層及び前記第2の接着層を介して密着して貼合し、且つ、前記第1の基材の面と前記第3の基材とを前記第1の接着層を介して貼合してもよい。これにより、外部から供給される試料を作用極に導くことができ、かつ、第3の基材及び第2の基材が第1の基材に貼合されることで、外部から供給される試料や酸素が下部電極層を腐食するのを防ぐことができる。

30

【発明の効果】

【0022】

本発明によると、試料中の特定成分についてその濃度等の測定を高感度に行うことができる。また、本発明によると、安価に製造可能なバイオセンサ及びその製造方法が提供される。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】一実施形態に係る本発明のバイオセンサ1000を示す模式図であり、(a)はバイオセンサ1000の全体図を示し、(b)はバイオセンサ1000の分解図である。

40

【図2】一実施形態に係る本発明のバイオセンサの電極系100について説明する図であり、(a)は電極系100の上面の斜視図であり、(b)は(a)におけるA-A'断面図を示す。

【図3】一実施形態に係る本発明の親水性高分子層107を形成したバイオセンサの電極系200の模式図であり、(a)は電極系200の上面の斜視図であり、(b)は(a)におけるA-A'断面図を示す。

【図4】一実施形態に係る本発明の親水性高分子層107を形成したバイオセンサの電極系300の模式図であり、(a)は電極系300の上面の斜視図であり、(b)は(a)におけるA-A'断面図を示す。

【図5】一実施形態に係る本発明の親水性高分子層107を形成したバイオセンサの電極

50

系 400 の模式図であり、(a) は電極系 400 の上面の斜視図であり、(b) は(a) における A - A' 断面図を示す。

【図 6】一実施形態に係る本発明のバイオセンサの電極系の模式図であり、(a) は電極系 500 を示し、(b) は電極系 600 を示す。

【図 7】一実施形態に係る本発明のバイオセンサ 1000 の製造方法について説明する図であり、(a) ~ (e) はバイオセンサ 1000 の製造過程を示し、図 2 (a) の A - A' 断面に相当する図である。

【図 8】一実施形態に係る本発明のバイオセンサ 1000 の製造方法について説明する図であり、(a) ~ (d) は、第 2 の基材 1100 及び第 3 の基材 1200 を形成し、第 1 の基材 170 上に形成した電極系 100 を貼付し、バイオセンサ 1000 を製造する工程を示す図である。(a) ~ (d) は、図 2 (a) の A - A' 断面に相当する図であり、(e) は図 2 (a) の B - B' 断面に相当する図である。

【図 9】一実施例に係る本発明のバイオセンサ 1000 のグルコース検出特性を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0024】

以下、図面を参照して本発明に係るバイオセンサ及びその製造方法について説明する。但し、本発明のバイオセンサは多くの異なる態様で実施することが可能であり、以下に示す実施の形態及び実施例の記載内容に限定して解釈されるものではない。なお、本実施の形態及び実施例で参照する図面において、同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を付し、その繰り返しの説明は省略する。

【0025】

(1. バイオセンサの構造)

本発明の実施形態に係るバイオセンサ 1000 の電極構造について説明する。図 1 は本発明の実施形態に係るバイオセンサ 1000 の一例を示す模式図である。バイオセンサ 1000 は電極系 100 及び配線部 150 の上部に、試料供給路 1510 を形成するためのスペーサである第 2 の基材 1100、試料供給路 1510 の上部カバーである第 3 の基材 1200 が第 2 の基材を覆うように、順次に積層され、固着される。図 1 (a) はバイオセンサ 1000 の全体図を示し、説明の便宜上、第 2 の基材 1100 及び第 3 の基材 1200 を透過させた透視図としている。また、図 1 (b) はバイオセンサ 1000 の分解図である。

【0026】

電極系 100 は、第 1 の基材 170 上部表面に形成した作用極 110、対極 120 及び参照極 130 を含む。作用極 110、対極 120 及び参照極 130 の表面の一部には、上部電極層 103 がそれぞれ形成され、作用極 110 には上部電極層 103 の上部表面の一部に酵素反応部 105 がさらに形成される。

【0027】

電極系 100 及び配線部 150 の上部に形成された第 2 の基材 1100 は、作用極 110 の酵素反応部 105、対極 120 及び参照極 130 の上部電極層 103 の上部に、例えば第 2 の基材 1100 の外縁に通じる T 字状の流路を形成するように配置する。T 字状の流路は、作用極 110 の酵素反応部 105、対極 120 及び参照極 130 の上部電極層 103 の上部に直線上に配置された空気抜き流路 1530 と、空気抜き流路 1530 に直交し、作用極 110 の酵素反応部 105 の上部を通過する試料供給路 1510 とにより形成される。バイオセンサ 1000 は、試料供給路 1510 と、空気抜き流路 1530 とを有することで、試料供給路 1510 から毛細管現象を利用し、測定する試料を作用極 110、対極 120 及び参照極 130 の上部を通過させ、試料の目的成分を測定することができる。

【0028】

図 2 は本発明の実施形態に係るバイオセンサの電極系 100 について説明する図であり、図 2 (a) は電極系 100 の上面の斜視図であり、図 2 (b) は図 2 (a) における A -

10

20

30

40

50

A'断面図を示す。本発明における電極系100は、上部電極層103、下部電極層101が積層した電極を用い、電極が接着層180を介して基材170に固着される。本発明の実施形態に係るバイオセンサの電極系100においては、下部電極層101と配線部150とが一体で構成され、下部電極層101の少なくとも一部に上部電極層103を配置したことに特徴がある。これにより、簡便に高感度のバイオセンサを得ることができる。以下、本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000の各構成要素について、詳細に説明する。なお、本実施例において、上部電極層103を下部電極層101の側面にも被覆しているが、上部電極層103は下部電極層101の上部表面のみに形成してもよい。

【0029】

(基材)

第1の基材170は、電極系100を支持する基材であり、少なくとも電極系100が配置される面は絶縁性を有する。第1の基材170は、例えば、樹脂基材、セラミック基材、ガラス基材、少なくとも表面が絶縁された半導体基材や金属基材などを用いることができる。第1の基材170は、剛体であってもよく、弾性体であってもよい。中でも電気絶縁性を有する弾性体を用いることが好ましく、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PE T)樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリスチレン(PS)樹脂、ポリプロピレン(PP)樹脂等のフィルムを好適に用いることができる。第1の基材170の形状、大きさ、厚さは、本発明のバイオセンサを接続して使用する装置の接続部の形状等により、適宜設定することができる。

【0030】

(電極系)

上述したように、電極系100は、作用極110、対極120及び参照極130を含み、作用極110は還元体の電子受容体に電圧を印加するための一方の電極である。作用極110は第1の基材170上に配置された下部電極層101と下部電極層101の表面に配置された上部電極層103を備える。さらに作用極110の上部表面には酵素反応部105が配置される。酵素反応部105は、酵素と電子受容体とを混合したものであってもよく、酵素と電子受容体とを別々に積層したものであってもよい。本実施形態では、酵素反応部105を作用極110の上部表面に直接配置した態様を用いて説明しているが、酵素反応部105は空間を介して作用極110に対向するように配置されてもよい。

【0031】

対極120は電子受容体から作用極110に放出された電子によって流れた電流を計測するための一方の電極である。対極120は第1の基材170の上部表面に配置された下部電極層101と下部電極層101の表面に配置された上部電極層103とを備えている。

【0032】

参照極130は、作用極110の電位を決定する際の基準となる電極である。参照極130は第1の基材170の上部表面に配置された下部電極層101と下部電極層101の表面に配置された上部電極層103とを備える。本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000を使い捨てて使用する場合には、参照極130を作用極110、対極120と同様の構成とし、貴金属を用いずにアルミニウム、銅、鉄のいずれか1種あるいはこれらを1種以上の合金等の安価な金属を利用し、コスト削減を図ることができる。使い捨てて使用する場合には、試料液中での参照極130の酸化還元電位の安定性が高いことを特に要しないためである。

【0033】

本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000に用いる下部電極層101は、アルミニウム、銅、鉄のいずれか1種あるいはこれらを1種以上含む合金からなることが好ましい。下部電極層101の厚さは0.02 μ m以上40 μ m以下の範囲とすることが好ましい。厚さ0.02 μ m未満であると下部電極層101の抵抗値が十分高くなり目的とする電極が得られなくなり、また40 μ mより大きくなると上部電極層103との積層や、試料供給路1510及び空気抜き流路1530の形成に三次元的な高い加工精度が要求され、加工金型の使用数や加工工程・時間が飛躍的に増える。下部電極層101は上記の金属材料

10

20

30

40

50

からなる金属層の単層であってもよく、複数の金属層を積層した態様であってもよい。特に、下部電極層101は、金属箔で形成するのが好ましい。金属箔で形成すると、従来の銀ペーストを印刷するよりも、厚さを均一にすることができる。また、金属箔をエッチングによりパターンングすることで、下部電極層101の幅を均一にすることができる。本実施形態に係る下部電極層101は、アルミニウム、銅、鉄のいずれか1種あるいはこれらを1種以上含む合金により形成されるため、従来の銀ペーストによる電極層に比して薄く形成することができるため、電極層の抵抗を抑え、感度を高めることができる。また、上述の材料を用いることで、下部電極層101の表面処理を行うことなく、カーボン顔料を含む上部電極層103を形成することができる。

【0034】

上部電極層103は、導電性を有する材料で形成した被覆層であり、下部電極層101の表面保護を行うとともに、電極の一部として機能するものである。上部電極層103は例えば、カーボン顔料と有機バインダーの混合物により形成することができる。本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000に用いるカーボン顔料としては、例えば、黒鉛、アモルファスカーボン、ダイヤモンドライクカーボン、カーボンファイバー、カーボンブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラック（登録商標）、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーン、カーボンナノファイバー等を用いることができる。有機バインダーとしてはアクリル樹脂、エステル樹脂、塩ビ樹脂、塩酢ビ樹脂等を用いることができる。

【0035】

本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000に用いる上部電極層103においては、カーボン顔料、有機バインダーはそれぞれ5重量%以上60重量%以下、10重量%以上40重量%以下とすることが好ましい。カーボン顔料が5重量%未満であるとカーボン顔料同士が電氣的接続を有する確率が急激に低下して電極層としての導電性が失われる。また、カーボン顔料が60重量%より多いと顔料間の空隙が多くなり、物理的な賦型強度、接着強度、耐摩擦強度が失われて、要求される構造・機能が保持できなくなる。さらに、カーボン表面の酸化還元状態が安定せず、後工程で添加する酵素や電子受容体も空隙に不均一に吸着するようになる。また、有機バインダーが10重量%未満であると、上部電極層103の塗工特性が低下して塗膜強度も低下することとなり、40重量%より多いと、同様に上部電極層103の塗工特性が低下して導電性も低下することとなる。なお、上部電極層103には、後述するような助剤や添加剤等を添加してもよい。

【0036】

上部電極層103の厚さは0.3 μ m以上30 μ m以下の範囲とすることが好ましい。厚さが0.3 μ m未満であると上部電極層103を挟んで酵素反応部105と下部電極層101の隔絶が製造、保管、酵素反応の各条件、経時安定を保証する上で困難となり、また30 μ mより大きくなると電極層が脆弱になったり、抵抗値が上がったり等の問題が生じる。本実施形態に係る上部電極層103は、カーボン顔料で下部電極層101を被覆することで、下部電極層101の防錆に寄与し、酵素と下部電極層101との直接の接触を防止する。防錆を考慮すると、下部電極層101はアルミニウム、銅、鉄を1種以上含む合金で形成することが好ましいが、本実施形態に係る下部電極層101はアルミニウム、銅、鉄のいずれか1種を用いても、上部電極層103で被覆されているため、十分な防錆効果を奏する。

【0037】

本実施形態に係る上部電極層103は、必要に応じて他の導電性顔料、硬化剤や架橋剤のような反応試薬、加工適性改善のための助剤や添加剤等をカーボン顔料と有機バインダーとに混合してもよい。また、上部電極層103の表面に機械的研磨やコロナ・プラズマのような放電手法による物理的エッチング等を施して、表面の活性化を向上させてもよい。なお、図2(b)では上部電極層103を、電極系100を構成する全ての電極に配置しているが、このような構成は必ずしも必須ではない。試料の供給方法によっては作用極110上のみ配置することで充分である場合もある。また、試料液と下部電極層101との接触具合によっては、上部電極層103を下部電極層101の上部表面にのみ配置して

10

20

30

40

50

もよい。

【0038】

上部電極層103の上部には、親水性高分子層を形成することが好ましい。図3は、本発明の実施形態に係る親水性高分子層107を形成したバイオセンサの電極系200の模式図であり、図3(a)は電極系200の上面の斜視図であり、図3(b)は図3(a)におけるA-A'断面図を示す。対極120及び参照極130においては、上部電極層103の上部に親水性高分子層107を形成する。また、作用極110においては、上部電極層103及び酵素反応部105の上部に親水性高分子層107を形成する。親水性高分子層107を設けることにより、上部電極層103に接する血液はゲル状となり応答電流値は若干低下するが、赤血球や他のタンパク質などのセンサ応答への影響を低減することができる。

10

【0039】

親水性高分子層107の別の配置例を図4及び図5に示す。図4(a)は電極系300の上面の斜視図であり、図4(b)は図4(a)におけるA-A'断面図を示す。電極系300は、作用極110においては、上部電極層103と酵素反応部105との間に親水性高分子層107を配置した点で電極系200と異なる。また、図5(a)は電極系400の上面の斜視図であり、図5(b)は図5(a)におけるA-A'断面図を示す。電極系400は、作用極110においては、上部電極層103よりも試料供給路1510の開口部側に親水性高分子層107を配置した点で電極系200と異なる。電極系300及び電極系400においても、親水性高分子層107を設けることにより、血液はゲル状となり応答電流値は若干低下するが、赤血球や他のタンパク質などのセンサ応答への影響を低減することができる。

20

【0040】

親水性高分子としては、カルボキシルメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、エチルセルロース、メチルセルロース、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリビニル酢酸、ポリビニルブチラール等、またはこれらの混合物を用いることができる。親水性高分子層107の厚さは50nm以上2 μ m以下の範囲とすることが好ましい。厚さが50nm未満であると親水性高分子層を均一に形成することが困難で、たとえ均一に形成しても上部電極層103の表面の凹凸の影響を受け本来の性能を生じなくなり、また2 μ mより大きくなると親水性高分子層107の溶解に時間が掛かり、正確な測定が出来なくなる。

30

【0041】

作用極110、対極120、参照極130にはそれぞれ下部電極層101により形成された配線部150が電氣的に接続されており、電極系100と配線部150とは一体で構成されている。配線部150により電極系100への電圧印加、電気信号の取り出しを行うことができる。作用極110、対極120を炭素よりも低抵抗の金属材料と炭素材料との積層構造とすることにより、従来に比べて電極系100の抵抗値を大幅に下げることができ、高感度のバイオセンサを提供することができる。また、配線部150と電極系100を一体的に構成することにより、さらに高感度のバイオセンサを提供することができる。さらに参照極130に貴金属を用いる必要がないため、製造コストを低減することができる。

40

【0042】

(酵素反応部)

本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000において、酵素反応部105は、酵素と電子受容体とを含む。グルコース濃度を測定する場合には酵素としてグルコースオキシダーゼ(GOD)、グルコースデヒドロゲナーゼ(GDH)を用いることができる。電子受容体はフェリシアン化カリウム、フェロセン誘導体、キノン誘導体、オスミウム誘導体等を用いることができる。酵素と電子受容体は、適宜溶媒で希釈して用いる。本実施形態に係る溶媒としては、例えば、水、アルコール、水-アルコール混合溶媒がある。また、直鎖、環状の炭化水素貧溶媒に均一分散させてもよい。酵素と電子受容体とをそれぞれ1試

50

験体当り0.3ユニット以上10ユニット以下と0.5 μ g以上200 μ g以下とすることが好ましい。グルコースオキシダーゼ、グルコースデヒドロゲナーゼは、純度の高いものが好ましく、上述の範囲の活性を有するものであれば、特に由来となる生物種は限定されず、例えば、グルコースオキシダーゼとしては、東洋紡社製GLO-201を用いることができる。酵素反応部105の酵素及び電子受容体は、酵素量(力価/ユニット)に準じた反応量が得られるが、酵素反応部105の性能を担保する最適重量部の小過剰でよい。

【0043】

また、酵素反応部105は、上部電極層103及び試料供給路1510より小さい面積で形成することが好ましい。例えば、酵素反応部105は、100 μ m以上1000 μ m以下の範囲で幅を狭くする。酵素反応部105の厚さは、1 μ m以上100 μ m以下の範囲が好ましい。酵素反応部105はその面積に比例した検出電流が得られるため、酵素反応部105の面積は可能な範囲で広く設定することが好ましい。

10

【0044】

酵素反応部105は上述の親水性高分子と混合したり、あるいは親水性高分子及び界面活性剤と混合したりして構成してもよい。界面活性剤を含有させると粘度の高い試料液であっても、センサの内部へ試料液を容易に導くことができるので、好ましい。酵素反応部105に用いる界面活性剤としては、例えば、非イオン性界面活性剤、陰イオン性界面活性剤、陽イオン性界面活性剤、両性界面活性剤、若しくはポリエチレングリコール類等が挙げられる。酵素反応部105を形成する場合、酵素は40以上で長時間放置すると活性を失うため、溶媒の乾燥は40以下で行い、乾燥後は速やかに室温にもどすことが好ましい。

20

【0045】

(第2の基材)

第2の基材1100は、第1の基材170と第3の基材1200との間に間隙を設け、外部からバイオセンサ1000へ試料供給を行うための流路を設けるための基材である。第2の基材1100には少なくとも1つの試料供給路1510を形成する。試料供給路1510は、第2の基材1100を水平方向に貫通して設けられた流路であり、外部から供給される試料を作用極110に導く。第2の基材1100は、剛体であってもよく、弾性体であってもよい。中でも電気絶縁性を有する弾性体を用いることが好ましく、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリスチレン(PS)樹脂、ポリプロピレン(PP)樹脂等のフィルムを好適に用いることができる。

30

【0046】

試料供給路1510の幅は0.5mm以上5mm以下の範囲とすることが好ましい。試料供給路1510の幅が0.5mm未満であると、流路への毛細管現象によるに安定した試料供給がされなくなる。また、酵素反応部105の電極面積を広く取れないため、感度が低くなる。また5mmより大きくなると、バイオセンサ1000を第1の基材170の電極系100形成面に対して垂直に切断した際、試料供給路1510の幅の中心線へ向かって第1の基材及び第3の基材がアーチ状につぶれ、試料供給路1510内の容積が変化し易くなる。試料供給路1510の幅は、全体にわたって均一の幅であってもよいし、第2の基材1100の試料供給路1510の導入部である外縁に向かって、幅が広がるような形状であってもよい。

40

【0047】

第2の基材1100はさらに試料供給路1510とは別の空気抜き流路1530を備えていてもよい。本実施形態に係るバイオセンサ1000において、空気抜き流路1530は、試料供給路1510に接続され、試料供給路1510と空気抜き流路1530とを合わせてT字状の流路を構成している。このような構成とすることで、外部から試料が供給された場合に、試料供給路1510内の空気が逃げる空気抜き流路1530が機能する。空気抜き流路1530の幅は、0.3mm以上10mm以下の範囲とすることが好ましい。空気抜き流路1530の幅が0.3mm未満であると接着剤や基材のバリが空気抜きの邪

50

魔となり、また10mmより大きくなると基材が変形した際、隣接する供給路にも変形がおよび供給路容積の変動要因となる。第2の基材1100の厚さは、試料供給路1510及び空気抜き流路1530の高さとなり、15 μ m以上500 μ m以下の範囲とすることが好ましい。第2の基材1100の厚さが15 μ m未満であると基材の凹凸の影響で容積変化が生じ易く、毛細管現象による試料供給も安定しなくなる。また500 μ mより大きくなると酵素反応部105に均一に試料が流れず、酵素反応部105の一部に試料が流れない可能性が出てくる。

【0048】

(第3の基材)

第3の基材1200は、蓋材として機能する基材である。第3の基材1200は例えば、樹脂基材、セラミック基材、ガラス基材、半導体基材、金属基材などを用いることができる。第1の基材1200は、剛体であってもよく、あるいは弾性体であってもよい。中でも電気絶縁性の弾性体を用いることが好ましく、例えばポリエチレンテレフタレート(PET)樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリスチレン(PS)樹脂、ポリプロピレン(PP)樹脂等のフィルムを好適に用いることができる。第3の基材1200の形状は、第1の基材170に合わせて採用されるが、配線部150が露出するように一部に切欠部を有している。

10

【0049】

(接着層)

本実施形態に係る下部電極層101は、第1の基材170の上部表面にドライラミネート用接着剤を塗布して形成した接着層180を介して固着されている。接着層180を介して電極系100が第1の基材170に固着されることにより、下部電極層101に密着層を配置することなく、密着性を得ることができる。接着層180はポリエステル系の2液硬化接着剤等を用いることができる。また、接着層180は、金属層を第1の基材170の上部表面に固着し、エッチングにより下部電極層101を形成するときのストッパーとしても機能する。接着層180の厚さは0.1 μ m以上5 μ m以下の範囲とすることが好ましい。厚さが0.1 μ m未満であると接着不良となり、また5 μ mより大きくなると接着面の凹凸が目立つようになり、エージング時間が長くなり、エッチング後のタック(エッチングや剥離面の粘着性)が残るからである。

20

【0050】

また、第2の基材1100の下部表面には、接着層185aが形成される。また、第2の基材1100と第3の基材1200とを貼り合わせるために、第2の基材1100の上部表面に接着層185bをさらに形成する。接着層185bは、第3の基材1200の下部表面に形成してもよい。接着層185a及び接着層185bの材料としては、例えば、合成接着剤としてはアクリル系接着剤、エステル系接着剤、ビニル系接着剤、シリコン系接着剤等、天然接着剤としてはニカワ、天然ゴム、樹液等の澱粉のり・天然高分子等を用いることができる。接着層185a及び接着層185bの厚さは、3 μ m以上50 μ m以下が好ましい。接着層185aは、下部電極層101、上部電極層103及び酵素反応部105を合わせた厚さ以上、例えば20 μ m程度で形成すると、第2の基材1100と第1の基材170とが接着層180及び接着層185aを介して密着され、試料供給路1510から供給される試料が配線部150に流入するのを防御することができる。また、接着層180と接着層185aとが密着していることで、配線部150の下部電極層101の防錆を実現することができる。

30

40

【0051】

第3の基材1200は、接着層185bを介して第2の基材1100に固着し、接着層180を介して第1の基材170に固着する。第3の基材1200の下部表面に接着層185bを形成することで、第2の基材1100、対極120及び参照極130を接着層185bで包埋するようにしてもよい。

【0052】

(試料供給路1510及び流路1530と電極系100の位置関係)

50

図1及び2に示した電極系100の各電極の配置は一例であって、種々の変形例を採用することができる。ここで図6を用いて試料供給路1510及び流路1530と電極系100の好ましい位置関係の別の態様について説明する。図6(a)は電極系500を示し、図6(b)は電極系600を示す電極系500と電極系600とは試料供給路1510の幅の中心線で線対称の配置であり、参照極130、作用極110、対極120を試料供給路1510の開口部から試料が順次通過するように配置することもできる。このように配置することで、電極系に試料が充たされたことがポテンシオスタットの電圧値、電流値により確認できる。また、作用極110を中心にして参照極130及び対極120で挟むことで、電位の干渉が生じにくくなる。対極120に試料が充たされた時には、参照極130と作用極110とに電位が掛かるため、初期ノイズの影響を受け難くなり、測定を安定させることができる。

10

【0053】

なお、本発明の実施形態に係るバイオセンサ1000は酵素反応部105の酵素を変更することで、グルコースセンサのみならず、コレステロールセンサ、アルコールセンサ、スクロールセンサ、乳酸センサ、フルクトースセンサなどの酵素に関連する反応系に広く用いることができる。各バイオセンサに用いる酵素としてはコレステロールエステラーゼ、コレステロールオキシダーゼ、アルコールオキシダーゼ、乳酸オキシダーゼ、フルクトースデヒドロゲナーゼ、キサンチンオキシダーゼ、アミノ酸オキシダーゼ等の反応系に合ったものを適宜用いることができる。

【0054】

(2. バイオセンサの製造方法)

次に図7及び図8を用いて上述の実施形態において説明したバイオセンサ1000の製造方法について説明する。図7(a)～図7(e)はバイオセンサ1000の製造過程を示し、図2(a)のA-A'断面に相当する図である。

20

【0055】

(電極系の製造工程)

第1の基材170の上部表面に接着層180を配設する(図7(a))。接着層180は接着剤を塗布してもよいし、接着層180を第1の基材170に貼合してもよい。接着層180を介して第1の基材170に金属箔102を貼合する(図7(b))。そして、金属箔102上にレジスト(図示せず)を塗布法、印刷法等により形成し、所望のレジストパターンを形成する。レジストパターンをエッチングマスクとして金属箔102をエッチングして下部電極層101を形成する(図7(c))。エッチングはドライ方式、ウェット方式のいずれを用いてもよい。接着層180を介して下部電極層101と第1の基材170が接着しているため、下部電極層101に密着層を配置する必要なく、より簡便に下部電極層101を製造することができる。また、厚さの均一性の高い金属箔を貼合し、それをパターニングして下部電極層101とするので、多面付けした際にチップ間の感度ばらつきが抑えられる。真空成膜法やめっき法を用いて下部電極層101を行うことも可能であるが、上述のような成膜法では第1の基材170が大きくなる程、下部電極層の面内の厚さばらつきが大きくなるため、チップ間で感度ばらつきが生じるため好ましくない。

30

【0056】

その後、印刷法により下部電極層101の所定部分に導電性カーボンを含むインキを塗布する(図7(d))。ピンホールの発生を防ぐために、インキは少なくとも複数回塗布することが好ましい。これにより下部電極層101の少なくとも上面を被覆する上部電極層103を形成する。より好ましくは上部電極層103で下部電極層101の上面及び側面を被覆する。

40

【0057】

このように形成した電極の1つの上部電極層103の上面に、酵素及び電子受容体を含む溶液をディスペンサーで塗布した後、40℃で乾燥させ、溶媒成分を除去する。このようにして、作用電極110を形成し(図7(e))、電極系100を製造する。

【0058】

50

(第2の基材の製造工程)

図8(a)~図8(d)は、第2の基材1100及び第3の基材1200を形成し、第1の基材170上に形成した電極系100を貼付し、バイオセンサ1000を製造する工程を示す図である。第2の基材1100の第1の基材170及び電極系100を貼付する面と、第3の基材1200を貼付する面とに、接着層185を形成する(図8(a))。上面及び下面の両面に接着層185が形成された基材1100に打ち抜き加工を施し、試料供給路1510及び空気抜き流路1530を形成して第2の基材1100を製造する(図8(b))。

【0059】

(第3の基材の製造工程)

基材1200に所定の打ち抜き加工を施し、配線部150の少なくとも一部が露出する切欠部を形成して、第3の基材1200を製造する。

【0060】

(貼合工程)

第2の基材1100の一方の面に第3の基材1200を貼合する(図8(c))。その後、第2の基材1100の他方の面に、第2の基材1100と電極系100が対向するように配置して第1の基材170を貼合する(図8(d)及び(e))。図8(d)は図2(a)のA-A'断面に相当する図であり、試料供給路1510及び空気抜き流路1530が形成され、A-A'断面では、空気抜き流路1530が外部へ開口している。図8(e)は図2(a)のB-B'断面に相当する図であり、第1の基材170と第2の基材1100の両端部は、接着層180及び接着層185で貼付される。なお、貼合の順序は第2の基材1100と第1の基材170を貼合してから、第2の基材1100に第3の基材1200を貼合してもよい。

【0061】

(断裁工程)

上述の工程は多面付けで行われ、貼合が完了した後、断裁して個々のバイオセンサ1000を得る。

【実施例】

【0062】

以下の実施例に、上述した実施形態において説明した本発明に係るバイオセンサ1000の一例を具体的に説明する。

【0063】

(実施例1 - アルミ下部電極層)

厚さ100 μ mのPETフィルム(東レ社製ルミラー)の基板170の上部表面に、ドライミネート剤を用いて接着層180を形成した。接着層180を介して厚さ9 μ mのアルミニウムフィルム(東洋アルミ社製)102を貼り合せた。アルミニウムフィルム102の表面に1.5mm幅の線状のレジストパターンを印刷法で形成した。揺動式の塩酸槽(2N)にレジストパターンを形成した上記の積層フィルムを浸漬させてアルミニウムをエッチングした。水洗を行った後、水酸化ナトリウム槽(0.5N)に積層フィルムを浸漬させてレジストパターンを剥離した。その後、再度水洗を行った後、下部電極層101を形成した。

【0064】

下部電極層101のアルミパターンに幅2.1mm、長さ3mmのスクリーン印刷パターン150メッシュを基板170の幅方向センター合せで左右0.3mm程度被る状態にアライメントして、低抵抗カーボンスクリーンインキ(十条インキ社製)を印刷し、90で1時間乾燥した。カーボン被覆により形成した上部電極層103とアルミパターンの下部電極層101の表面の厚さの差から上部電極層103は11 μ m厚であった。下部電極層101の長手方向に対して、上部電極層103の先端からアルミ剥き出し部分の下部電極層101の長さの総計が33mmになるよう切り出し、上部電極層103の先端から30mm離れた下部電極層101との間の抵抗値を測定したところ、50であった。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 5 】

(実施例 2 - アルミ下部電極層)

実施例 1 と同様に下部電極層 1 0 1 の 1 . 5 mm 幅のアルミパターンに幅 2 . 1 mm、長さ 3 mm のフィルムマスク (日立化成社製) を基板 1 7 0 の幅方向センター合せで左右 0 . 3 mm 程度被る状態にアライメントして、カーボングラビアインキ (合同インキ社製) を印刷し、1 2 0 で 1 0 分間乾燥した。カーボン被覆により形成した上部電極層 1 0 3 とアルミパターンの下部電極層 1 0 1 の表面の厚さの差から上部電極層 1 0 3 は 2 μ m 厚であった下部電極層 1 0 1 の長手方向に対して、上部電極層 1 0 3 の先端からアルミニウム剥き出し部分の下部電極層 1 0 1 の長さの総計が 3 3 mm になるよう切り出し、上部電極層 1 0 3 の先端から 3 0 mm 離れた下部電極層 1 0 1 との間の抵抗値を測定したところ、2 0 であった。

10

【 0 0 6 6 】

(実施例 3 - アルミ以外の金属による下部電極層)

実施例 1 に対して、本実施例においては、下部電極層 1 0 1 の基材を 1 8 μ m 銅箔とし、5 0 μ m P E T と 2 3 μ m の接着剤で貼り合せたもの (ニッカン工業社製) に変更した。また、薄銅箔用塩化第二鉄のエッチング液でレジストパターンをエッチングした。同様に水洗、レジスト剥離、乾燥して下部電極層 1 0 1 を形成した。下部電極層 1 0 1 にスクリーン印刷でカーボン被覆による上部電極層 1 0 3 を形成した。カーボン被覆により形成した上部電極層 1 0 3 と銅パターンの下部電極層 1 0 1 の表面の厚さの差から上部電極層 1 0 3 は 1 1 μ m 厚であった。下部電極層 1 0 1 の長手方向に対して、上部電極層 1 0 3 の先端からアルミ剥き出し部分の下部電極層 1 0 1 の長さの総計が 3 3 mm になるよう切り出し、上部電極層 1 0 3 の先端から 3 0 mm 離れた下部電極層 1 0 1 との間の抵抗値を測定したところ、4 0 であった。

20

【 0 0 6 7 】

(比較例 1)

比較例として、厚さ 1 0 0 μ m の P E T フィルム (東レ社製ルミラー) に 1 . 5 mm 幅の線状のカーボンパターンをスクリーン印刷パターン 1 5 0 メッシュ、低抵抗カーボンスクリーンインキ (十条インキ社製) を印刷し、9 0 で 1 時間乾燥し、電極層を形成した。長さの総計が 3 3 mm になるよう切り出し、3 0 mm 離れたカーボン表面間の抵抗値を測定したところ 1 . 5 K であった。

30

【 0 0 6 8 】

(グルコース検出特性)

以上のようにして得た実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 の電極を用いて、作用極 1 1 0、対極 1 2 0 及び参照極 1 3 0 をそれぞれ 2 . 4 mm ピッチになるように配し、長さ 3 mm の電極層の先端部分の 2 . 4 mm を残し、上下 0 . 3 mm を耐水性粘着テープでマスクした。この 2 . 4 mm 幅のマスク間に酵素としてグルコースオキシダーゼ (東洋紡社製 G L O - 2 0 1) を 1 ユニット、電子受容体としてフェリシアン化カリウム 7 0 μ g を蒸留水 2 μ L に溶解し、均一に滴下して作用極を作製した。これをポテンシオスタット (エービーエス社製 A L D 7 6 0) の作用極、対極、参照極に配線し、0 . 5 V 電圧印加で被検体 2 . 5 μ L 滴下後 2 秒後の電流を検出した。なお、被検体は生理食塩水にグルコースを 0、1 0 0、3 0 0、6 0 0 m g / d L の 4 濃度に調製した人工標準グルコース液を用いた。図 9 に示すように、グルコース濃度の測定感度を測定したところ、実施例 1 及び実施例 2 は、比較例 1 に比して同濃度のグルコースに対する検出電流が高く、カーボンで形成した上部電極層 1 0 3 に低抵抗の金属層で形成した下部電極層 1 0 1 を配置した電極系 1 0 0 を用いることで、測定感度が優れることが確認された。

40

【符号の説明】

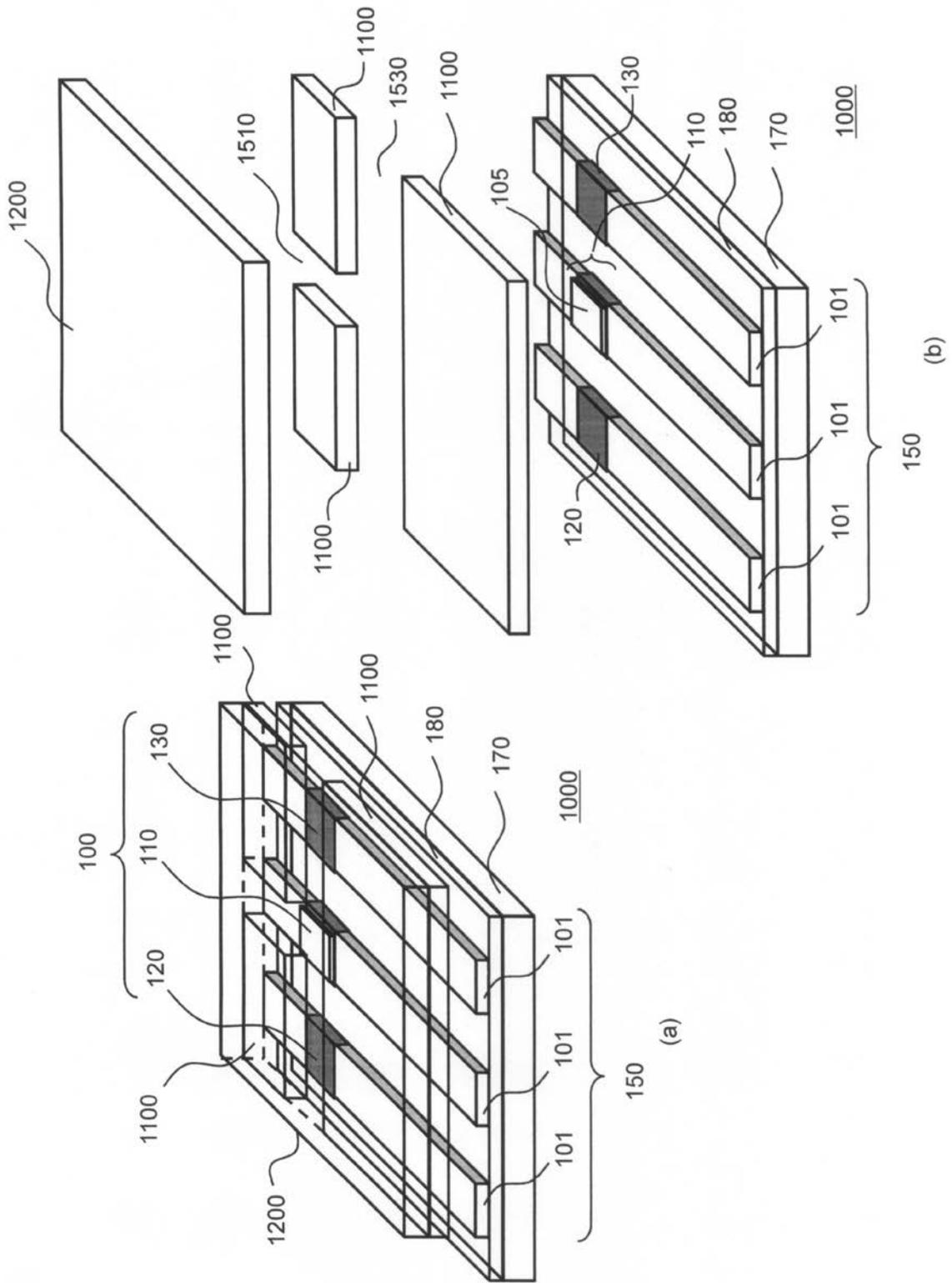
【 0 0 6 9 】

- 1 0 0 電極系
- 1 0 1 下部電極
- 1 0 2 金属箔

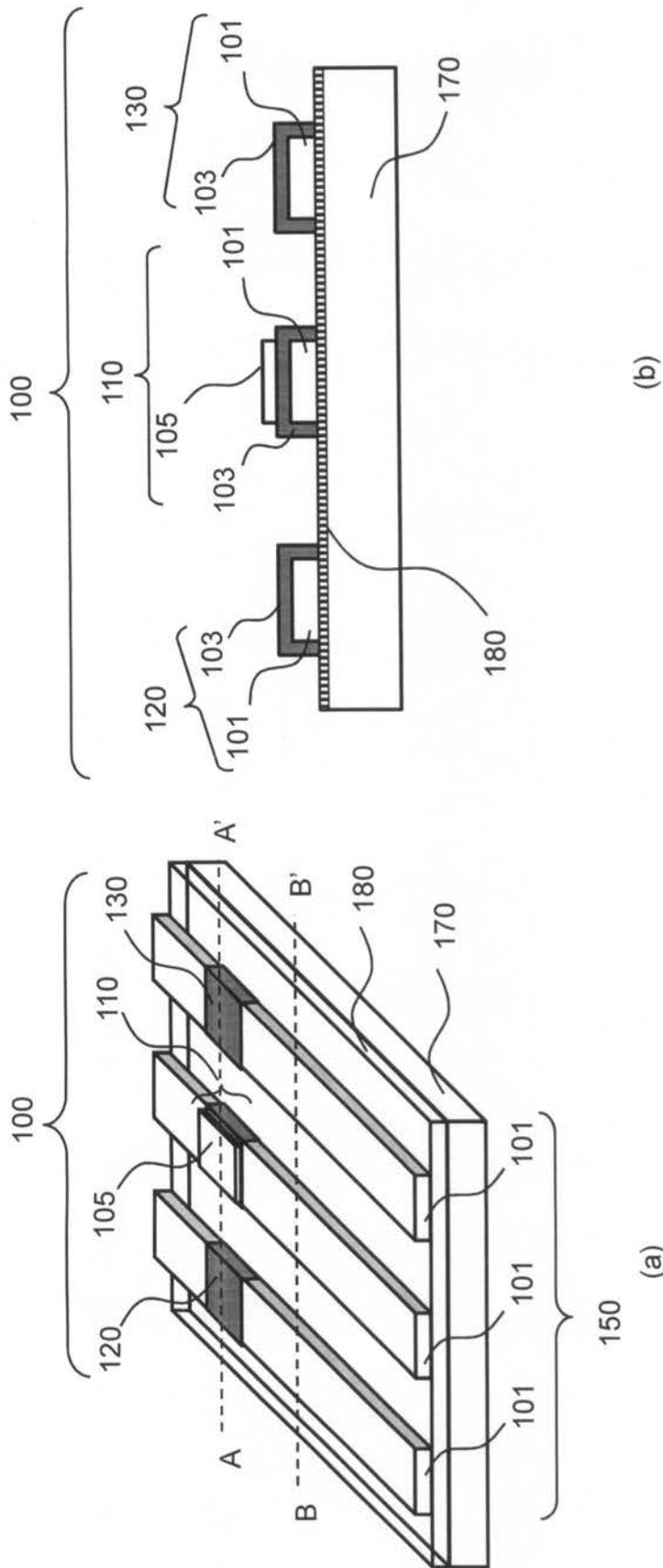
50

1 0 3	上部電極	
1 0 5	酵素反応部	
1 0 7	親水性高分子層	
1 1 0	作用極	
1 2 0	対極	
1 3 0	参照極	
1 5 0	配線部	
1 7 0	基材	
1 8 0	接着層	
1 8 5 a	接着層	10
1 8 5 b	接着層	
2 0 0	電極系	
3 0 0	電極系	
4 0 0	電極系	
5 0 0	電極系	
6 0 0	電極系	
1 0 0 0	バイオセンサ	
1 1 0 0	第2の基材	
1 2 0 0	第3の基材	
1 5 1 0	試料供給路	20
1 5 3 0	空気抜き流路	

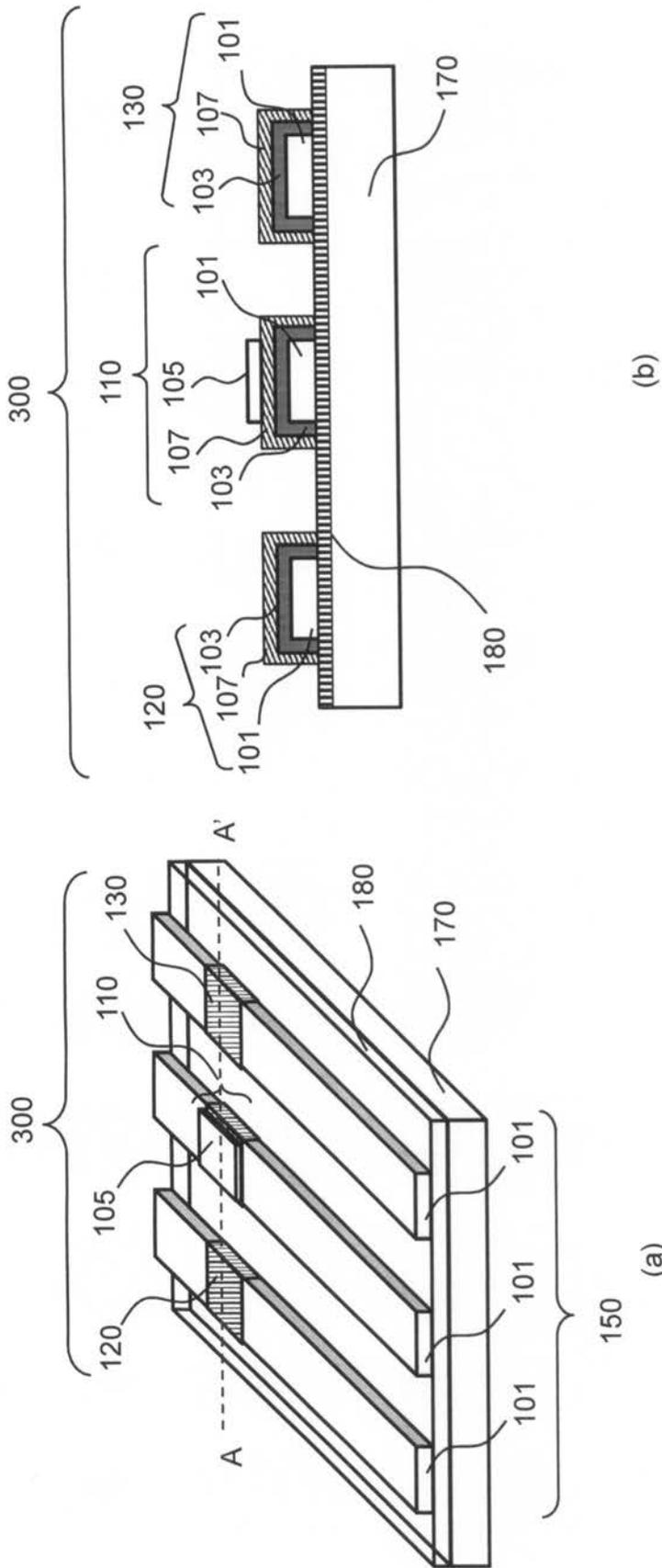
【図1】



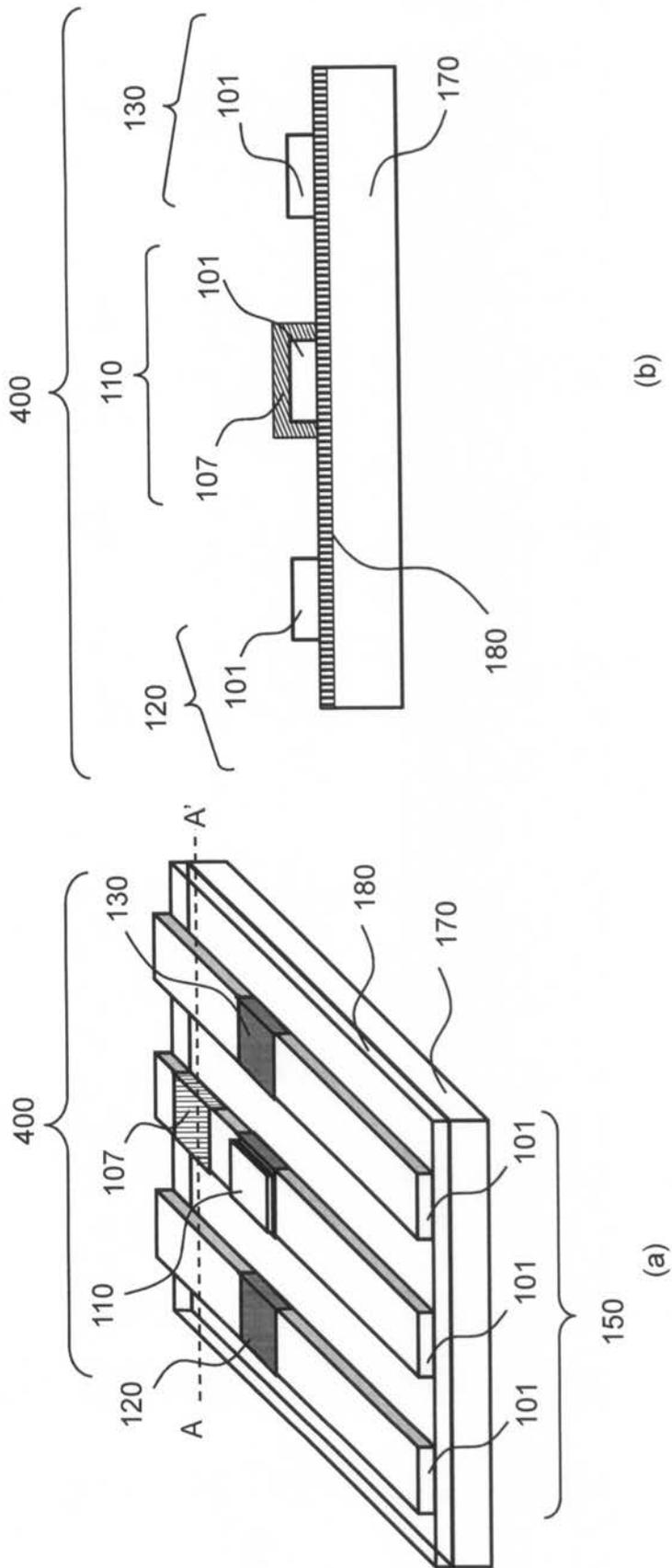
【 図 2 】



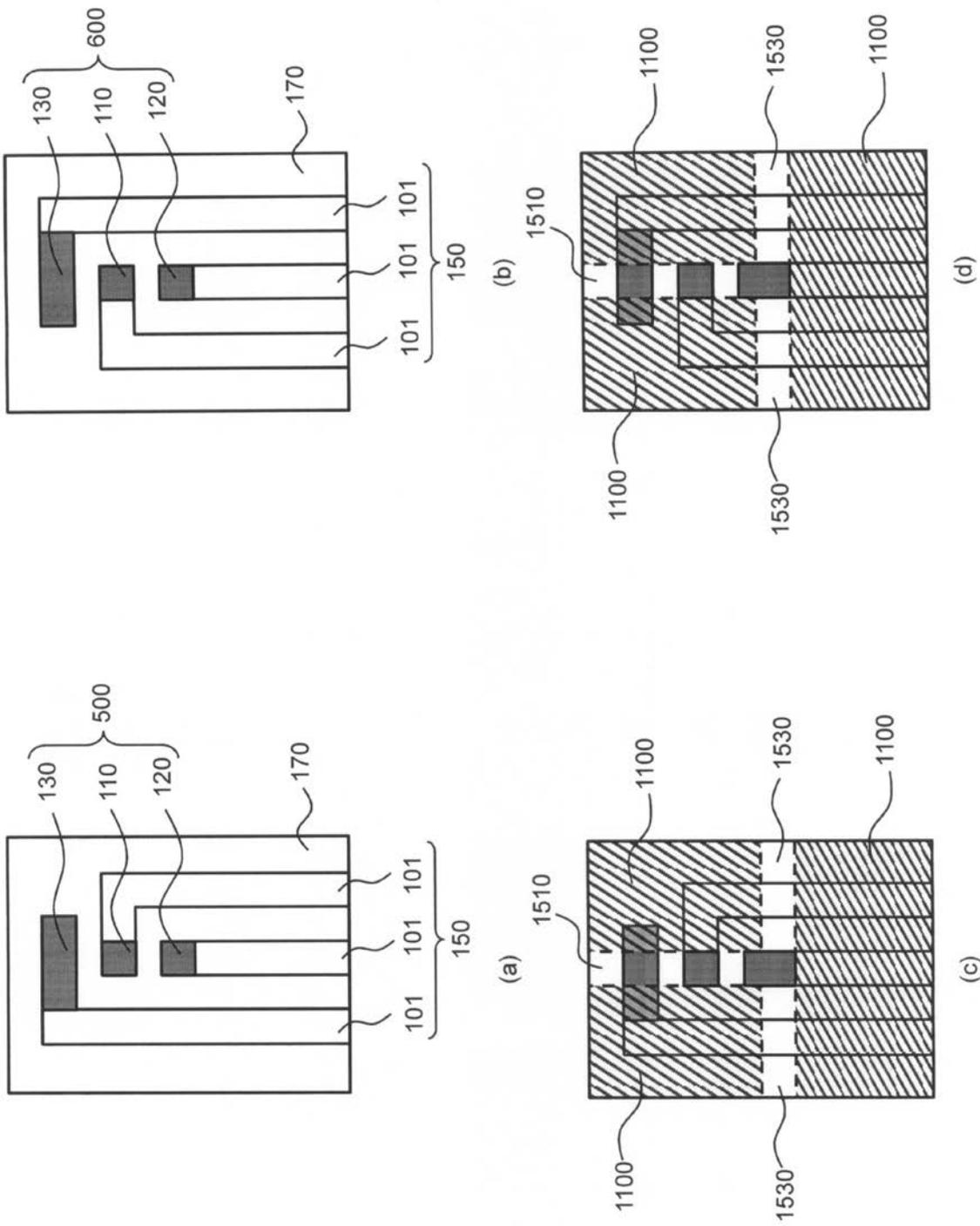
【 図 4 】



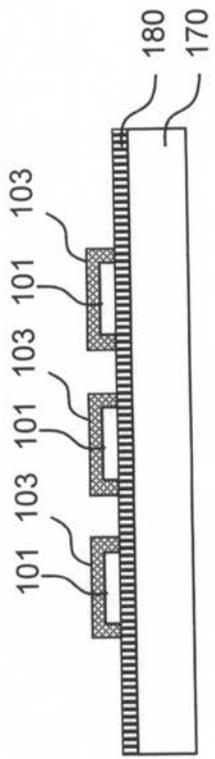
【図5】



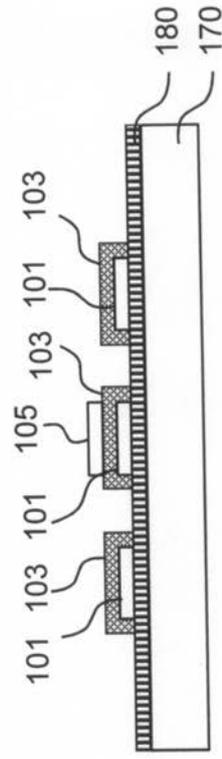
【図6】



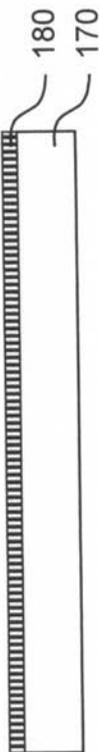
【 図 7 】



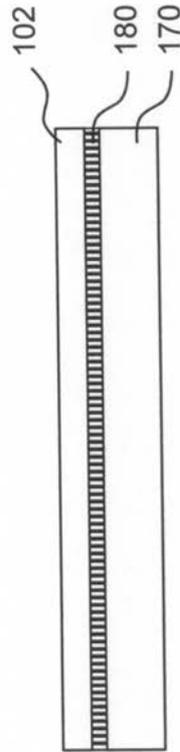
(d)



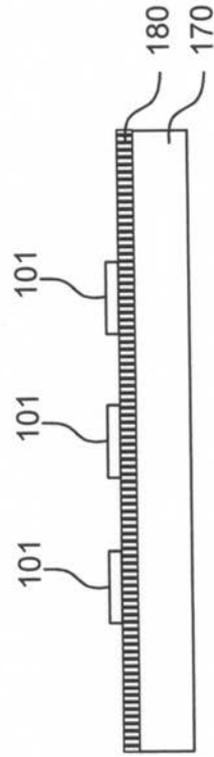
(e)



(a)

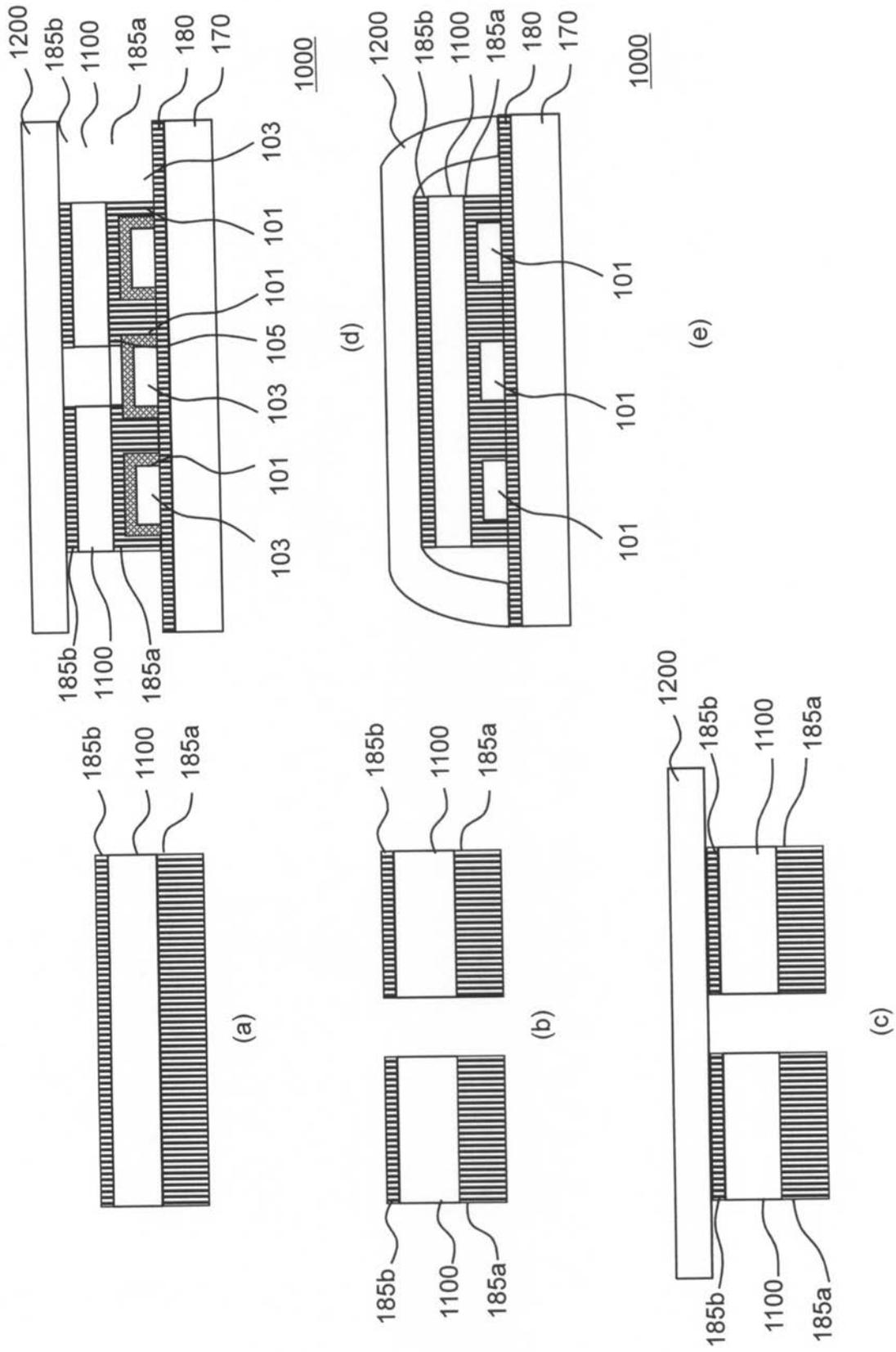


(b)

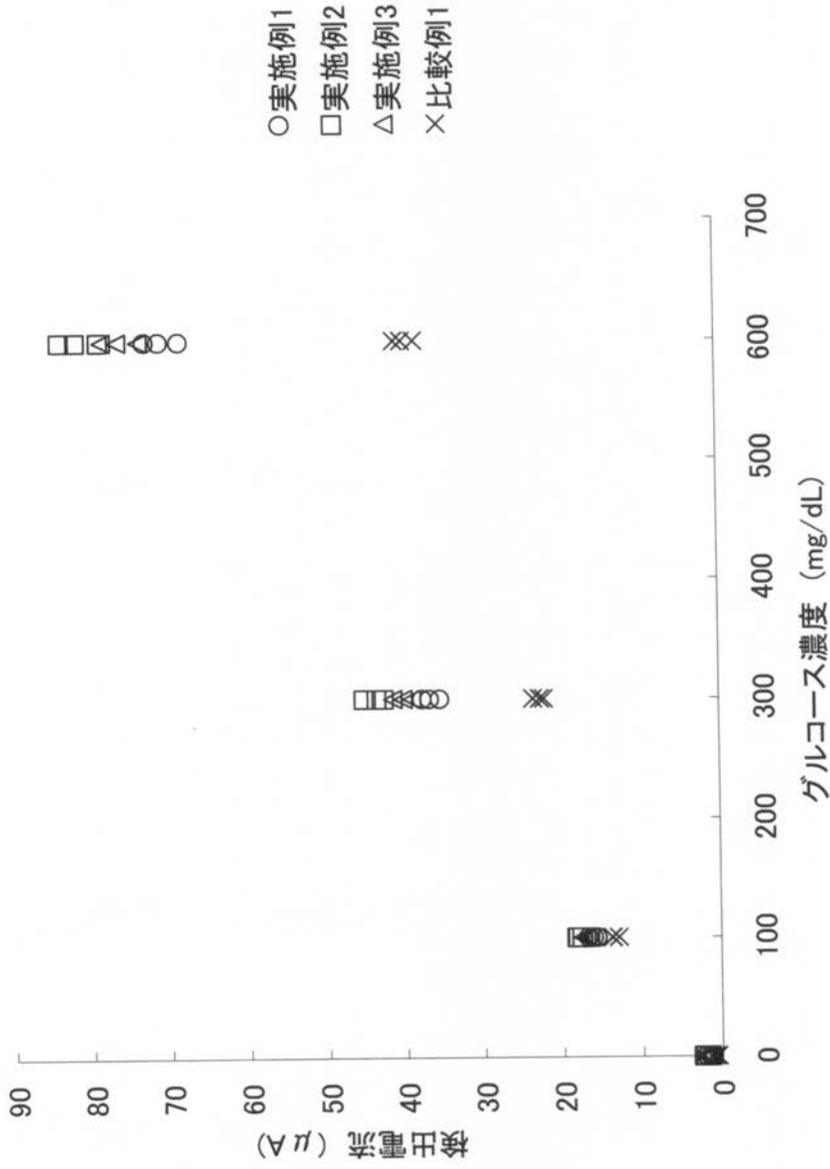


(c)

【 図 8 】



【 図 9 】



フロントページの続き

- (72)発明者 吉田 博
大阪府大阪市北区本庄西3丁目9番3号 ニプロ株式会社内
- (72)発明者 馬場 利明
大阪府大阪市北区本庄西3丁目9番3号 ニプロ株式会社内

審査官 大竹 秀紀

- (56)参考文献 特開2010-032501(JP,A)
特開2009-204375(JP,A)
特表2008-503728(JP,A)
特表2008-536125(JP,A)
特開2006-275819(JP,A)
特開2004-004017(JP,A)
特開2000-131264(JP,A)
国際公開第2009/056299(WO,A1)
国際公開第2009/057793(WO,A1)
国際公開第02/018627(WO,A1)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|--------|
| G01N | 27/327 |
| G01N | 27/416 |