
利用超微电极对水中微塑料进行电化学检测 MDPI Chemosensors

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/39642.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

利用超微电极对水中微塑料进行电化学检测 MDPI Chemosensors。论文标题：Urea Biosensing through Integration of Urease to the PEDOT-Polyamine Conducting Channels of Organic Electrochemical Transistors: pH-Change-Based Mechanism and Urine Sensing

论文链接：<https://www.mdpi.com/2227-9040/12/7/124>

期刊名：Chemosensors

期刊主页：<https://www.mdpi.com/journal/chemosensors>

尿素作为肾功能和肝脏健康的关键生物标志物，其浓度变化对于慢性肾病等疾病的诊断与管理至关重要。传统检测方法往往过程繁琐、设备昂贵或难以实现实时在线分析，限制了其在床旁或家庭场景中的应用。本篇是阿根廷拉普拉塔国立大学Waldemar A. Marmisollé老师团队撰写并在Chemosensors期刊发表的文章，创新性地开发了一种基于OEET的尿素酶生物传感器，提出了一种新颖的传感机制：将尿素酶通过直接静电组装的方式集成于OEET的导电沟道材料——PEDOT-PAH上。当尿素存在时，尿素酶催化其分解产生氨，引起沟道微环境局部pH升高。由于PEDOT-PAH的电导率对pH变化敏感，该局部的化学变化被有效地转换为晶体管输出的电学信号变化，从而实现尿素浓度的定量检测。研究成功将该传感器应用于稀释真实尿液样本的检测，验证了其在复杂生物样品中的实际分析能力。

研究过程和结果

本研究构建了一种基于PEDOT-PAH的有机电化学晶体管 (OEET)，并通过静电作用将脲酶固定于其导电沟道表面，成功开发了一种新型尿素生物传感器。该传感器利用酶催化尿素分解引发的局部pH变化，有效调控晶体管电学响应，实现了对尿素的高灵敏度检测。研究通过实时监测酶吸附过程中的电流变化，验证了组装过程的可靠性；并通过在酶层表面整合聚乙烯亚胺 (PEI) 聚电解质，显著提升了传感器的响应稳定性，使其能够准确检测稀释尿液样品中的尿素浓度。这项工作为基于OEET平台的酶生物传感器开发提供了创新思路，展示了其在即时诊断和生物监测领域的应用潜力。

尿素酶与PEDOT-PAH薄膜的静电集成及基于OEET的监测

通过SPR和OECT两种技术，系统表征了脲酶在PEDOT-PAH薄膜上的静电组装过程。SPR实时监测显示酶吸附迅速且稳定；OECT的转移曲线分析进一步证实了酶吸附导致界面阻抗变化，引起电学响应偏移。通过实时监测固定栅压 (V_{Gmax}) 下的漏源电流，成功在OECT平台上实现了对酶吸附过程的高灵敏度、实时追踪，其响应趋势与SPR结果一致 (图1)。

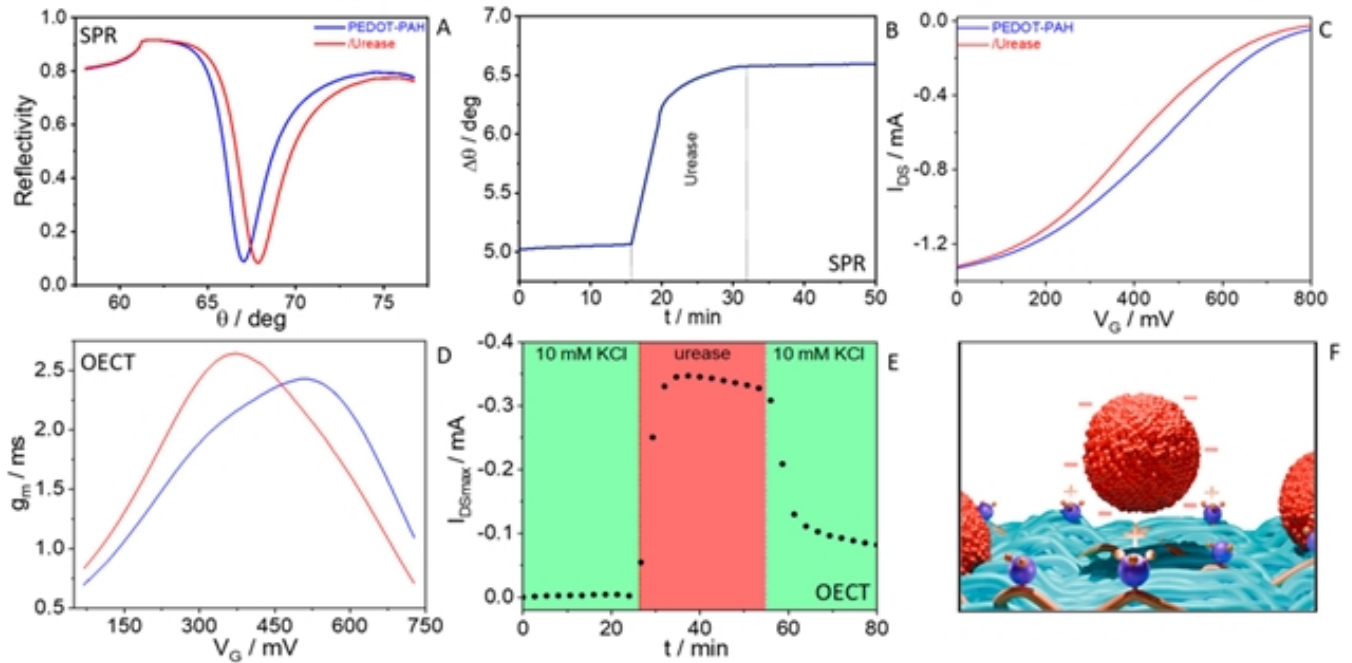


图1. 改性PEDOT-PAH金传感器的表面等离子体共振反射率曲线：尿素酶吸附前 (蓝色) 与吸附后 (红色) (A)。尿素酶与KCl溶液注入过程中最小反射角变化 $\Delta\theta$ 随时间变化曲线 (B) PEDOT-PAH通道上尿素酶静电吸附的IDS-VG曲线 (C) 及跨导曲线 (D)。尿素酶吸附过程中IDSmax随时间变化 ($V_G = 590$ mV) (E)。尿素酶在PEDOT-PAH表面静电吸附示意图 (F)。

基于OECT的尿素检测

传感器在 $100\ \mu\text{M}$ 至 1 mM 尿素浓度范围内表现出可逆的浓度依赖响应，其机理在于脲酶催化尿素分解产生氨，引起局部pH升高，进而导致PEDOT-PAH中PAH氨基去质子化并稳定沟道电荷载流子，最终使晶体管转移曲线发生特征性偏移 (图2)。未修饰酶的器件对尿素无响应，证实了传感作用的酶特异性。实验还观测到电流响应具有良好的可逆性，且与直接pH测试的结果机制一致，为基于局部pH变化的酶集成OECT生物传感器设计提供了可靠依据。

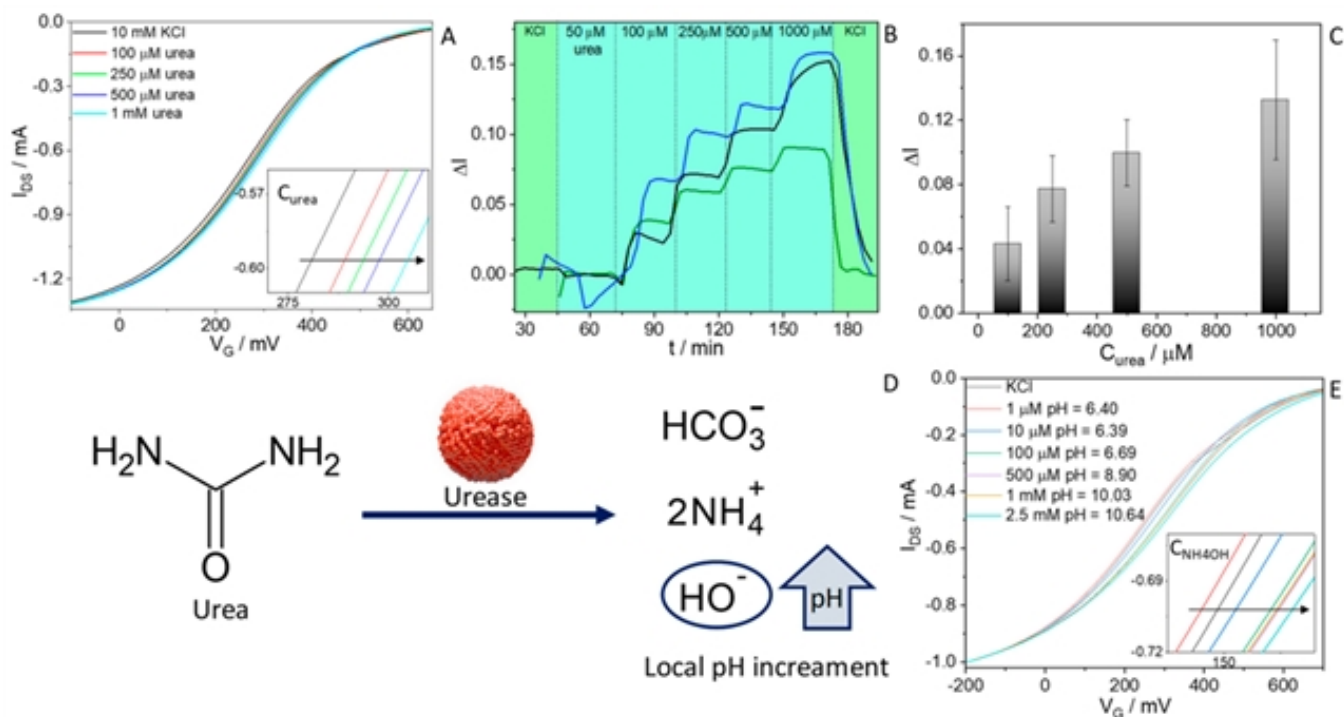


图2. (A) 三种器件中 I_{DSmax} 随尿素浓度变化的相对变化曲线 ($V_G = 350 \text{ mV}$ (蓝绿线), $V_G = 300 \text{ mV}$ (黑线))。 (B) 尿素浓度对 I_{DSmax} 电流相对变化的影响。误差条对应三个不同OECT样本的标准差 ($n = 3$) (C)。尿素酶催化的尿素酶反应示意图 (D)。含10 mM KCl的 NH_4OH 溶液中PEDOT-PAH OECT的IDS-VG曲线 (E)。

聚乙烯亚胺集成与多层组装

在验证脲酶修饰OECT的尿素传感能力后, 进一步通过引入聚电解质聚乙烯亚胺 (PEI) 来提升传感器性能。表面等离子体共振 (SPR) 监测显示, PEI能有效吸附于脲酶层上, 并通过电荷过补偿实现多层脲酶/PEI结构的层层组装, 且该结构在尿素催化反应中保持稳定。在PEDOT-PAH叉指电极上的组装过程通过OECT转移曲线实时监测, 发现PEI吸附引起更大的电流偏移, 这归因于其高正电荷对PEDOT载流子的去掺杂效应。研究表明, PEI的引入不仅增强了酶固定层的稳定性, 还使OECT能够灵敏监测多层组装过程, 为构建高性能尿素生物传感器提供了有效策略 (图3)。

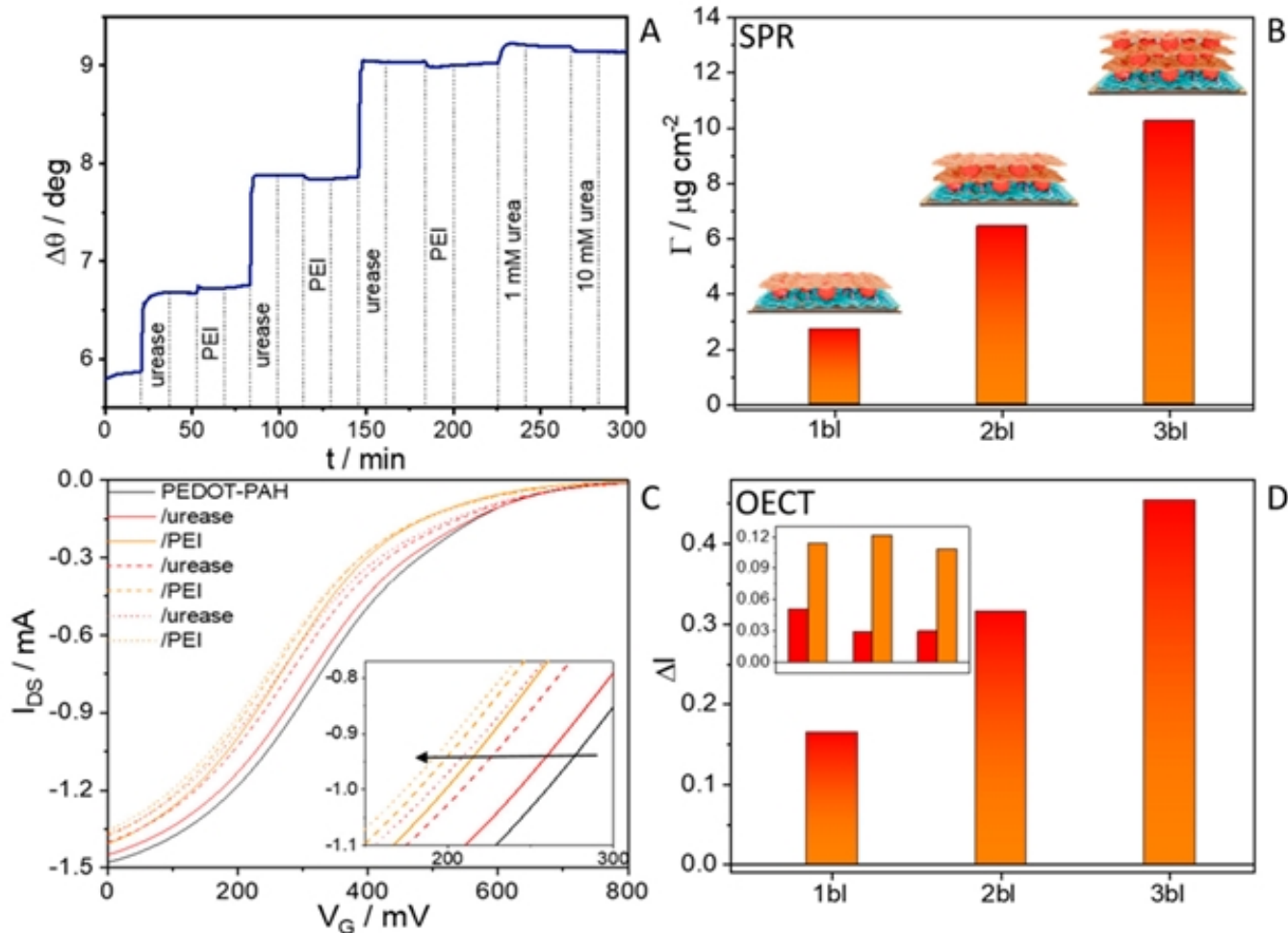


图3. 在构建三层尿素酶/聚乙烯亚胺双分子层期间及注入KCl和尿素后的表面等离子体共振传感图(最小反射角变化 $\Delta \theta$ 随时间变化)(A)，以及每次双分子层沉积后获得的累积质量密度(B)。不同吸附步骤后的IDS-VG转移曲线(C)及对应每层双分子层构筑的IDSmax电流总相对变化(D)。插图显示各单步沉积过程中的相对电流变化。

文章总结

本研究成功将脲酶通过静电组装方式整合到PEDOT-PAH有机电化学晶体管(OECT)的导电通道中，构建了一种新型尿素生物传感器。聚烯丙胺的引入在保持材料导电性的同时，实现了脲酶的高稳定性固定。当传感器暴露于尿素溶液时，脲酶催化尿素分解产生氨，引起沟道局部pH升高，进而改变PEDOT-PAH的电导特性，导致器件电流发生变化。研究显示，在最大跨导对应的栅压条件下，漏源电流变化与尿素浓度的对数呈线性关系，且传感器对尿素具有良好的选择性。通过在脲酶表面吸附聚乙烯亚胺(PEI)层，进一步提升了传感器的响应稳定性。该传感器成功实现了对稀释尿液中尿素的检测，验证了其在真实样品中的应用潜力。这项工作创新性地将酶直接集成于OECT导电通道，利用酶促反应引发的局部pH变化实现传感，为开发基于OECT的高选择性、低成本生物传感器提供了新思路。

引用格式：

Neyra Recky, J.R.; Montero-Jimenez, M.; Scotto, J.; Azzaroni, O.; Marmisoll é, W.A. Urea Biosensing

through Integration of Urease to the PEDOT-Polyamine Conducting Channels of Organic Electrochemical Transistors: pH-Change-Based Mechanism and Urine Sensing. Chemosensors 2024, 12, 124.

Chemosensors 期刊介绍

主编：Nicole Jaffrezic-Renault, CNRS/Univeristy of Lyon, France; Jin-Ming Lin, Tsinghua University, China

期刊范围涵盖化学传感理论；机理和检测原理；开发、制造技术；化学分析方法在食品、环境监测、医药、制药、工业、农业等方面的应用。

2024 Impact Factor 3.7 2024 CiteScore 7.3 Time to First Decision 19.1 Days Acceptance to Publication 2.6 Days

来源：Chemosensors

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发