16p-B1-8

## 酸化グラフェン薄膜デバイスによるタンパク質特異吸着の検出

Specific adsorption of proteins using graphene oxide thin film field effect transistor

阪大院工<sup>1</sup>, 阪大産研<sup>2</sup>, <sup>O</sup>松崎 通弘<sup>1</sup>,根岸 良太<sup>1</sup>,大野 恭秀<sup>2</sup>, 前橋 兼三<sup>2</sup>, 松本 和彦<sup>2</sup>, 小林 慶裕<sup>1</sup>

Osaka Univ.,°M. Matsuzaki, R. Negishi, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Matsumoto, Y. Kobayashi

## E-mail: m.matsuzaki@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】グラフェン電界効果トランジスタ(FET)を利用したバイオセンサは、優れた感度で選択的タン パク質等の検出に成功している[1]。ここで用いられているグラフェンは、グラファイトの結晶から機械剥離 法により得られているため、集積デバイス応用などのスケラビリティに問題がある。一方、化学剥離法によ り大量合成可能な酸化グラフェン(GO)は、薄膜形成による大面積化が容易であるが、化学処理過程で 生成される欠陥構造等が、GO薄膜の著しい電気特性の劣化を引き起こす。これまで我々はエタノール を炭素源とした化学気相成長(CVD)環境での加熱処理により、(1)GO薄膜の還元と構造回復が効率 的に進行し、(2)GOフレーク間のキャリア散乱が抑制されることを報告してきた[2]。さらに、還元・構造回 復処理後のGO薄膜をチャネルとしたFET (rGO-FET)によりpHの変化を高感度に検出できることを明ら かにした。その一方で、pH の検出は rGO 薄膜表面のイオン濃度の変化を検出しているだけで、実用的 なバイオセンサへの応用に向けて必須となる選択的タンパク質の検出には至っていなかった。そこで本 研究では、受容体をrGO薄膜表面に固定化することで、タンパク質の特異吸着による検出を試みた。 【実験】SiO<sub>2</sub>/Si基板上に単層GO水溶液(Graphene Laboratories Inc.)をスピンコート法により塗布し、均一 なGO薄膜を作製した。GO薄膜の還元・構造回復処理は、エタノールCVD条件により行った。フォトリソグ ラフィー工程によりrGO-FETを作製し、ヒト免疫グロブリンE(IgE)の選択的検出を行った。ここで、IgEを 選択的に検出するため、IgEと特異吸着するIgEアプタマーをrGO薄膜表面に固定化した。タンパク質の 検出には、バイポテンシオスタットによる電気化学測定系を用いた。

【結果と考察】 Fig.1にIgEアプタマー修飾前後におけるrGO薄膜の走査型原子間力顕微鏡(AFM)像を示す。修飾後にチャネル部の高さが~2 nmほど大きくなっているのが観察されている。IgEアプタマーの

大きさが2~3 nmであることから、アプタマーがrGO薄膜 (a) 全面を覆うように修飾されていることが確認できる。これ までの研究でrGO薄膜のキャリア輸送特性解析から、 エタノールCVD処理によりrGO薄膜の欠陥構造が回復 し、表面のπ電子系が空間的に拡張していることを見出 している[2]。アプタマーをrGO薄膜表面へ固定化する ためのアンカー分子は六員環構造を持っていることを 踏まえると、構造回復処理の結果rGO薄膜表面とアンカ ー分子の π-πスタック相互作用が強くなり、高密度に アプタマーがrGO表面へ固定化されたものと考えられる。 Fig.2にアプタマー修飾したrGO-FETセンサによるタン パク質の検出結果を示す。IgEの投入後にソース・ドレイ ン電流値の減少が確認できる。これはIgEの吸着に伴い rGOチャネルのポテンシャルが変調したため、電流値が 変化しているものと考えられる。一方、非特異タンパク質 である牛血清アルブミン(BSA)溶液を加えても、電流 値の変化は示さない。この結果は、IgEの選択的検出の 成功を意味しており、エタノールCVD処理により高品質 化したrGO薄膜は高機能バイオセンサ応用へ非常に有 効な材料であることを明らかにした。さらに、得られた感 度は機械剥離グラフェンFETの~1/10程度を有してお り、より高温条件でのエタノールCVD処理によるrGO薄 膜の高品質化によってセンサ機能向上が期待できる。 [1]Y. Ohno et al., Nano Lett., 9(2099)3318. [2]根岸良太 他、第59回春季応物 28a-G10-6.



Fig.1 (a) AFM images of the rGO thin film before and after aptamer-modification. (b) Height profiles of the rGO thin film along L-L' and N-N' lines in the images, respectively.



Fig. 2 Time-dependent source-drain current versus time for the specific (IgE) and non-specific (BSA) adsorption of proteins using the aptamer-modified rGO-FET.