修飾したグラフェン FET と DNA の結合および脱離の電気的検出

グラフェン電界効果トランジスタ(G-FETs)は生体分子を高感度に検出できると期待されていて、すでに帯電したタンパク質の検出等が報告されている[1]。最近 DANP(2-7, diamino-1, 8-naphthyridine derivative)分子を用いたポリメラーゼ連鎖反応(PCR)による DNA の光学的なリアルタイム検出が報告されたが[2]、G-FETs を用いればその電気的な検出が期待できる。本研究では G-FETs を用いて DANP 分子を用いたリアルタイム PCR を電気的に観測することを目指して、DANP をグラフェン表面上に修飾し DANP とシトシンバルジ(C バルジ)へアピン DNA の結合と脱離を電気的に検出した。

G-FETs は機械的剥離法によって得られたグラフェンを用いて SiO₂/Si 基板上に作製した。電極は電子線リソグラフィ法と真空蒸着を用いて作製した。DANP をグラフェン表面上に修飾するために、PyDANP(N-(3-((7-((3-aminopropyl)amino)-1,8-naphthyridin-2-yl)amino)propyl)-4-(pyren-1-yl) butamide)分子を合成し、これを修飾した。電気測定時の模式図を Fig. 1 に示す。本研究では Ag/AgCl 参照電極をトップゲート電極として用いた。PyDANP を修飾した G-FETs にラバープールを置き、C バルジ DNA を投入して電気測定を行った。その後 NaOH を用いて PyDANP と C バルジ DNA を脱離させ、再び電気測定した。

Fig. 2 (a) に PyDANP 修飾直後、C バルジ DNA 投入直後、NaOH 処理後の G-FETs の伝達特性、Fig. 2 (b) に各 DNA 濃度(50 nM ~ 1 μ M)におけるディラックポイント(電流が最小となる電圧)を示す。C バルジ DNA を投入すると、ディラックポイントが正の方向にシフトした。これは PyDANP と結合した C バルジ DNA が溶液中で負に帯電しているためである。その後 NaOH で処理すると、C バルジ DNA が脱離し、ディラックポイントは負の方向にシフトして PyDANP 修飾直後とほぼ同じ位置まで戻ってきた。この結果から G-FETs を用いて PyDANP と C バルジ DNA の結合と脱離の電気的な観測に成功した。従って G-FETs は PCR による DNA の増幅を電気的に観測するセンサとして利用できると期待される。

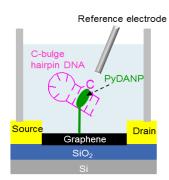
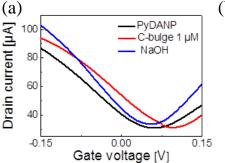


Fig. 1 Schematic image of measurement setup.



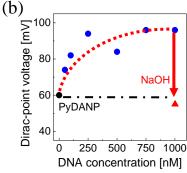


Fig. 2 (a) Transfer characteristics of the G-FETs after immobilization PyDANP, introduction of 1 μ M C-bulge DNA, and NaOH treatment. (b) Gate voltages at Dirac point in various DNA concentrations. Red point corresponds to the result after NaOH treatment.

- [1] Y. Ohno et al., J. Am. Chem. Soc. 132 (2010) 18012.
- [2] H. Chen et al., J. Mol. Diagn. 2013, 15, 227-233