

## バイオセンサー応用に向けたグラフェン上ピレン吸着密度制御の検討

## Control of pyrene density adsorbed on graphene surfaces toward biosensor application

阪大院工 °松井 祐司、根岸 良太、小林 慶裕

Osaka Univ. °Y. Matsui, R. Negishi, Y. Kobayashi

E-mail: matsui-yu@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】酸化グラフェン(GO)をチャンネルに用いた電界効果トランジスタバイオセンサーの感度は、標的となるたんぱく質吸着の認識部位密度に依存する。GO薄膜上でたんぱく質認識部位を固定化するにはピレンが用いられている。そのため、ピレン吸着量の定量評価と密度制御が安定したセンサー動作のためには重要となる。前回の報告では、紫外可視分光(UV)測定でピレンの定量評価が可能であることを示し、吸着密度がGO表面の状態に強く依存することを明らかにした[1]。本発表では、高温でのGO還元・構造修復処理とピレン飽和吸着密度について調べ、さらに吸着処理に使用したピレン溶液濃度と吸着密度との相関関係を解析した結果を報告する。

【実験】水晶基板上に3-アミノプロピルトリメキシランを用い自己組織化単分子膜を形成した後、単層GO水溶液(Graphene Laboratories Inc.)に浸し、均一な膜厚のGO薄膜を形成した。GO薄膜をAr、エタノール気相雰囲気において熱処理しGO薄膜の還元・構造修復を行った。得られた試料にピレンを十分に吸着し、UVスペクトルを測定することにより、GO表面状態と飽和密度との関係を調べた。また、エタノール気相雰囲気1000 °Cで熱処理したGO薄膜表面上に様々な濃度の溶液を用いてピレンを吸着して同様の測定を行うことにより、ピレン吸着密度の濃度依存性を解析した。

【結果】Fig.1に様々な条件で処理したGO薄膜に対するピレンの吸光度(350nm)とピレン表面被覆率(吸着密度)との関係を示す。気相雰囲気がArかエタノールかによらず、より高温で熱処理を行った場合に吸着量が増加する傾向がわかる。気相雰囲気がエタノールの場合にArと比べてグラフェン構造( $\pi$ 電子系)の回復が著しく進行することを踏まえると[2]、この結果はピレンの飽和吸着量が $\pi$ 電子系回復よりも熱処理の温度に支配されていることを示す。GOの表面状態とピレン吸着過程の詳細を解明するにはピレン吸着のカイネティクスについて調べる必要がある。そこで、代表例としてエタノール雰囲気処理したGOについて検討した結果をFig.2に示す。ピレンの濃度を10  $\mu$  Mから2000  $\mu$  Mまで変化させた場合の吸収スペクトルにおける350nmのピーク強度から、それぞれの濃度におけるピレン密度を見積り、ラングミュア吸着過程を仮定して解析をおこなった。その結果、Fig.2の挿入図に示すように、濃度依存性はラングミュア吸着等温式を用いてよくフィッティングできることが判明した。フィッティング解析から最大吸光度として0.015、吸着平衡定数(=吸着・脱離速度定数の比)として0.013(l/mol)の値が求められた。この手法を様々な表面状態のGOに対して適用することにより、ピレン吸着速度定数の密度依存性や吸着種間の相互作用などの詳細が明らかにされ、バイオセンサーの定量化や安定動作に結び付くと考えられる。

[1]松井 他、秋季第75回応物学会講演会 17p-B1-15

[2]根岸 他、秋季第75回応物学会講演会 18p-B1-2

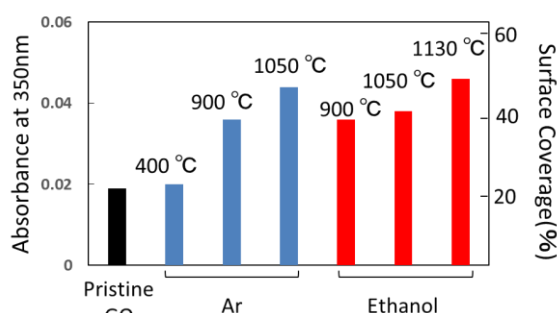


Fig.1 Absorbance/surface coverage of pyrene on graphene treated by various processes

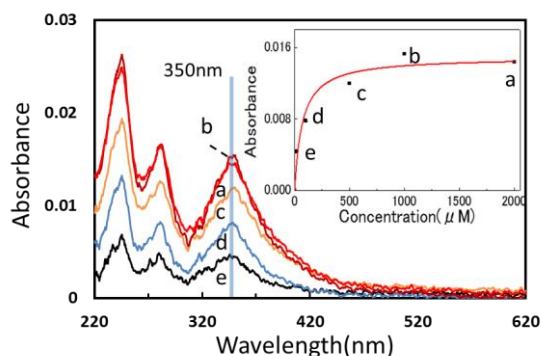


Fig.2 UV absorption spectra of pyrene on graphene prepared using various pyrene solution. (a) 2mM (b) 1mM (c) 500 $\mu$ M (d) 100 $\mu$ M (e) 10 $\mu$ M. The inset shows the analysis based on Langmuir adsorption process.