

# 絹フィブロインで酵素を固定化した拡張ゲート FET のグルコース検出特性

Glucose sensing characteristics of a bio-sensing FET with immobilized enzyme

on the extended gate electrode using silk fibroin

大阪工業大学 ナノ材料マイクロデバイス研究センター

池 広大, 大西 勇輔, 広藤 裕一, 小池 一步, 矢野 満明

Osaka Inst. of Tech., Nanomaterials Microdevices Research Center, °Kodai Ike, Yusuke Onishi,

Yuichi Hirofuji, Kazuto Koike, Mitsuaki Yano, E-mail: m1m17301@st.oit.ac.jp

## はじめに

近年、体液に含まれる健康マーカーを連続かつ、繰り返し測定可能なバイオセンサーに関心が高まっている。我々は拡張ゲートタイプの FET を用いて、体液に含まれる糖（グルコース）を高感度で検出できるグルコースセンサーの開発を進めている。既に、拡張ゲート表面に絹フィブロイン酵素膜をキャスト法で固定化したグルコースセンサーを報告しているが[1]、今回、膜厚制御性に優れたスピコート法で作製することに成功したので、その結果を報告する。

## 実験と結果

まず、絹フィブロイン（松田養蚕場製 ナノフィブロインパウダー®）：酵素：蒸留水＝60：3：140（重量比）で調整した水溶液を 35°C に保った恒温槽内で 1 時間以上攪拌した。次に、アミノシラン分子でシランカップリング処理を施した TiO<sub>2</sub>/Ti 基板を準備し、上記水溶液を表面へ滴下・スピコートした。その後、試料を 80 vol% のエタノール水溶液に 1 時間浸漬し、絹フィブロイン酵素膜の不溶化を行った。Fig. 1 に、スピコート回転速度と不溶化前後の膜厚の関係を示す。回転速度の増加に伴って膜厚が減少しており、膜厚の制御が可能なが分かる。不溶化後に膜厚が約 15% 減少しているが、これは水溶性のフィブロイン膜が不溶化の過程で一部がエタノール水溶液に溶出した、もしくは脱水縮合したためと考えられる。ここでは、回転速度 6000 rpm で作製した厚み 1 μm の絹フィブロイン酵素膜を有する拡張ゲート採用し、それを市販 MOSFET のゲート端子と接続して拡張ゲート FET を構成した。

拡張ゲート部と Ag/AgCl 参照電極を pH 6.0 に調整した 100 mmol/L のリン酸緩衝溶液に浸し、ドレイン電流を 100 μA に保ってグルコース濃度に対するゲート電圧シフト量 ( $\Delta V_G$ ) の関係を調べた。Fig. 2 にグルコース濃度を段階的に変化さ

せたときの  $\Delta V_G$  の時間応答を示す。濃度の増加に伴ってシフト量が増加していることから、酵素反応によって生じた H<sup>+</sup> が拡張ゲート表面の -OH 基と結合して、表面電位が増加したと考えられる。この結果を、ミカエリス・メンテンの式に適用したところ、みかけのミカエリス・メンテン定数が 0.018 mg/mL と見積もられた。この値は、尿や唾液に含まれる低濃度のグルコースに対応している。当日は、絹フィブロイン酵素膜の固定化プロセスやセンサーの解析結果について詳細を含めて報告する。

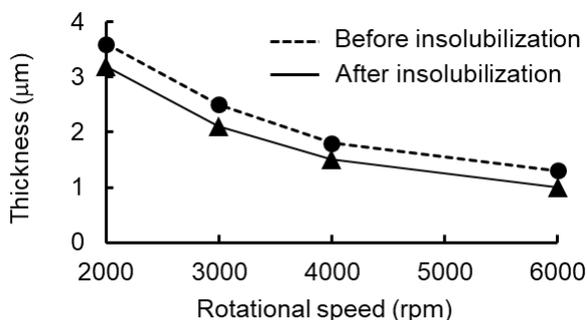


Fig. 1 Thickness of the spin-coated silk-fibroin membrane before and after insolubilization.

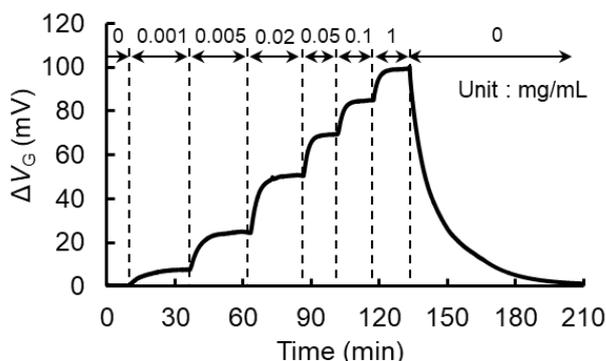


Fig. 2 Glucose detection characteristics of the enzyme-modified extended-gate FET.

[1] 池ほか, 第 27 回日本 MRS 年次大会, 2017 年 12 月 5~7 日, 横浜.