

減圧ドライ転写法により作製したサスペンデッドグラフェン上での選択的分子検出

Selective molecular detection on a suspended graphene developed by low-pressure dry transfer technique

豊橋技科大¹, JST さきがけ² ○(B)喜種慎¹, 石田隼斗¹, 澤田和明¹, 高橋一浩^{1,2}

Toyohashi Tech.¹, JST-PRESTO², S. Kidane¹, H. Ishida¹, K. Sawada¹, K. Takahashi^{1,2}

E-mail: kidane-s@int.ee.tut.ac.jp

1. はじめに

化学物質や生体分子を高感度に検出するセンサとして優れた機械的、電気的特性を持つグラフェンを用いた MEMS 共振型センサが期待されている。グラフェン MEMS 共振型センサは自立した可動膜のサスペンデッドグラフェン上で分子を検出するが、センサ応用するためには検出対象の分子のみを選択的に検出するために表面の機能化が必要である。これまでに基板上に固定されたグラフェンでは特定の分子を検出した報告があるが[1]、サスペンデッドグラフェン上で分子を選択的に検出した報告はこれまでになかった。本研究では減圧ドライ転写法[2]により作製したサスペンデッドグラフェン上に抗体の化学修飾を行い、抗原抗体反応によって選択的分子検出を実証した。

2. サスペンデッドグラフェン上への化学修飾

Fig.1 に減圧ドライ転写法で作製したサスペンデッドグラフェンが形成されたグラフェンチップの模式図と電子顕微鏡画像を示す。この構造は下部のキャビティをサスペンデッドグラフェンで封止した構造となっており、溶液プロセスによってグラフェン表面に化学修飾をすることができる。

サスペンデッドグラフェン上への化学修飾は、抗体を固定化するための架橋剤として、グラフェンに π スタッキングで結合する 1-ピレンブタン酸スクシンイミジルエステル(PBSE)を用いた。PBSE を 1 mg/mL の濃度となるよう超純水に溶かした溶液にグラフェンチップを 1 時間浸して修飾を行った。そして 5 分間リン酸緩衝生理食塩水(PBS)に浸して洗浄してから、濃度 100 μ g/mL のウシ血清アルブミン抗体(anti-BSA)溶液に 1 時間浸してグラフェン表面に anti-BSA 抗体を固定化した。その後 PBS に 5 分間浸して洗浄を行った。

3. 選択的分子検出実験の方法と結果

分子の選択的検出を示すため、BSA 抗体を固定化したグラフェンチップを濃度 10 μ g/mL の BSA 抗原溶液とヒト血清アルブミン(HSA)抗原溶液それぞれに液浸して実験を行った。

実験の結果、Fig.2 の光学顕微鏡画像に示すように BSA 抗原液中でサスペンデッドグラフェンの干渉色が黄色から赤色に変化する様子が得られた。サスペンデッドグラフェンとシリコン基板との間のギャップによって光干渉特性を持つことから、ギャップの変化を示唆する結果である。この変化を分光測定によって干渉スペクトルの変化として測定した結果を Fig.3 に示す。実験の結果、ピークが BSA 抗原液中で 34 nm、HSA 抗原液中で 19 nm のレッドシフトした事が分かった。このレッドシフトは抗原抗体反応によって多くの BSA 抗原が吸着し、吸着した抗原同士のクーロン反発力によってサスペンデッドグラフェンが上方に膨らんだことによるものと考えられる。これらの結果から、抗原抗体反応によってサスペンデッドグラフェン上での選択的分子検出を実証したといえる。

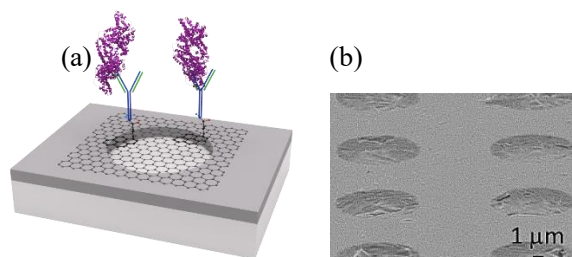


Fig.1 (a) Schematic and (b) SEM image of suspended graphene with drum structure developed by low-pressure dry transfer technique.

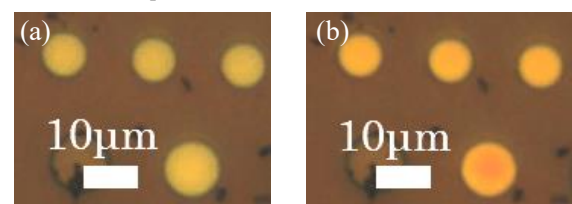


Fig.2 Interference color change of suspended graphene with immobilization of BSA antigen by antigen-antibody reaction (a) at an initial state and (b) after 30 min treatment.

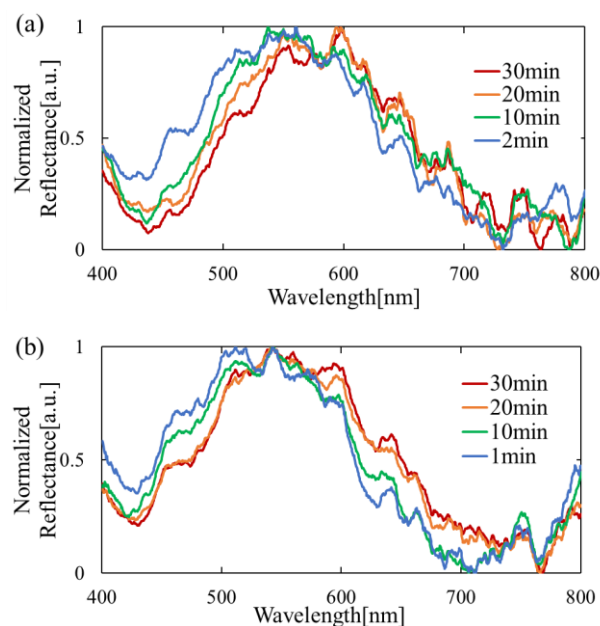


Fig.3 Optical interference characteristics of selective molecular detection with (a) 10 μ g/mL BSA antigen solution (b) 10 μ g/mL HSA antigen solution.

参考文献

- [1] S.Okamoto, *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 51, 06FD08, (2012)
- [2] H.Ishida, *et al.*, *Proc. IEEE MEMS 2017*, pp. 928-931.