

迅速簡易免疫検査に向けたグラフェン電極の電気化学発光特性評価 Evaluation of electrochemiluminescence properties of graphene transparent electrodes for rapid and simple testing

青学大理工, ○石川 遼平, 岩崎 貴充, 渡辺 剛志, 黄 晋二

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin Univ.

○Ryohei Ishikawa, Takeshi Watanabe, Takamitsu Iwasaki, Shinji Koh

E-mail : ishikawa_ryohei@ee.aoyama.ac.jp

世界的な COVID-19 の大流行により免疫測定 of 迅速簡易検査への注目が集まっている。我々は CVD 法により作製したグラフェンを電気化学発光 (ECL : Electrochemiluminescence) 免疫分析に透明電極として用いることで、高感度かつ迅速簡易検査に適する小型な測定システムを実現することを目指している。これまでに発光物質を含む溶液系でのグラフェン透明電極の有用性を確認している^[1]。本研究は免疫測定時と同様の発光物質を電極上に固定化した測定系でグラフェン電極を用いて、ECL 特性を評価することを目的とした。

CVD 法により Cu 基板上にグラフェンを成膜し、PMMA 支持転写法により石英ガラス基板上にグラフェンを転写した。ECL 発光物質である Ru 錯体 ($\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$) を電極に固定化するために磁性ビーズを利用した。既報^[2]に従いピピリジル基に NHS 基が付加した Ru 錯体 (NHS-Ru) を合成した^[2]。NHS-Ru と磁性ビーズ (M270-Streptavidin) を結合させるため、アミノ基とビオチン部位を有するビオシチンをリンカー分子として用いた。Ru 錯体を結合させた磁性ビーズを磁石によりグラフェン電極上に固定化し、0.1 M のトリプロピルアミン (TPrA) を含んだ 0.1 M のリン酸緩衝液を使用して、ECL 測定を行った。比較としてグラッシーカーボン (GC) 電極でも同様の測定を行った。

透明なグラフェン電極では、光検出器を測定セル上部に配置した場合と電極の基板直下に配置した場合での結果を比較した。図 1a に光検出器をセル上部に設置して得られた ECL 強度-電位曲線を示す。約 1 V からの ECL 強度の増加は TPrA の酸化反応の開始と関連付け

られ、この電極反応を契機とする磁性ビーズで固定化された Ru 錯体の発光すなわち ECL が検出できたといえる。セル上部に光検出器を配置した場合の ECL 強度はグラフェン電極よりも GC 電極の方が大きい、グラフェン透明電極の基板下に光検出器を配置して測定することで、GC 電極に比べ約 200 倍大きい ECL 強度となった (図 1b)。これは、基板下からの ECL 検出では集光角が増加し、ECL を効率よく捉えることができるためと考えられる。以上より、本研究はグラフェン電極上で磁性ビーズを介して固定された Ru 錯体からの ECL 検出に成功し、また電極の透明性が測定の高感度化に繋がることを実証した。

[1] 石川, 渡辺, 岩崎, 原, 黄 : 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 12a-PA2-17 (2019).

[2] Xiaoming Zhou, et al., NATURE PROTOCOLS, **9**, 5, 1146 (2014).

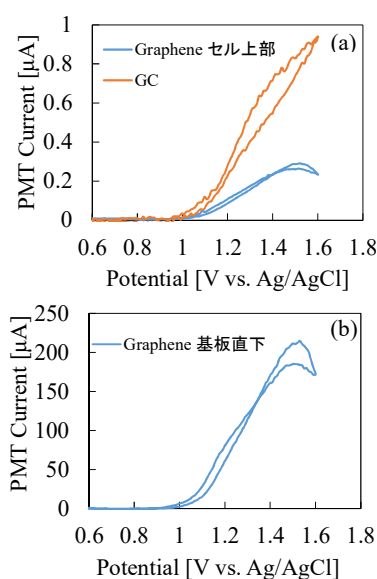


Figure 1: ECL intensity vs. potential curves in 0.1 M PBS containing 0.1 M TPrA and 20 μg Ru complex-bound magnetic beads, recorded with PMT placed above the measurement cell (a) and under the substrate (b).