

一般セッション(口頭講演) | 12 有機分子・バイオエレクトロニクス：12.7 医用工学・バイオチップ

2024年9月18日(水) 13:00 ~ 18:30 会場 C31 (ホテル日航新潟 3F)

**[18p-C31-1~19] 12.7 医用工学・バイオチップ**

當麻 真奈(東工大)、田中 貴久(慶大)、酒井 洸児(NTT)、張 慧(群馬大)

13:00 ~ 13:15

[18p-C31-1]

トリメリト酸を受容部に用いた甘味センサの膜電位と応答の相関解明による感度向上

○渡辺 竜吉<sup>1</sup>、久村 壮次郎<sup>1</sup>、木村 俊輔<sup>2</sup>、都甲 潔<sup>2</sup> (1.九大シス情、2.中村学園大)

◆ 奨励賞エントリー

13:15 ~ 13:30

[18p-C31-2]

分子鑄型ダブルネットワークハイドロゲルチャネルを有する有機電気化学トランジスタの創製

○河村 優希<sup>1</sup>、Alex C. Tseng<sup>1</sup>、坂田 利弥<sup>1</sup> (1.東大院工)

◆ 奨励賞エントリー

13:30 ~ 13:45

[18p-C31-3]

チャネル内部の機能化を可能にするゾル-ゲル法を用いたOne-piece ITO-TFTの作製

○(D)片山 律<sup>1</sup>、坂田 利弥<sup>1</sup> (1.東大院工)

◆ 奨励賞エントリー

13:45 ~ 14:00

[18p-C31-4]

集積化FET バイオセンサによる多検体同時検出の検証

○(M1)赤尾 アメル<sup>1</sup>、坂田 利弥<sup>1</sup> (1.東大院工)

◆ 奨励賞エントリー

14:00 ~ 14:15

[18p-C31-5]

導電性ポリアニリン電極の分子インプリンティングに向けた膜厚制御

○井上 恵<sup>1</sup>、坂田 利弥<sup>1</sup> (1.東大院工)

14:30 ~ 14:45

[18p-C31-6]

アミロイドタンパク質 $\alpha$ シヌクレイン検出用 LSPR センサの周期構造の微細化、形状による検出感度の改善○木村 悠人<sup>1</sup>、Werner Carl Frederik<sup>1</sup>、蓮池 紀幸<sup>1</sup>、福澤 理行<sup>2</sup>、野田 実<sup>3</sup> (1.京工織大 電子、2.京工織大 情報、3.関西大 化学生命工学部)

14:45 ~ 15:00

[18p-C31-7]

絶縁コートによる集積化G-FETのドリフト安定化

○山本 佳織<sup>1</sup>、佐藤 夏岐<sup>1</sup>、矢野 真美子<sup>1</sup>、坂野 喜代治<sup>1</sup>、大西 映里子<sup>1</sup>、牛場 翔太<sup>2</sup>、谷 晋輔<sup>2</sup>、木村 雅彦<sup>2</sup>、渡邊 洋平<sup>3</sup>、田中 秀和<sup>1</sup>、松本 和彦<sup>1</sup> (1.阪大産研、2.村田製作所、3.京都府立医)

◆ 奨励賞エントリー

15:00 ~ 15:15

[18p-C31-8]

多孔質チャネルを有する有機電気化学トランジスタの過酸化水素応答性

○(D)伊藤 健介<sup>1</sup>、坂田 利弥<sup>1</sup> (1.東大院工)

---

15:15 ~ 15:30

[18p-C31-9]

比色型プラズモニックバイオセンサによる炎症マーカーCRPの検出

○三木 啓夢<sup>1</sup> (1.東工大)

---

◆ 奨励賞エントリー

15:30 ~ 15:45

[18p-C31-10]

バイポーラ現象に基づく非ファラディック型インピーダンス免疫センサの開発

○(DC)榎木 有理沙<sup>1</sup>、高橋 青<sup>1</sup>、近藤 みずき<sup>1</sup>、桑原 敬司<sup>1</sup> (1.長岡技科大)

---

◆ 奨励賞エントリー

16:00 ~ 16:15

[18p-C31-11]

イオンイメージセンサによる植物体内イオン長期モニタリングの検証

○松下 優介<sup>1</sup>、吉田 太一<sup>1</sup>、坂口 直己<sup>1</sup>、高山 弘太郎<sup>1</sup>、崔 容俊<sup>1</sup>、高橋 一浩<sup>1</sup>、澤田 和明<sup>1</sup>、野田 俊彦<sup>1</sup> (1.豊橋技術科学大学)

---

◆ 奨励賞エントリー

16:15 ~ 16:30

[18p-C31-12]

血流感染症向け迅速遺伝子検出技術の開発

○清水 沙彩<sup>1</sup>、柳川 善光<sup>1</sup>、坂井 友幸<sup>1</sup> (1.日立製作所)

---

◆ 奨励賞エントリー

16:30 ~ 16:45

[18p-C31-13]

CIGS太陽電池による多点マイクロLEDプローブの駆動

○(DC)大屋 翔<sup>1</sup>、西永 慈郎<sup>2</sup>、西川 敦<sup>3</sup>、Loesing Alexander<sup>3</sup>、関口 寛人<sup>1</sup> (1.豊技大、2.産総研、3.ALLOS)

---

◆ 奨励賞エントリー

16:45 ~ 17:00

[18p-C31-14]

CMOSにおいセンサの計測対象拡大を目指した容量検出画素の設計と作製

○上條 友暉<sup>1</sup>、木村 安行<sup>1</sup>、野田 佳子<sup>1</sup>、赤井 大輔<sup>1</sup>、飛沢 健<sup>1</sup>、崔 容俊<sup>1</sup>、高橋 一浩<sup>1</sup>、澤田 和明<sup>1</sup>、野田 俊彦<sup>1</sup> (1.豊橋技術科学大学)

---

17:00 ~ 17:15

[18p-C31-15]

IoT 端末上のイオンゲルセンサによるアセトン・アンモニアセンシング

○(B)秦 佳浩<sup>1</sup>、馬島 翔<sup>1</sup>、椎木 陽介<sup>1</sup>、石黒 仁揮<sup>1</sup>、田中 貴久<sup>1</sup> (1.慶大理工)

---

17:30 ~ 17:45

[18p-C31-16]

イオン液体のインピーダンスを用いた高選択的ガスセンシング

○鐘 柯<sup>1</sup>、田中 貴久<sup>1</sup> (1.慶大理工)

---

● 英語発表

17:45 ~ 18:00

[18p-C31-17]

Hydrophobic Filters Based on PDMS and Zeolite Hybrid Membrane for Pre-separation of Gas Detection

○Chuanlai Zang<sup>1</sup>, Hiroyasu Yamahara<sup>1</sup>, Hitoshi Tabata<sup>1</sup> (1.Tokyo Univ.)

---

18:00 ~ 18:15

[18p-C31-18]

高感度ガスセンサに向けた ZnO/ZIF-8 ハイブリッド構造

○(M2)釜瀬 聡<sup>1</sup>、Chuanlai Zang<sup>1</sup>、山原 弘靖<sup>1</sup>、田畑 仁<sup>1</sup>、Ramaraj Sankar Ganesh<sup>1</sup> (1.東大院工)

---

18:15 ~ 18:30

[18p-C31-19]

マグネティックガスセンサに向けたスピネルフェライトにおけるガス吸着と電子スピン共鳴に関する研究

○佐久間 尊通<sup>1</sup>、山原 弘靖<sup>1</sup>、田畑 仁<sup>1</sup> (1.東大院工)

---

## トリメリト酸を受容部に用いた甘味センサの膜電位と応答の 相関説明による感度向上

### Improvement of Sensitivity of Taste Sensor Composed of Trimellitic Acids for Sweetness

九大シス情<sup>1</sup>, 中村学園大<sup>2</sup>

渡辺 竜吉<sup>1</sup>, 久村 壮次郎<sup>1</sup>, 木村 俊輔<sup>2</sup>, 都甲 潔<sup>2</sup>

Grad. Sch. ISEE, Kyushu Univ.<sup>1</sup>, Nakamura Univ.<sup>2</sup>

°Tatsukichi Watanabe<sup>1</sup>, Sojiro Kumura<sup>1</sup>, Shunsuke Kimura<sup>2</sup>, Kiyoshi Toko<sup>2</sup>

E-mail: Watanabe.tatsukichi.875@s.kyushu-u.ac.jp

食品の味を数値化する手法として味覚センサが用いられており、その受容部には各味質に選択的な応答を示す脂質高分子膜が利用されている。味覚センサでは呈味物質との静電相互作用や疎水性相互作用による膜電位変化が測定される[1]。甘味センサにおいては、主に甘味を司る単糖類や二糖類（無荷電甘味物質）に対して選択的に応答することが肝要である。無荷電甘味用のセンサは既に実用化されているが、他の味物質との夾雑下において有意な電位応答を得ることが困難である。本研究では膜組成や膜電位が糖応答に与える影響を解析し、糖に対する感度や選択性の向上に成功した。

トリメリト酸の含有量を 100 mg、テトラドデシルアンモニウムブロミド (TDAB) の含有量を 0.1–10 mg として 7 種類のセンサを作製した。Fig. 1 に基準液（塩化カリウム、酒石酸混合水溶液）中のセンサ電位を示す。TDAB は膜表面で正に荷電するため、含有量の増加に伴い、電位が上昇した。Fig. 2 にスクロース 1000 mM 溶液中及び基準液中におけるセンサの電位差（相対値）を示す。TDAB 含有量を 0.1 mg から 4.0 mg まで増加させると相対値が上昇し、これは Fig. 1 で示した膜電位の上昇が寄与していると考えられる。味覚センサによる味の評価では相対値の大きさを利用しており、以上の結果から無荷電甘味料センサにおいては TDAB の含有量による膜電位の調整が感度向上に有効であることを明らかとした。

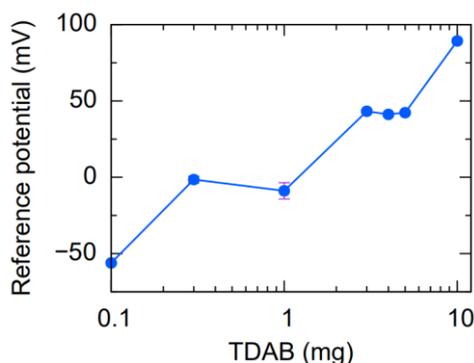


Fig. 1 Response of membranes with different lipid amounts in the reference solution.

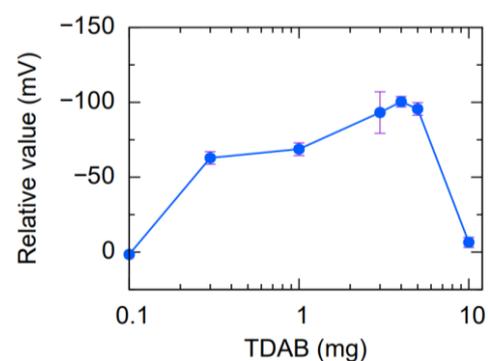


Fig. 2 Relative values in sucrose 1000 mM.

本研究は JSPS 科研費 21H05006 の助成を受けたものです。

[1] Y. Tahara and K. Toko, Electric Tongues-A, Review, IEEE Sens. J, 13(8), 3001-3011, 2013

## 分子鑄型ダブルネットワークハイドロゲルチャネルを有する 有機電気化学トランジスタの創製

Development of organic electrochemical transistor  
with molecularly-imprinted double network hydrogel channel

東大院工 ○(M2)河村 優希, Alex C. Tseng, 坂田 利弥  
The Univ. of Tokyo, ○Masaki Kawamura, Alex C. Tseng, Toshiya Sakata  
E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

### 1. 緒言

導電性を有するポリ(3,4-エチレンジオキシシチオフェン):ポリ(4-スチレンスルホン酸)(PEDOT:PSS)ハイドロゲルをチャネルに用いた有機電気化学トランジスタ(OECT)は、その柔軟性からウェアラブルバイオセンサへの応用が期待される。しかしながら、その多くの研究において、チャネルの電気特性の劣化を避けるため、チャネルと接触する溶液に導入されるゲート電極に生体分子認識部位を形成している。そのため、バイオセンサとしての感度向上には、生体分子をチャネル部で反応させ直接検出する手法が求められる。これまで当研究室では、PEDOT:PSSハイドロゲルに、生体分子認識部位としてフェニルボロン酸(PBA)を含む相互侵入高分子網目(IPN)を導入することにより(ダブルネットワーク(DN)ハイドロゲル)、グルコースをチャネル部で直接検出可能なOECTデバイスを設計・作製し、その基本特性を調査してきた[1]。さらに正電荷を有するモノマーを加えることで、PEDOTを還元させ応答性を向上させた[2]。しかしながら、測定誤差が大きく、低濃度での応答が低いという課題がある。そこで本研究では、測定誤差を低減するため、DNハイドロゲルの均一性を向上させる。さらに、低濃度での検出を実現すべく、分子鑄型ポリマー(MIP)からなるDNハイドロゲルチャネルOECTデバイスの創製を目的とする。

### 2. 実験方法

PEDOT:PSS溶液に、3.5 M グルコース溶液に溶かした4種類のモノマー(acrylamide : 2-acrylamido-2-methylpropanesulfonic acid : *N*-[3-(dimethylamino)propyl]-acrylamide : 3-acrylamidophenylboronic acid = 70 : 12 : 12 : 6)を混合し、5 mL チューブでフリーラジカル重合を行い、DNハイドロゲルを作製した。このゲルを、メタノールと1 M HClを1:1に混合した溶液に一日浸漬し、

PBAから鑄型となるグルコースを取り除いた。その後、ガラス基板上のAu電極にゲルを設置し、乾燥させてデバイスを作製した。グルコースをリン酸緩衝生理食塩水(PBS)で希釈し、 $0.01 \times 10^n$  mM ( $n = 0 \sim 4$ )の溶液を作製した。ゲルを溶液に浸潤させた状態で、サイクリックボルタンメトリー(CV)測定を異なるグルコース濃度溶液にて行った。

### 3. 実験結果と考察

作製したDNハイドロゲルを用いて、グルコース濃度を変化させCV測定を行い、得られた酸化ピーク電流値とグルコース濃度の関係を評価した(図1)。まず、チューブで作製したゲル(赤)は、反応皿で作製したゲル(青)と比較して測定誤差が減少した。これは、チューブ内で作製すると、湿度を維持した状態でゲルの均一性が向上したためだと考えられる。次に、MIP(赤)のグルコース応答は、PBAからグルコースを取り除く前のpre-MIP(黄)と比較して大きな応答を示し、MIPが作製できていることがわかった。特に、図1のデータからLangmuirの式を用いて結合定数 $K_a$ を算出すると、MIPの $K_a$ はNIP(青)よりも増加し、検出限界の向上が期待される[3]。

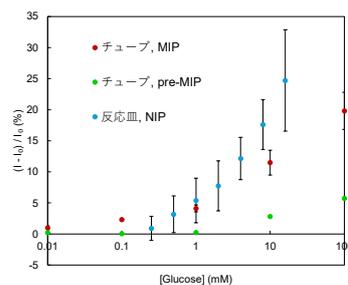


図1: グルコース濃度と酸化ピーク電流値の関係

参考文献 [1] Tseng, A. C., & Sakata, T., ACS Applied Materials & Interfaces 2022, 14, 24729–24740. [2] 河村優希, Alex C. Tseng, 坂田利弥, 第84回応用物理学会秋季学術講演会予稿集, 2023, 11-289. [3] Toshiya Sakata, Communications Chemistry, 2024, 7, 35.

# チャンネル内部の機能化を可能にするゾル-ゲル法を用いた One-piece ITO-TFT の作製 Fabrication of One-piece ITO-TFT via sol-gel method allowing internal functionalization of channel

東大院工 (D1) 片山 律, 坂田 利弥

The Univ. of Tokyo, (D1) Ritsu Katayama, Toshiya Sakata

E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

## 1. 緒言

溶液をゲートとする電界効果トランジスタ (FET) は、溶液と接するゲート絶縁膜表面に機能性分子を化学修飾することで生体機能に関わるイオンや生体分子を特異的・選択的に検出することが可能であり、これらは Biologically-coupled FET (Bio-FET) として知られている。Bio-FET は、イオンや生体分子の電荷を直接検出可能であることから、検出対象物に蛍光分子など標識が不要であり、酵素反応など酸化還元反応を誘導する必要がない。そのため、日常の健康状態を簡便にモニタリングする体外診断用デバイスへの応用が期待される。

なかでも我々の研究グループでは、近年ディスプレイ用電極材料として広く利用されている Indium Tin Oxide (ITO) をチャンネルとした薄膜トランジスタ (TFT) の Bio-FET への応用を検討している。特に、ITO 薄膜が導体であるだけでなく 30 nm 以下の膜厚で半導体特性を示すことを利用し、ITO のみを用いて一度のスパッタリングにより溶液ゲート FET が作製可能であることを見出した [1]。さらに、スパッタにより成膜した導電性 ITO 薄膜の一部を半導体特性を示す最適な膜厚までフォトリソグラフィ技術に基づいてエッチングすることにより、チャンネル形状および特性の精密な制御を可能にした [2]。特に、作製した溶液ゲート ITO-TFT は、ソース/チャンネル/ドレイン間に界面を持たず (One-piece ITO)、溶液がチャンネル表面と直接接することで形成される電気二重層の比較的大きな容量に基づき、80 mV/decade 程度の急峻なサブスレッショルドスロープを示す。前回の報告では、この One-piece TFT のサブスレッショルド領域を活用した高感度な生体分子認識が可能であることを報告した。

当研究室ではこれまで、One-piece ITO-TFT を構成する ITO 薄膜の作製にスパッタ法を用いてきたが、この手法は均一な薄膜が得られる一方でナノ構造化することは困難であった。一方、ITO 薄膜は、ゾル-ゲル法などの溶液プロセスで成膜できることが知られており [3]、溶液プロセスを利用することで、チャンネル内部および表面にナノ構造を作製することが期待できる。特にゾル-ゲル法では、酸化物を用いて分子鑄型が作製できることが知られており [4]、One-piece ITO-TFT のチャンネル内に分子

鑄型を作製することで、チャンネルそのものを機能化できる可能性がある。

そこで本研究では、One-piece ITO-TFT のさらなる高機能化を目指すため、溶液プロセスのなかでも、特にゾル-ゲル法を用いた One-piece ITO-TFT の作製を試みた。

## 2. 実験方法

硝酸インジウム 0.14 M と塩化スズ 0.02 M を含んだ水溶液に 2 M のアンモニウム水を加え pH 8.5 としてゾル粒子を析出させ、これを遠心分離した後、0.84 M の塩酸水溶液中に分散させた。さらに、ゲル化抑制剤として 2.7 M になるように酢酸を加え、ゾル液を作製した。次に、ゾル液をガラス基板上にスピコートしたのちに、基板を 110 °C で 30 分、550 °C で 20 分加熱し、ITO 薄膜を得た。なお、チャンネル部分の膜厚は、エッチングまたはスピコートにより制御し、半導体特性を得る厚さとした。作製したデバイスの  $I_d$ - $V_g$ 、 $I_d$ - $V_d$  伝達特性を半導体パラメーターアナライザーで計測した。

## 3. 実験結果

ゾル-ゲル法を用いて作製した One-piece TFT においても、膜厚を制御することによってスパッタで作製したデバイス同様にトランジスタ特性を得ることができた (図 1)。今後はチャンネル内部の機能化とそのため成膜条件を検討する予定である。

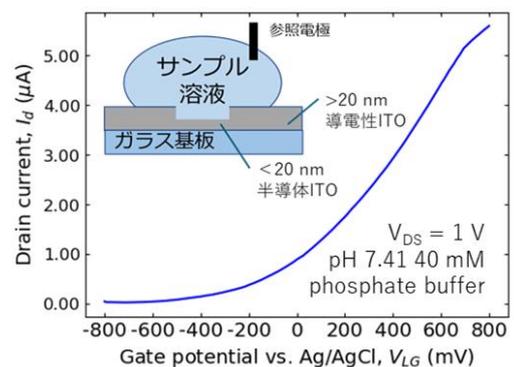


図 1 ゾル-ゲル法で作製した One-piece TFT の模式図と伝達特性

参考文献 [1] Sakata, T.; Nishitani, S.; Saito, A.; Fukasawa, Y. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2021**, *13*, 38569–38578. [2] Katayama, R.; Sakata, T. *ECS Trans.* **2023**, *111*, 37. [3] Furusaki, T. et al. *Ceram. Soc. Japan. Int. ed.* **1994**, *102* (2), 202–207. [4] Ichinose, I.; Kunitake, T. *Chem. Rec.* **2002**, *2* (5), 339–351.

## 集積化 FET バイオセンサによる多検体同時検出の検証 Verification of simultaneous detection of multiple samples with arrayed FET biosensor

東大院工 °(M1)赤尾アメル, 坂田 利弥

The Univ. of Tokyo, °Amer Akao, Toshiya Sakata

E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

### 1. 緒言

イオン感応型電界効果トランジスタ(ISFET)は、生体成分固有の電荷を溶液とゲート電極との界面電位の変化として直接検出することができる[1]。特に、ゲート電極表面に適切なレセプター分子を化学修飾することで、サンプル中のターゲットとなる生体分子やイオンの濃度を特異的・選択的に検出することができるため、疾病や健康管理の指標となるバイオマーカーを検出する体外診断(IVD)デバイスとしての利用が期待される。さらに、ISFET のゲート電極は小型チップ上に集積化することが可能であるため、集積化 ISFET により複数の生体分子やイオンを同時に検出可能となる[2]。しかしながら、IVD デバイスへの応用に向けた ISFET センサに関する研究の多くは、単一の生体成分を対象としており、複数種類の生体成分への対応が今後期待される。そこで本研究では、集積化 ISFET の個々のゲート電極表面に異なるレセプター分子を化学修飾し、複数種類の生体成分を同時計測することを目指す。特に本発表では、モデル分子として DNA を用い、集積化 ISFET の各ゲート電極表面に、2 種類の異なるプローブ DNA を固定化し、それぞれ相補的な配列を有するターゲット DNA を特異的に検出する手法を調査した。

### 2. 実験方法

80 個の素子(ゲート電極)を有する集積化 ISFET (浜松フォトニクス) のゲート絶縁膜表面に、セロトニン分子を塩基性条件下で自己酸化重合することによりポリセロトニン薄膜[3]を成膜後、*N*-succinimidyl-3-maleimidobenzoate (MBS)を架橋剤として、熱処理を施したチオール化 DNA プローブ A (SH-5'-CGG CCA CGA GTA CTA CAA CCG CA-3'), チオール化 DNA プローブ B (SH-5'-CCAACC ACA CCAACC-3')をそれぞれ固定化した。塩橋を介して Ag/AgCl 電極を参照電極とし、それぞれのプローブ DNA に相補的な配列を有する DNA ターゲット A (5'-TGC GGT TGT AGT ACT CGT GGC CG-3'), DNA ターゲット B (5'-GGT TGG TGT GGT TGG -3')を含む溶液をそれぞれ添加し、DNA ハイブリダイゼーションの検出を行った。ターゲット DNA の濃度は 0 M から、1 pM、10 pM、100pM、1 nM と変化させ、ドレイン電流一定の条件で各濃度におけるゲート電圧 ( $V_{out}$ )の変化をリアルタイム測定した。

80 個のゲート電極に対して、0 M での  $V_{out}$  を基準に各濃度における  $V_{out}$  の変化量 ( $\Delta V_{out}$ )と濃度の関係を調査した。

### 3. 実験結果と考察

まず、プローブ A のみを固定化した集積化 ISFET とプローブ B のみを固定化した集積化 ISFET を用いて、それぞれ相補鎖となるターゲット DNA の濃度変化に対し  $V_{out}$ を測定すると、いずれの集積化 ISFET においてもターゲット DNA 濃度の上昇に伴って  $V_{out}$  は増加した。この変化は、ゲート絶縁膜表面におけるターゲット DNA 由来の負電荷の増加に起因すると考えられる[4]。

次に、80 個のゲート電極をプローブ A と B で固定化した領域に分け、ターゲット A または B を添加した。図 1 に示すように、それぞれ 10 pM 添加時の  $\Delta V_{out}$  から、プローブ DNA とターゲット DNA が相補的な配列のほうが、相補的でない配列と比較し、 $\Delta V_{out}$  が約 4-5 倍大きくなることがわかった。このことから、ポリセロトニン薄膜をアンカー層とし MBS を介することで、集積した ISFET のゲート絶縁膜表面に 2 種類の異なるプローブ DNA を固定化でき、それぞれ相補的な配列を有するターゲット DNA を特異的に検出できることがわかった。当日は、同様の方法で作製した集積化 ISFET を用い、ターゲット A および B をいずれも含む溶液を用いて 2 種類のターゲット DNA の同時検出を行った結果についても発表する予定である。

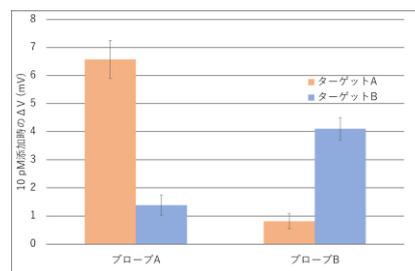


図 1: 各組合せにおける 0 M の時を基準とした 10 pM 添加時のゲート電圧の変化量

### 参考文献

- [1] Sakata, T. [Perspective] *ACS Omega* **2019**, *4*, 11852–11862.
- [2] Rothberg, J. et al. *Nature* **2011**, *475*, 348–352.
- [3] Ishino, K.; Nishitani, S.; Man, Y.; Saito, A.; Sakata, T. *Langmuir* **2022**, *38*, 8633–8642.
- [4] Sakata, T.; Miyahara, Y. *Angewandte Chemie International Edition* **2006**, *45*, 2225–2228.

## 導電性ポリアニリン電極の分子インプリングに向けた膜厚制御 Control of thickness for molecular imprinting of conductive polyaniline electrode

東大院工<sup>○</sup>(M1)井上 恵, 坂田 利弥

The Univ. of Tokyo, <sup>○</sup>Megumi Inoue, Toshiya Sakata

E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

### 1. 緒言

ポリアニリン (PANI) は酵素と比べて安価でありながら機能化が容易に行うことができる人工化合物として電池やセンサ材料への応用に向け研究が進められている。PANI は複数の酸化還元状態を有しており、酸性条件下では導電性を示す高分子であるが、酸をドーパントとして加えることで、中性条件においても導電性を示すことが知られている。この特性を利用して、我々の研究グループでは、ANI にボロン酸基を有するアミノフェニルボロン酸 (m-amino-PBA) を酸化重合することで、PANI-PBA を電極上にコーティングし、PBA-乳酸複合体の形成による電荷変化から、汗中の乳酸濃度をリアルタイム計測することに成功した[1]。

そこで本研究では、この PANI-PBA 膜に分子インプリングを施すことにより、乳酸だけでなく、タンパク質などの高分子を含む幅広いターゲット分子を選択的に検出することを目的とする。得られる分子鑄型ポリマー (MIP) は、ターゲット分子に対して高い選択性を示すことが知られている[2]。さらに、MIP 膜のターゲット分子に対する結合定数とその膜厚との間に相関があることが示されており[3]、高性能な MIP 膜の作製には膜厚制御が重要である。本発表では、PANI-PBA 膜の膜厚制御におけるモノマー、重合開始剤、ドーパントの濃度依存性を調査し、電気特性との関係から MIP 膜作製に最適な条件を報告する。

### 2. 実験方法

m-amino-PBA と、ドーパントとして50%フィチン酸溶液を混合したモノマー溶液に、重合開始剤としてペルオキシ二硫酸アンモニウム (APS) を加えて酸化重合を行った。この際、モノマー溶液の濃度を変化させることによって (モノマー溶液x  $\mu\text{L}$  : APS水溶液y  $\mu\text{L}$  : 純水120-x-y  $\mu\text{L}$ , x, y = 40, 20, 16, 10, 8)、Au電極上に6種類のPANI-PBA膜をドロップキャストにより成膜した。その後、pH 7.4のリン酸緩衝液 (PBS) 中にて、サイクリックボルタン

メトリー (CV)測定及び電気化学インピーダンス分光法 (EIS)測定により電気特性を調査した。また、同様の方法でガラス基板上に成膜したPANI-PBA膜については、原子間力顕微鏡 (AFM)にて膜厚測定を行った。

### 3. 実験結果と考察

まず、PANI-PBA 膜をコーティングした電極を用いて CV 測定と EIS 測定を行い、電気特性を評価した。その結果、モノマー濃度の低下に伴い、CV 測定ではピーク電流値が低下し、EIS 測定では抵抗値が上昇する傾向があることが確認された。

次に、ガラス基板上に成膜した PANI-PBA 膜を AFM にて膜厚測定したところ、モノマー濃度の低下に伴って膜厚が減少することがわかった。これは、モノマー濃度の低下により膜部分のポリマー重合度が低下したためだと考えられる (図 1)。以上の結果より、膜厚制御にはモノマーや重合開始剤の濃度の最適化が重要であり、MIP 膜に最適な薄膜化にはモノマー濃度を低くする必要があるが、同時に抵抗値の増加が懸念され、モノマー濃度によって成膜される膜構造の違いを検討する必要がある。

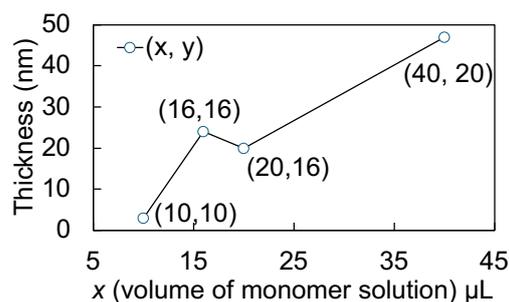


図 1 膜厚の変化

### 参考文献

- [1] Kishi, R.; Nishitani, S.; Kudo, H.; Sakata, T. *under review*.
- [2] Horikawa, R.; Sunayama, H.; Kitayama, Y.; Takano, E.; Takeuchi, T. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2016**, *55*, 13023-13027.
- [3] Sakata, T. *Commun. Chem.* **2024**, *7*, 35.

## アミロイドタンパク質 $\alpha$ シヌクレイン検出用 LSPR センサの 周期構造の微細化、形状による検出感度の改善

### Improvement of the detection capability of LSPR sensors for the detection of the amyloid protein $\alpha$ -synuclein depending on miniaturization and shape of the periodic structure

京工繊大・電気電子<sup>1</sup>・情報<sup>2</sup> 関西大・化学生命工学<sup>3</sup>,<sup>○</sup>(M2)木村 悠人<sup>1</sup>

Carl Frederik Werner<sup>1</sup>, 蓮池 紀幸<sup>1</sup>, 福澤 理行<sup>2</sup>, 野田 実<sup>3</sup>

Electronics<sup>1</sup>, Information science<sup>2</sup>, Kyoto Inst. Tech, Faculty of Chemistry, Materials and Bioengineering,

Kansai Univ.<sup>3</sup>, Y. Kimura<sup>1</sup>, Carl Frederik Werner<sup>1</sup>, N. Hasuike<sup>1</sup>, M. Fukuzawa<sup>2</sup>, M. Noda<sup>3</sup>

E-mail: m3261019@edu.kit.ac.jp

【緒言】 アミロイド性タンパク質である  $\alpha$  シヌクレイン( $\alpha$ Syn)は、凝集・線維化することでパーキンソン病(PD)の原因物質になると考えられている。我々は前回、脂質平面膜固定化 LSPR センサによる  $\alpha$ Syn 検出とそのセンサ性能向上のため、LSPR 基板表面のナノ構造の大きさ、形状による検出能力の差異を評価、より微細なナノ構造を使用することが高感度化につながると考え、今後のセンサ作製の方針とした[1,2]。Au ナノ粒子の大きさ、形状は、屈折率感度を大きく変動させる [3]。そこで本研究では、ナノ構造のサイズ/間隔を、以前使用していた 500 nm よりもさらに微細な 200 nm, 150 nm, 100 nm を使用し、 $\alpha$ Syn の測定とそれぞれの検出能力評価を行った。

【実験内容・結果】 Au ナノ構造は Si ナノロッドモールド(Fig. 1: 150 nm/150 nm)を用いたナノインプリント法により COP フィルムに微細構造を転写した後、Au 極薄膜をロッド表面に製膜して Au ナノ構造を作製した。AFM により所望のナノ構造が形成されていることを確認した(Fig. 2)。 $\alpha$ Syn 4.7 nM 検体の LSPR 測定を行った結果、検体添加前後で波長シフト約 24 nm を確認した。本測光系の波長分解能 0.4 nm であることから 78 pM の検出能力を確認した (Fig. 3)。その要因としてナノ構造形状に伴う屈折率感度や  $\alpha$ Syn の吸着面積等が考えられ、従前の 500 nm/500 nm 構造から約 4 倍の検出能力の向上が確認された。

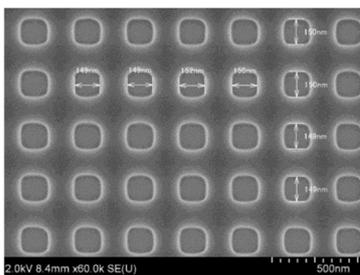


Fig. 1: SEM surface image of Si nano mold structure (size/space=150 nm/150 nm)

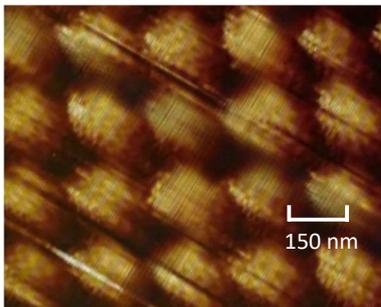


Fig. 2: AFM surface image of Au nanostructured substrate (size/space=150 nm/150 nm)

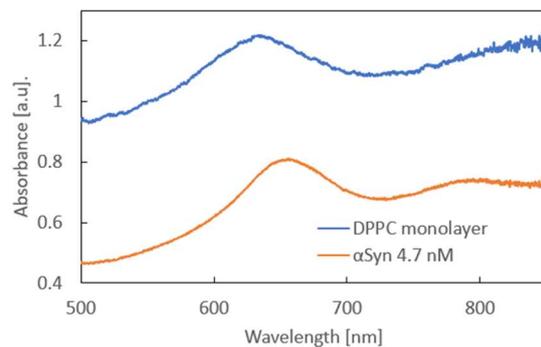


Fig. 3: LSPR absorbance spectra with DPPC monolayer before and after the addition of 4.7 nM  $\alpha$ Syn fibrils

#### 【参考文献】

- [1] Y.Kimura, K. Kamitani, C. F. Werner, M. Takeda, M. Fukuzawa, M. Noda, "A Study on Nanostructured Substrates of a LSPR Biosensor for Sensitive Detection of  $\alpha$ -Synuclein Amyloid Proteins," 2023 IEEE Sensors, 28. Nov. 2023, DOI: <https://doi.org/10.1109/SENSORS56945.2023.10324968>
- [2] 木村 2023 応用物理学会 学秋季講演会 講演番号: 21p-D902-3
- [3] M. Hamamoto, H. Yagyu, "Particle size distribution and Au concentration dependence of the refractive-index sensitivity of LSPR sensors based on gold nanoparticles," *Journal of Nanoparticle Research*, vol. 25, article no. 158, 19. July. 2023, DOI: 10.1007/s11051-023-05802-6

本研究の一部は科研 19K22964, 20H00663, AMED JP23ym0126808 の助成を受けて行われた。

## 絶縁コートによる集積化 G-FET のドリフト安定化

### Drift Stabilization of Integrated G-FETs by Insulation Coating

阪大産研<sup>1</sup>、村田製作所<sup>2</sup>、京都府立医<sup>3</sup>

○山本佳織<sup>1</sup>、佐藤夏岐<sup>1</sup>、矢野真美子<sup>1</sup>、坂野喜代治<sup>1</sup>、大西映里子<sup>1</sup>、牛場翔太<sup>2</sup>、  
谷晋輔<sup>2</sup>、木村雅彦<sup>2</sup>、渡邊洋平<sup>3</sup>、田中秀和<sup>1</sup>、松本和彦<sup>1</sup>

SANKEN, Osaka Univ.<sup>1</sup>, Murata Mfg.<sup>2</sup>, KPUM<sup>3</sup>

○K. Yamamoto<sup>1</sup>, S. Ushiba<sup>2</sup>, N. Sato<sup>1</sup>, M. Yano<sup>1</sup>, K. Sakano<sup>1</sup>, E. Ohnishi,  
S. Tani<sup>2</sup>, M. Kimura<sup>2</sup>, Y. Watanabe<sup>3</sup>, H. Tanaka<sup>1</sup>, and K. Matsumoto<sup>1</sup>

E-mail: k-yamamoto@sanken.osaka-u.ac.jp

グラフェン FET (GFET) は移動度が高いため高感度であり、水中でも安定であるためバイオセンサーとして応用されている。我々は以前より電荷を持つ物質である DNA やインフルエンザウイルス、新型コロナウイルスをターゲットとした高速・高感度検出について研究開発を行っている。測定機構としては、ソース/ドレイン電極上に GFET を作製し、電解液を介して参照電極からトップゲート電圧を印加することで伝達特性を得る。GFET 表面にターゲットが近付くことで GFET 内にホール/電子が誘起され、伝達特性がゲート電圧に対して正方向もしくは負方向にシフトする。GFET はバイオセンサーとして有用であるが、測定中に伝達特性が徐々に移動してしまうドリフトと言う現象が発生する。このドリフトの原因は未だ解明されていない。正しい伝達特性を得るためにドリフトが収まるまで測定を続ける必要があり、高速検出のためにはこの問題を解決する必要があった。

今回は参照電極とドレイン電極間に流れるリーク電流に着目した。詳細な原因は不明であるが、ソース/ドレイン電極を絶縁コートすることによりリーク電流が減少したためにドリフトが大幅に減少した結果を得られた (Fig. 1)。また、S/N 比向上のため定電圧測定を行うことを目標としている。このためには、伝達特性の形状が測定を通して一定であり、かつ左右方向にしかシフトしないということが前提である。絶縁コートを行わないデバイスでは、ターゲットを GFET 上に導入した前後で伝達特性が上下方向に動いてしまうという課題があった。しかし、絶縁コートを行うことでターゲットを導入した前後でも上下方向のシフトはみられなくなった (Fig. 2)。以上の結果より、絶縁コートが GFET に及ぼす影響を考察する。

【謝辞】本研究は JST 未来社会創造事業本格研究の支援を受けた。

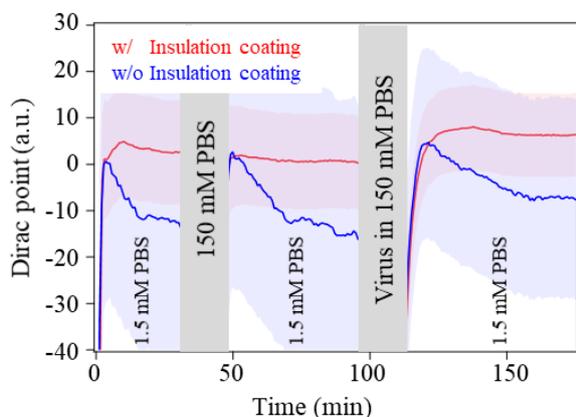


Fig. 1 Comparison of drift with and without insulation coating.

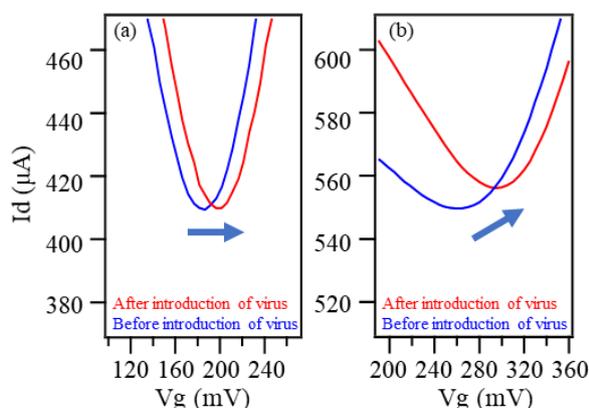


Fig. 2 Transfer Characteristics before and after introduction of virus. (a) With insulation coating (b) Without insulation coating

# 多孔質チャネルを有する有機電気化学トランジスタの過酸化水素応答性

## Hydrogen peroxide responsivity of organic electrochemical transistor with porous channel

東大院工, °(D)伊藤 健介, 坂田 利弥

The Univ. of Tokyo, °Kensuke Ito, Toshiya Sakata

E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

### 1. 緒言

再生医療や細胞工学の発展とともに、薬剤スクリーニングに用いる評価系は、平面培養された単一細胞から、より生体に近い挙動を示す3D培養されたスフェロイド、さらにはマイクロ流路とオルガノイドを組み合わせ、動的な血流や組織間相互作用を模した系(Organ-On-a-Chip)へと発展している[1]。しかしながら、その観察手法は、光学顕微鏡や共焦点顕微鏡による表面近傍の静的な観察に留まっており、より詳細な薬物動態の解析には、3D培養された細胞内部を動的に観察・計測可能な手法が必要であると考えられる。

我々の研究グループでは、生体適合性を有し柔軟性の高い導電性高分子ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン):ポリ(4-スチレンスルホン酸)(PEDOT:PSS)をチャネルとした有機電気化学トランジスタ(OECT)について、そのチャネルの高機能化によるバイオセンシング応用の可能性を検討しており、特にPEDOT:PSSにフェニルボロン酸を含む相互侵入高分子網目を導入したダブルネットワークハイドロゲルをチャネルにすることで、フェニルボロン酸とのジオール結合を利用してグルコースの検出に成功している[2]。

本研究では、PEDOT:PSSチャネルを多孔質構造にして、チャネル内に細胞培養の足場材としての機能を付与することで、3D培養されたオルガノイド内部の分子濃度変化をモニタリングできると考え、特に本発表では、酵素による特異的な分子認識に向けた基礎評価として、過酸化水素応答性を調査した。

### 2. 実験方法

PEDOT:PSS (0.1 wt%)と架橋剤3-グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン(GOPS, 0.3 wt%)の混合液を、チャネルとなるドレイン-ソースAu電極間に滴下、-80 °Cにて30分間凍結後、凍結乾燥した。得られた多孔質チャネルOECTの過酸化水素応答性を半導体パラメータアナライザにて測定した(Fig.1)。

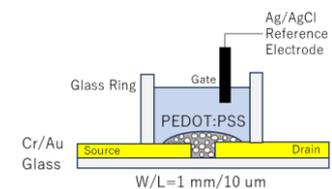


Fig.1 Structure of porous channel OECT

### 3. 結果

作製した多孔質チャネルOECTにおいて、過酸化水素濃度の上昇に伴い、ドレイン電流の減少率が増大していくことがわかった(Fig.2)。これは、過酸化水素によってチャネル中の酸化型PEDOTが還元されたためと考えられる。当日は、これら多孔質チャネルOECTの酸化還元反応による応答について議論する予定である。

### 参考文献

- [1] A. Skardal et al., *Drug Discovery Today*, 21, (2016), 1399-1411.
- [2] A. C. Tseng, T. Sakata, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 14, (2022), 24729–24740.

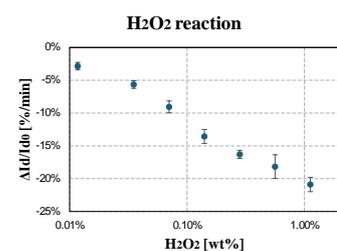


Fig.2 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> sensitivity of porous channel OECT

## 比色型プラズモニックバイオセンサによる炎症マーカーCRPの検出

### Colorimetric plasmonic biosensor for the detection of inflammation marker CRP

東工大<sup>1</sup>, <sup>○</sup>(M2)三木 啓夢<sup>1</sup>, 當麻 真奈<sup>1</sup>

Tokyo Tech.<sup>1</sup>, <sup>○</sup>Hiromu Miki<sup>1</sup>, Mana Toma<sup>1</sup>

E-mail: toma@ee.e.titech.ac.jp

炎症性疾患の診断と治療のためには、簡易かつ高感度なC反応性蛋白(CRP)の迅速検出が求められている。これまでに我々は、金属ナノ構造配列によるプラズモニック色を用いて生体分子を検出する比色型プラズモニックバイオセンサの開発を行ってきた[1-2]。この検出法ではカラーカメラによる測定が可能のため、装置の小型化と自宅や診療所での使用が期待される。本研究では、炎症性疾患の重症度の検査に用いられるCRPの直接検出を目的とし、バッファーおよび夾雑物を含む試料中におけるCRPの検出性能の評価を行った。

本研究に用いた比色型プラズモニックバイオセンサの概要を Fig.1(a)に示す。センサ基板には、ガラス基板に界面転写法で転写したポリスチレン粒子膜(粒径 250 nm)に、銀 50 nm、金 5 nm を蒸着した銀ナノドーム構造を用いた。センサ基板は、ポリドーパミン薄膜で化学修飾した後に、抗CRP抗体(cAb)を固定化し、ウシ血清アルブミンでブロッキングをして用いた。CRPの検出は、PBSTと夾雑物としてウシ胎児血清(FBS) 10%を含むPBSTをバッファーとし、CRPを含む試料を20分間流した後、リンスをして測定した。センサ信号は反射スペクトルの測定と反射像の撮影が可能な光学系を用いて測定し、基板の色変化はRGB値から求めた色相角度の変化量 $\Delta H$ で評価した。

Fig.1(b)に3 nMのCRPを注入時の反射スペクトルのディップ波長の経時変化と、前後のセンサ基板の画像を示す。CRPの結合によって画像の色相角度は-0.66度、反射スペクトルのディップ波長は0.89nm変化し、CRPを直接検出できることが分かった。発表ではCRPの検出限界濃度およびFBSを含む試料の測定結果についても報告する。

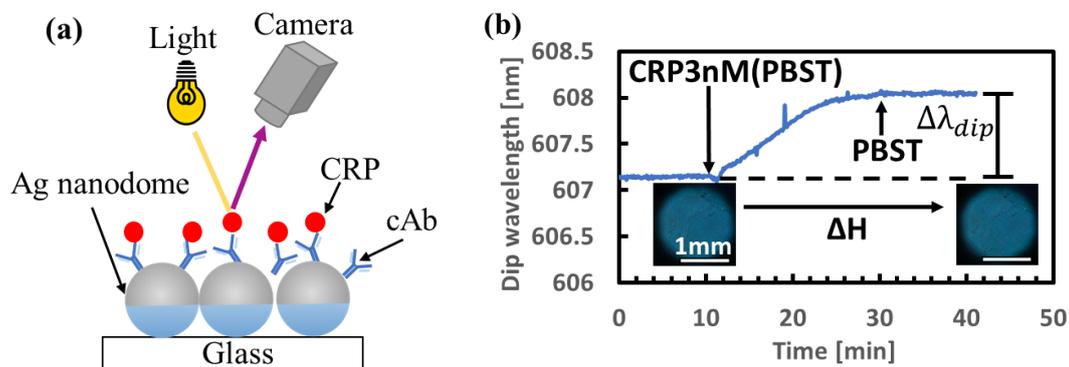


Fig.1 (a) Schematic drawing of the sensor surface. (b) The reflection images taken before and after the injection of CRP (3 nM) and the corresponding kinetics measurement.

[1] M. Toma, Y. Itakura, S. Namihara, K. Kajikawa, *Advanced Engineering Materials* **25**, 2200912 (2023).

[2] M.Toma, S.Namihara, K.Kajikawa, *Analytical Method* **15**, 2755-2760 (2023).

## バイポーラ現象に基づく 非ファラディックインピーダンス免疫センサの開発

### Development of Non-Faradic Impedance Immunosensor Based on Bipolar Phenomenon

長岡技科大院工, ○(DC) 榎木 有理沙, 高橋 青, 近藤 みずき, 桑原 敬司

Nagaoka Univ. Tech., ○Arisa Tochigi, Joh Takahashi, Mizuki Kondo, Takashi Kuwahara

E-mail: kuwataka@vos.nagaokaut.ac.jp

**【緒言】** バイポーラ現象とは、電解質溶液中の導体に電界を印加すると、導体（バイポーラ電極、BPE）が分極する現象である。電界を印加する2本の駆動電極（DE）間の電流変化を測定することで、BPE表面のインピーダンス変化を非接触に取得可能となる。本研究ではバイポーラ現象を非ファラディック型インピーダンス測定に応用し、迅速かつ高感度な検出が可能なワイヤレス免疫センサの開発を目指している。我々はこれまでに非ファラディックインピーダンス測定によるBPE上のタンパク質分子の検出を報告した[1]。今回は、抗原抗体反応によりBPE表面に固定化したC反応性タンパク質（CRP）の検出を通じて本センシング法の有効性を検証した。

**【実験】** BPEの修飾は次の手順で行った。まず、金電極（10 mm×10 mm）の表面を3-メルカプトプロピオン酸単分子膜で修飾し、続いてEDC/NHS溶液に浸漬すること末端のカルボキシ基を活性化した。この電極を抗体溶液に浸漬し、共有結合により抗体を固定化した。ブロッキング処理を行った後、CRP溶液に浸漬し、抗原抗体反応によりCRPを固定化した。このとき、固定化液のCRP濃度を0~10 µg/mLの間で変化させた。CRP固定化BPEを100 mMリン酸緩衝液（pH 7.0）中に浸し、BPEの直上に電気化学装置と接続したDEを配置した（Fig. 1A）。振幅0.1 V、DCバイアス0 V、周波数範囲8 MHz~1 Hzとして電気化学インピーダンス測定を行った。

**【結果・考察】** 周波数 $10^4$  Hz以上の高周波領域において、固定化液のCRP濃度の増加とともにCRP固定化BPEのインピーダンスは増加した（Fig. 1B）。周波数 $10^5$  Hzにおけるインピーダンス変化率は、CRP濃度が10 µg/mLのとき最大5.6%を示した（Fig. 1C）。このインピーダンス変化は、CRPの結合により、BPE表面に形成された電気二重層の状態が変化したことと起因すると考えられる。以上の結果から、本研究で構築したセンサを用いて、抗原抗体反応によりBPE上に固定化したCRPの定量が可能であることが示された。講演では、本センサの詳細な構成や周波数特性、測定条件（溶液組成、電極間距離など）の影響について議論する。

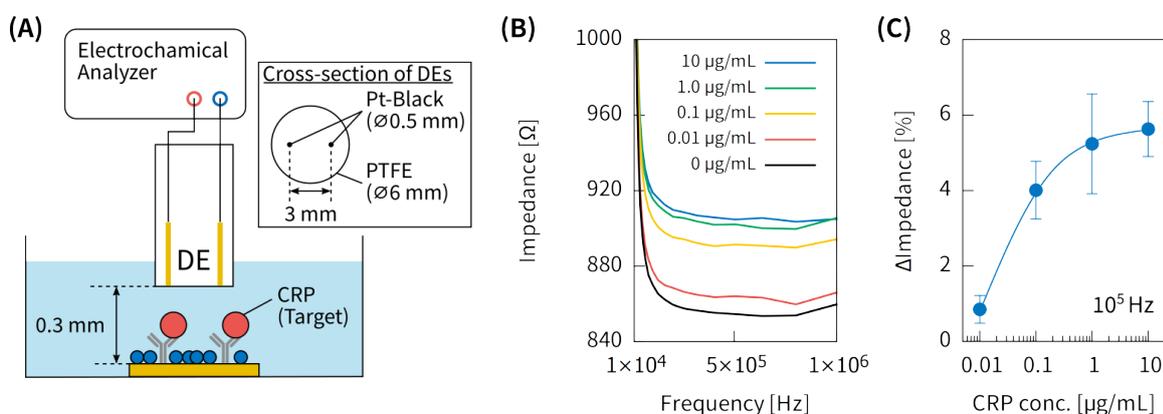


Fig. 1 Schematic illustration of measurement setup based on bipolar phenomenon (A). Influence of CRP concentration on impedance of the biosensing system (B), impedance change rate at  $10^5$  Hz of B (C).

**【謝辞】** 本研究は JSPS 科研費 23KJ1019 の助成を受けて行われたものです。

**【参考文献】** [1] A. Tochigi, et al., *J. Technology and Education*, **29**, 23-27 (2022).

# イオンイメージセンサによる植物体内イオン長期モニタリングの検証

## Validation of Long-Term Monitoring of Ions in Plants Using Ion Image Sensors

豊橋技術科学大学, ○松下優介, 吉田 太一, 坂口直己,

高山 弘太郎, 崔 容俊, 高橋 一浩, 澤田 和明, 野田 俊彦

Toyohashi Univ. of Tech., ○Y. Matsushita, T. Yoshida, N. Sakaguchi

K. Takayama, Y.-J. Choi, K. Takahashi, K. Sawada, T. Noda

E-mail: [matsushita.yusuke.tc@tut.jp](mailto:matsushita.yusuke.tc@tut.jp)

我々の研究グループでは、これまでに植物体内のイオンをリアルタイムで可視化する刺入型のイオンイメージセンサを開発し、トマトの茎内の  $H^+$  分布の可視化に成功している[1]。また、センサ動作時に必要な参照電極を改良するなど、測定系の見直し・再構築を行うことで、より長期的な植物体内計測の可能性を示した[2]。本研究では、この測定系を活用し、30日間の栽培中植物に対する環境変化に伴うセンサ(pH)応答の関連性および長期使用によるセンサの耐久性・植物への影響など実用性について実証実験を基に考察した。

本研究では、画素ピッチ  $23.55 \mu\text{m}$ 、 $32 \times 128$  の画素をアレイ化した刺入型  $H^+$  イオンイメージセンサを用いた。測定系を図1に示す。実栽培環境を模擬するため、被測定物にトマトの苗を使用し、光源装置を0~8時は消灯、8~24時は点灯とした。水耕栽培用の酸性・アルカリ性 pH 調整剤を用いて灌水を行い pH 変化を誘導した。30日間の連続計測の結果を図2に示す。矢印で灌水のタイミングを示しており、灌水液の違いによって異なるセンサの電位応答が確認できる。また、光源装置の点灯、消灯のタイミングでも電位の変動量に差が生じていることが読み取れる。最後に、測定前後のセンサの pH 感度を評価した結果(図3)、測定前後で 8.4% の感度低下は見られたが、動作不良もなくセンサの長期使用が可能であることを実証した。これより、長期栽培下でセンサ出力から体内状態を可視化することで、迅速な栽培条件へのフィードバックが期待される。

謝辞：本研究の一部は 文科省 X-NICS JPJ011438, JST-OPERA JPMJOP1834, および JSPS 科研費 21H01390, 22K19177, 24K00944 の支援により遂行された。

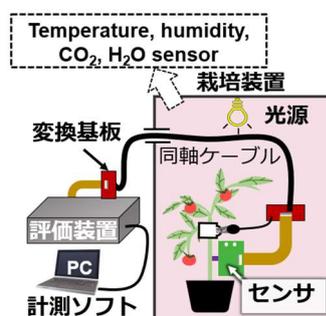


Fig.1 Measurement system

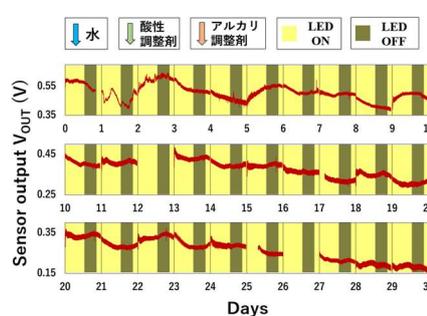


Fig.2 Continuous measurement data

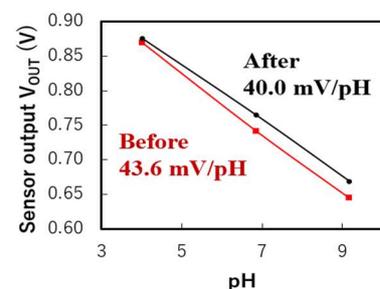


Fig.3 pH sensitivity

[1] K. Sembo et al., Transducers 2021, 20-24 June 2021, B3-3C3.

[2] 吉田 他, 第 83 回 応用物理学会秋季学術講演会, 2022, 23p-A105-1

## 血流感染症向け迅速遺伝子検出技術の開発

### Development of Gene-Based Rapid Test for Bloodstream Infection

清水沙彩<sup>1</sup>, 柳川善光<sup>1</sup>, 坂井友幸<sup>1</sup>

Hitachi, Ltd.<sup>1</sup> E-mail: saaya.shimizu.un@hitachi.com

薬剤耐性菌による死者数は、2050年には世界で1,000万人/年に達すると推定され、世界的な問題となっている[1]。薬剤耐性菌蔓延の原因の一つは広域抗菌薬の多用である。血流感染症は血液中に細菌が侵入する重篤な感染症であり、発症から1時間以内の投薬が必要である。従来の細菌培養ベースの検査には2~3日を要するため、治療初期は経験に基づき広域抗菌薬を使わざるを得ない。血流感染症の細菌検査を1時間まで短縮できれば、広域抗菌薬の使用を低減できる。

我々は、Fig. 1に示す4段階からなる遺伝子ベースの迅速検査手法を考案した。実用化に向けて本手法をマイクロ流体デバイスに統合し、“sample-to-answer”なシステムとすることをめざしている。検査フローのうちDNA検出について、前段の反応効率・反応時間を想定し、 $10^{10}$ コピーの標的DNAの5分以内の検出を目標としている。前報の原理検証では複数種のDNA検出用ビーズをマイクロ流路に充填したデバイス(ビーズアレイ[2])を用い、反応時間3分で標的DNAを検出できることを示した[3]。一方、ビーズアレイを用いたDNA検出ではビーズ表面への標的DNAの非特異吸着が無視できず、検出感度が低下する恐れがあることが分かった。そこでビーズアレイに替わる迅速DNA検出手法として「流路型マイクロアレイ[4]」に着目した。流路型マイクロアレイはプローブをマイクロ流路底面に直接固定したデバイスであり、標的DNAの非特異吸着が低減すると期待される。また標的DNAは流路への送液による対流拡散によってプローブに到達するため、平面上と比べて結合反応が迅速に進行する。本発表では、マイクロ流体デバイスへの統合を指向し、流路型マイクロアレイの作製手法とDNA検出性能を検討した結果を報告する。

マイクロ流体デバイスの材質は、コストや加工性を考慮し樹脂を想定している。一方マイクロアレイは通常ガラス基板上で行われ、樹脂へのプローブ固定は一般的でない。そこでまず樹脂へのプローブ固定手法を比較検討し、コストや固定均一性に優れるUVリンキング法を採用した。固定反応時のDNA損傷とプローブ固定率の相反関係を明らかにし、信号を最大化する固定反応条件を見出した。本手法を流路型マイクロアレイの作製に適用し、DNA検出を検討した。その結果、非特異吸着は従来法のビーズアレイで $S/B=1.65$ であったのに対し、本手法では $S/B=1.04$ まで低減した。また $10^{10}$ コピーの標的DNAの検出を目標時間内の3分で達成した(Fig.2)。

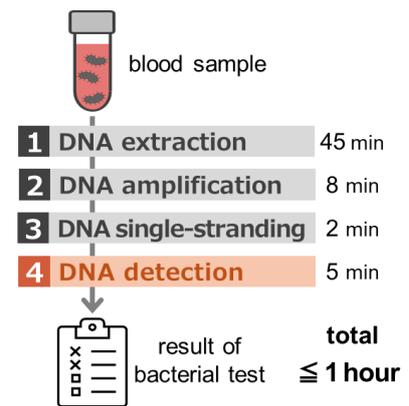


Fig. 1 Gene-based rapid test for bloodstream infection

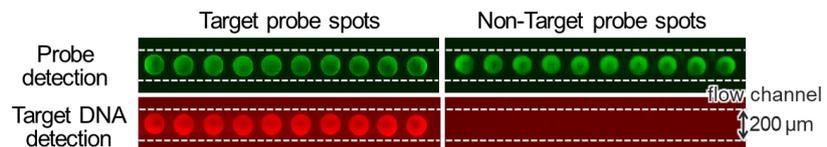


Fig. 2 Result of target DNA detection with microfluidic microarray

[1] JIMO' NEILL et al., Tackling Drug-resistant Infections Globally (2016)

[2] Y. Kohara, Anal. Chem., 75, 3079-308 (2003)

[3] 清水沙彩, 柳川善光, 今井亮, 坂井友幸「血流感染症向け迅速遺伝子検出デバイスの開発」

第84回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-P10-6 (2023)

[4] Lin Wang et al., Anal. Chem. Acta, 687, 1, 12-27 (2011)

# CIGS 太陽電池による多点マイクロ LED プロブの駆動

## Driving multi-point micro-LED probes using CIGS solar cells

豊技大<sup>1</sup>, 産総研<sup>2</sup>, ALLOS<sup>3</sup>

°大屋翔<sup>1</sup>, 西永慈郎<sup>2</sup>, 西川敦<sup>3</sup>, A. Loesing<sup>3</sup>, 関口寛人<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Toyohashi Tech, <sup>2</sup>AIST, <sup>3</sup>ALLOS

°K. Oya<sup>1</sup>, J. Nishinaga<sup>2</sup>, A. Nishikawa<sup>3</sup>, A. Loesing<sup>3</sup>, H. Sekiguchi<sup>1</sup>

E-mail: oya.kakeru.zy@tut.jp, sekiguchi@ee.tut.ac.jp

脳機能解明には神経細胞の活動と実験動物の行動における因果関係を理解することが重要である。複数の LED が集積された神経プローブを用いた光遺伝学的手法によって特定の神経細胞を空間的に選択された光で制御することで、より複雑な神経活動の調査の貢献が期待されている。一般的に光刺激ツールは細胞へ光を供給するために有線接続が必要不可欠である。しかし、ケーブルによって実験動物の自由行動や実験系のデザインに制限が生まれる。そこで赤外線(IR)を用いた光刺激/制御可能な無線デバイスとして、光電気変換素子の Cu(In,Ga)Se<sub>2</sub>(CIGS)太陽電池と LED プロブの一体化を提案する。CIGS 太陽電池は化合物薄膜太陽電池の一種であり、光吸収係数や変換効率が非常に高く、シリコン太陽電池と比較して直列接続が容易なため小面積で高い電圧を出力することが可能である。本研究では、LED プロブと小面積 CIGS 太陽電池をそれぞれ作製・接続し、赤外線給電により多点マイクロ LED プロブの駆動を検討したので報告する。

まず発光波長 460 nm の InGaN 系 LED ウェハを加工することで、針型構造をもつ 50 μm 角のマイクロ LED を 6 個集積した LED プロブを作製した。プローブは針幅、厚さ、長さはそれぞれ 280 μm, 300 μm, 6 mm とした。Fig.1 に作製した LED プロブの発光写真および電流-光出力-電圧特性を示す。立ち上がり電圧が約 2.8 V の整流特性が得られ、青色の発光が観察された。電流値 400 μA で光遺伝学に要求される 10 mW/mm<sup>2</sup> の光出力が得られることを確かめた。

次に、Mo/SLG 基板上へ三段階法により CIGS 光吸収層を形成し、MgF<sub>2</sub>/Al-doped ZnO/i-ZnO/CdS を堆積させ、CIGS 太陽電池を作製した。作製した CIGS 太陽電池の断面図を Fig.2(a) に示す。LED 駆動に必要な電圧を確保するために幅 1 mm のセルを 8 個直列接続するように設計した。Fig.2(b) に波長 940 nm の IR 照射により測定された幅 12 mm, 長さ 10 mm の CIGS 太陽電池の電流-電圧特性を示す。照射強度 45 mW/cm<sup>2</sup> において短絡電流 2.4 mA, 開放電圧 5.7 V の特性が得られ、LED 駆動に十分な特性であることが確認された。

最後に、LED プロブと CIGS 太陽電池を電気的に接続し、赤外線給電によるマイクロ LED の駆動特性を評価した。動物実験に向けてデバイスの小型化が重要となるため、面積の異なる 2 つの CIGS 太陽電池(5×12 mm<sup>2</sup>, 10×12 mm<sup>2</sup>)を用意した。Fig.3(b) に IR 照射強度と LED の光出力の関係を示す。IR 照射強度の増加に伴う LED 光出力の増加が確認され、いずれのサイズの CIGS 太陽電池でも光遺伝学的手法で要求される LED 光出力 10 mW/mm<sup>2</sup> を達成した。今後、本デバイスを用いた動物実験を実施し、生体応用の可能性について調査する予定である。

謝辞: 本研究の一部は、科研費(B)(23H01465), キヤノン財団, 大幸財団, 光科学技術研究振興財団, UBE 学術振興財団, および、旭硝子財団の援助を受けて行われた。

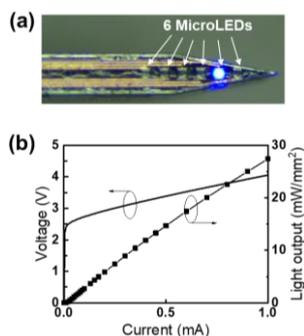


Fig.1 Fabricated MicroLED probe (a) Emission image (b) I-L-V characteristics of MicroLED.

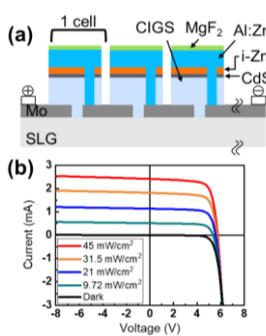


Fig.2 Fabricated 8-cell CIGS solar cell (a) Cross-section image (b) I-V characteristics.

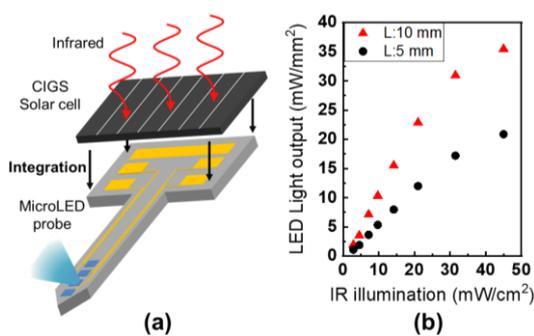


Fig.3 (a) Concept of hybrid integration of MicroLED probe and CIGS solar cells. (b) IR illumination and LED light output to CIGS solar cells of length 5, 10 mm.

## CMOS においセンサの計測対象拡大を目指した 容量検出画素の設計と作製

Design and Fabrication of Capacitance Detection Pixel to expand measurement target of CMOS  
odor sensors

豊橋技術科学大学 ○上條 友暉, 木村 安行, 野田 佳子, 赤井 大輔,  
飛沢 健, 崔 容俊, 高橋 一浩, 澤田 和明, 野田 俊彦

Toyohashi University of Tech., °T. Kamijo, Y. Kimura, Y. Noda, D. Akai,

T. Hizawa, Y-J. Choi<sup>1</sup>, K. Takahashi, K. Sawada, T. Noda

E-mail: kamijo.tomoki.lj@tut.jp

におい から得られる情報を産業や医療に応用するため, 生体機能を模擬したセンサシステムが研究開発されている. 我々の研究グループでは, 電位センサアレイ上に複数のにおい 感応膜を塗分けた, CMOS 電位検出型においセンサの提案を行っており, これまでに複数ガスの判別を達成している<sup>[1]</sup>. しかし, 感応膜のにおい 応答は電位のみに限らず, 抵抗や容量などが複合的に変化することが分かっており, これまでに抵抗変化の検出を行う画素の作製に成功してきた<sup>[2]</sup>. そこで本研究では, おい感応膜の容量変化を検出する画素を導入することで計測可能なパラメータを増やし, 新たな感応膜を利用可能とすることで, ガスやにおいの計測対象の拡大を目指した.

容量検出画素は電位や抵抗を検出する画素と同一のアレイに集積することで, 複合的に変化する感応膜応答を一括計測することを目指しており, 共通の配線や出力回路となるよう設計を行う必要がある. そこで画素回路は, 感応膜容量と出力回路容量による分圧を検出する構成とし (Fig. 1), 電位や抵抗の検出を行う画素と混載した 32×32 画素アレイの作製を行った(Fig. 2).

容量検出画素の回路特性を評価するために特性検証用画素を用いて, 容量変化に対する出力変化の評価を行った(Fig. 3). 特性検証用画素では感応膜容量の代わりに, 可変可能な MOS 容量を接続しており, MOS 容量に応じて出力電圧が変化することを確認した. 提案画素の正常動作が確認できたことから感応膜の容量変化も測定可能であることが示唆され, 多角的な情報の取得につながることで, おい判別や, 強度定量の性能向上が期待できる.

謝辞: 本研究の一部は, 文科省 X-NICS JPJ011438, JST OPERA JPMJOP1834 及び JSPS 科研費 21K18718 の支援により遂行されました.

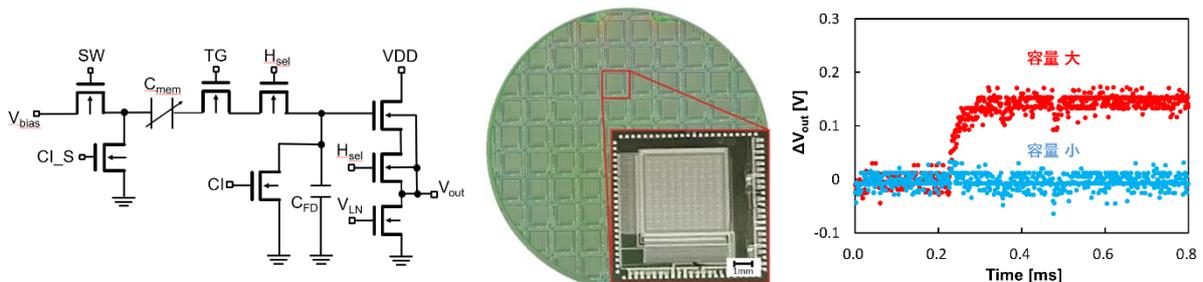


Fig.1. Capacitance Detection Pixel. Fig.2. Fabricated microchip. Fig.3 Capacitance change measurement.

[1] R. Wada, et al, IEEE SENSORS 2021, B1L-02, 2021

[2] 上條//野田 他, 複数種の画素を混載した画像出力型 CMOS においセンサの設計と製作, 18p-E102-12, 2023 年春季

## IoT 端末上のイオンゲルセンサによるアセトン・アンモニアセンシング

## Acetone and Ammonia Sensing by Ionic Gel Sensor on IoT Edge Node

慶大理工, °秦佳浩, 馬島翔, 椎木陽介, 石黒仁揮, 田中貴久

Keio Univ., °Jiahao Qin, Sho Majima, Yosuke Shiiki, Hiroki Ishikuro, Takahisa Tanaka

E-mail: yoshi2901082@keio.jp

ヒトが疾病を罹患することで、呼気に含まれるガスの種類や濃度が変化する。ただし、呼気中には数 100 種のガス分子が含まれており[1]、疾病のバイオマーカーとなるガスを検出するためには混合ガス中でのセンシングが必要である。容易に携帯可能な端末上でのセンシングが可能になれば、医療機関外でのユビキタスなヘルスケア実現につながると期待される。本研究では、複数電極とイオン液体からなる集積化ガスセンサを作製し、IoT 端末上に搭載することによって Bluetooth を使用したセンシングデータ伝送を行い、アセトン・アンモニアガスの検出を実施した。

本研究で採用した構造は、シリコン基板上に Cu、Ag、Pd、Cr、Pt、Au からなる 6 種の金属電極を抵抗加熱蒸着および RF スパッタにより成膜し、電極間をイオン液体[EMIM][BF<sub>4</sub>]と PVDF-HFP からなるイオンゲルで架橋した。センサ電極と IoT 端末ボード間をワイヤボンディングし、ボードで AD 変換したデータをワイヤレスに伝送するシステムを構築した (Fig.1(a))。ガスセンシングではイオン液体に吸蔵されたガス分子がイオン液体/電極界面に与える電位差の変化を測定した。アンモニア 15 ppm およびアセトン 40 ppm を含む乾燥空気を 500 sccm で曝露しながら、6 種類の電極のうち 2 種類の電極の組み合わせを変更しつつ電位差を計測し、アンモニア及びアセトンに対して異なる電極がそれぞれ異なる応答を発現することを確認した。(Figs.1(b),(c))。ベンチトップ計測器とイオン液体からなる集積化ガスセンサを用いた水素・アンモニア・エタノール混合ガスの機械学習による識別は報告されているので[2]、混合ガスの組成複雑化や IoT 端末上でのガス識別についても当日議論する。

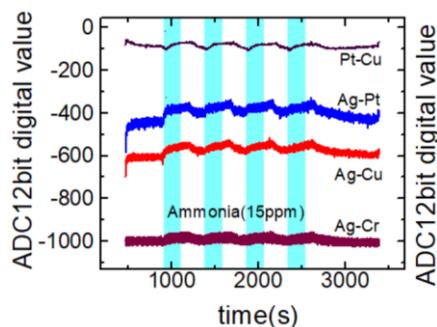
【謝辞】本研究は JST-PRESTO(JPMJPR20B5)、科研費(24K07527)の助成を受けて実施された。

[1] S. S. Shetty *et al.*, *Materials Today: Proceedings* **55**, 122 (2022). [2] T. Tanaka *et al.*, *ACS Sensors* **7**, 716 (2022).

(a)



(b)



(c)

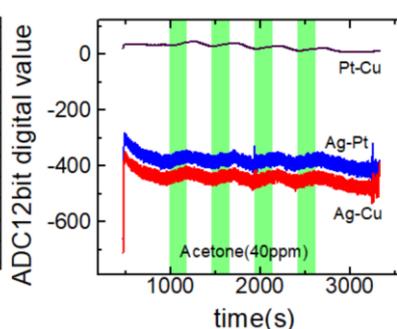


Fig.1(a) Photograph of the gas sensor on the IoT edge node. (b) Sensing result of NH<sub>3</sub>. (c) Sensing result of Acetone.

# イオン液体のインピーダンスを用いた高選択的ガスセンシング

## Selective Gas Sensing by Ionic Liquid Impedance

慶大理工 °(B) 鍾 柯, 田中 貴久

Keio Univ., °Ke Zhong, Takahisa Tanaka

E-mail: augustsho@keio.jp

人間の呼気には 100 種類以上のガスが含まれており [1]、それらの成分の濃度変化を検出することで、病気の予兆検出が期待されている。しかし単一のガスセンサでは混合ガス中の成分を同時に検出することは困難である。本研究では、櫛歯電極上のイオン液体に着目し、様々な周波数におけるインピーダンスの変化によるアセトン/アンモニアの高選択的ガスセンシングを試みた。

本研究では、Cr/Au からなる櫛歯電極間にイオン液体[EMIM][Cl]を滴下した構造をガスセンサとして用いた (Fig. 1(a))。電極構造は、マスクレス露光装置を用いたフォトリソグラフィによるパターン形成、抵抗加熱による Cr を密着層として用いた Cr/Au 電極蒸着とリフトオフにより作製した。ガスセンシングでは、イオン液体に吸蔵されたガス分子がイオン液体/電極界面に到達した際に生じるインピーダンス変化を LCR メータで計測した。ppm オーダーのアンモニアまたはアセトンを含む乾燥空気をそれぞれ 500 sccm でセンサに曝露し、様々な測定周波数でインピーダンス変化の時系列データを計測した。

本研究では、RC 直列接続の等価回路を仮定して求めた抵抗成分の変化をセンサ応答とした (Fig. 1(b))。測定周波数 100Hz において抵抗がアンモニア曝露時に減少したが、アセトン曝露時は抵抗がほぼ変化しなかった。このことから、100Hz における抵抗の変化に注目することでアセトン存在時にアンモニアを選択的に検出できるということが明らかになった。

本構造ではガスによって抵抗成分の増減が逆転する周波数が異なる。また、容量成分も異なる応答を示す。アンモニア・アセトン以外のガスにおける選択的検出や容量成分の活用については当日議論する。

【謝辞】本研究は JST-PRESTO(JPMJPR20B5)、科研費(24K07527)の助成を受けて実施された。

[1] W. Filipiak *et al.*, *J. Breath Res.* **6**, 036008 (2012).

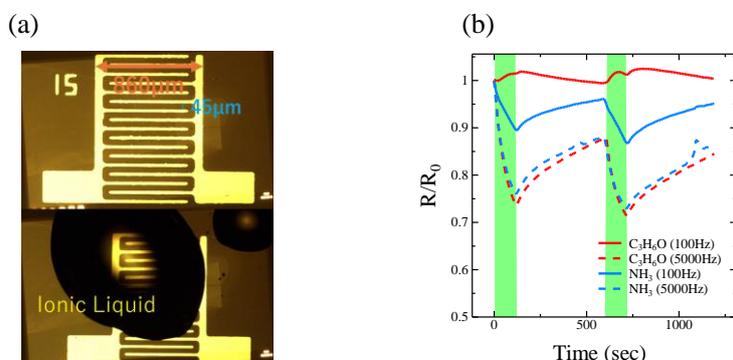


Fig.1 (a) Photograph of the gas sensor. (b) Comparison of  $R/R_0$  in different frequencies and gases. Initial resistance  $R_0$  is resistance  $R$  at 0 second. In the light green regions, the sensor was exposed to dry air containing 15 ppm of target gas.

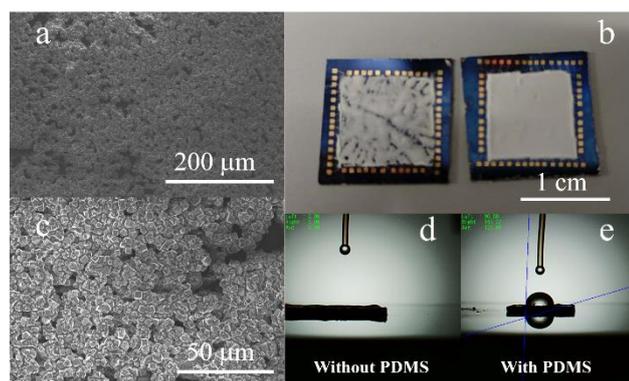
## Hydrophobic Filters Based on PDMS and Zeolite Hybrid Membrane for Pre-separation of Gas Detection

Univ. of Tokyo, Chuanlai Zang, Hiroyasu Yamahara, Hitoshi Tabata

E-mail: [zang@biooxide.t.u-tokyo.ac.jp](mailto:zang@biooxide.t.u-tokyo.ac.jp)

Semiconductor metal oxides are widely used in gas detection due to their sensitivity, but their performance is often hindered by issues of selectivity and humidity endurance. Metal oxide gas sensors detect gases through redox reactions between adsorbed oxygen ions and target gases on the oxide surface. This mechanism, however, generally lacks significant selectivity among different gases and is highly susceptible to humidity due to the hydrophilic nature of most oxide semiconductor surfaces. Adsorbed water molecules can occupy oxygen vacancies and form hydroxyl groups, reducing the number of active sites and thereby decreasing sensor performance. Two primary solutions have been proposed to address these challenges. The first involves doping the oxide semiconductors with high affinity for moisture like Rh, NiO, and CuO, which absorb moisture and prevent it from affecting sensor functionality. However this method usually has limitations. The second solution is to apply hydrophobic coatings to the sensors. Superhydrophobic polydimethylsiloxane (PDMS) coatings, applied via spin coating, significantly enhance the water resistance of the sensors. PDMS forms a protective layer that prevents humidity from impacting the sensor's performance.

In this study, the single nanowire gas sensor array was fabricated by electron beam lithography. Then, the PDMS and zeolites hybrid hydrophobic filter was spin-coating over the gas sensor array, as shown in Figure 1b. Due to their porous structure, the individual use of zeolites leads to easy adsorption of water vapor. On the other hand, PDMS coatings, while providing excellent moisture resistance, can impede the penetration of gases to the sensing material. Our experimental results indicate that mixed coatings of PDMS and zeolites effectively improve humidity resistance while allowing selective gas filtration through the zeolite pores. The PDMS layer also provides stability, enhancing the reliability of oxide gas sensors over prolonged use. The thickness effect of the hybrid membrane and pore size filter performance was studied quantitatively. The simple combination of PDMS and porous materials as a coating method can be broadly applied to oxide gas sensors to improve their humidity resistance.



**Figure 1.** (a) (c) SEM images of PDMS and zeolite hybrid membrane (b) Photo image of fabricated gas sensor array and hybrid membrane. Contact angle for membrane without PDMS (c) with PDMS (d).

**Reference:** Zhang L T, et al. *Angewandte Chemie*, 2021, 133(28): 15320-15340.

Rana S M S, et al. *Nano Energy*, 2022, 104: 107931.

**Acknowledgment:** This research was supported by Institute for AI and Beyond for the University of Tokyo, JST, CREST Grant Number JPMJCR22O2, Japan, AMED under Grant Number JP22zf0127006, JSPS KAKENHI Grant Number JP20H05651, JP22K18804, JP23H04099.

# 高感度ガスセンサに向けた ZnO/ZIF-8 ハイブリッド構造

## ZnO/ZIF-8 Hybrid Structure for Hight Sensitivity Gas Sensor

東大院工<sup>1, °</sup>(M2) 釜瀬聡<sup>1</sup>, Zang Chuanlai, Ramaraj Sankar Ganesh, 山原弘靖, 田畑仁

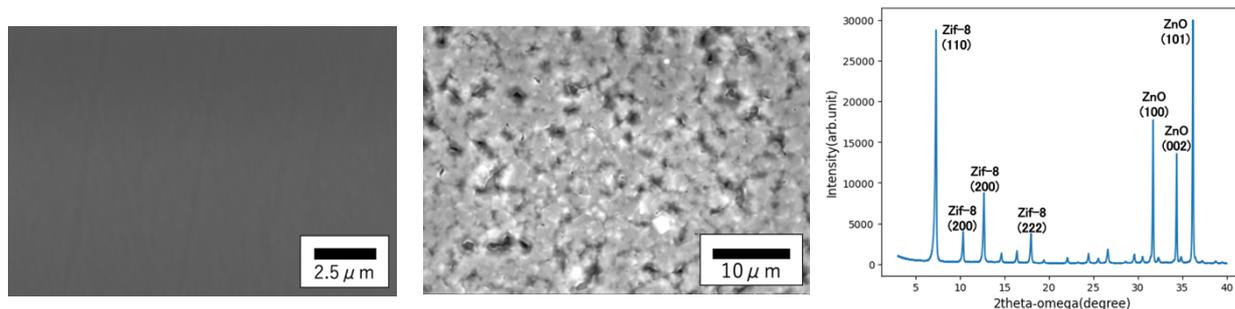
Univ. of Tokyo<sup>1, °</sup>, Akira Kamase<sup>1</sup>, Zang Chuanlai, Ramaraj Sankar Ganesh, Hiroyasu Yamahara,

Hitoshi Tabata

E-mail: kamase@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

人体からは様々な揮発性有機化合物(VOCs)が放出され、健康状態によってVOCs濃度が変化することが知られている。近年、呼気、皮膚ガス、血液、尿のVOCsによる病気診断・体調モニタリングに注目が集まっている。中でも皮膚ガスは採取が容易で、非侵襲的かつ能動的動作が不要であり、経時変化のモニタリングが行える利点がある。しかし、皮膚ガスは呼気ガスの1000分の1ほどの低濃度(ppbレベル)しかなく、皮膚ガスの計測には超高感度なガスセンサが不可欠である。酸化物半導体ナノ構造を用いた抵抗変化型ガスセンサの研究は高感度・小型化・低価格の観点から広く行われているが、近年、ゼオライトや金属有機構造体(MOF)の多孔質材料とのハイブリッド構造によるセンサ感度やガス選択性の改善が報告されている<sup>1</sup>。本研究では酸化物半導体ZnOナノ構造表面にzeolite imidazolate frameworks-8 (ZIF-8)を自己整合成長させたZnO/ZIF-8ハイブリッド構造ガスセンサを開発し、ZIF-8によるセンサ感度の向上を目的としている。

メタルマスクを用いたパルスレーザ堆積法(PLD法)によりSiO<sub>2</sub>(1μm)/Si基板上に100 μm幅・1 mm長のZnO薄膜マイクロ構造を作製した。その後、0.4 gのジメチルイミダゾールを溶解した12 mLのDMF/H<sub>2</sub>O混合液中で、80°C、1時間マイクロ波加熱することによりZnO薄膜のマイクロパターン上に結晶成長したZnO/ZIF-8を得た<sup>2</sup>。Figure 1の反応前後のSEM画像に示すように、反応後に表面状態が変化し、ZIF-8の立方晶結晶構造を反映した多面体構造が観察された。反応前後でZnO/ZIF-8構造の膜厚は20 nm から120~150 nmの5~6倍に増加した。ZnO粉末に同様の手順を行ったZIF-8/ZnO粉末のXRD(Fig.(c))より、ZIF-8固有のピークが確認できた。また、ZnOとZIF-8/ZnOのガスセンサ感度比較のため、100 ppmアセトンガスに対する抵抗変化を計測したところ、ZnOはRa/Rg=1.6に対してZIF-8/ZnOはRa/Rg=3.0であり、ZnO/ZIF-8ハイブリッド構造による感度の向上が確認できた。



**Fig.1** SEM Image of ZnO/ZIF-8 surface (a) before and (b) after microwave heating, (c) ZIF-8/ZnO powder XRD

謝辞 This research was supported by Institute for AI and Beyond for the University of Tokyo, JST, CREST Grant Number JPMJCR22O2, Japan, AMED under Grant Number JP22zf0127006, JSPS KAKENHI Grant Number JP20H05651, JP22K18804, JP23H04099.

References: 1. Bo Huang et al, J. Electrochem. Soc. 169, 047508 (2022)., 2. Kira Khaletskaya et al. Adv. Funct.Mater.2014, 24, 4804-4811.

## マグノニックガスセンサに向けたスピネルフェライトにおける ガス吸着と電子スピン共鳴に関する研究

### Study on gas adsorption and ESR correlation in spinel ferrite for magnonic gas sensor

東大院工<sup>1</sup>, <sup>○</sup>(M)佐久間 尊通<sup>1</sup>, 山原 弘靖<sup>1</sup>, 田畑 仁<sup>1</sup>

Univ of Tokyo<sup>1</sup>, <sup>○</sup>(M)Takamichi Sakuma<sup>1</sup>, Hiroyasu Yamahara<sup>1</sup>, Hitoshi Tabata<sup>1</sup>

E-mail: sakuma@bioxide.t.u-tokyo.ac.jp

現代社会においてガスセンサは、環境保全を目的とした大気中の有害ガス検出や火災報知機など我々の居住環境を支えるものから、医療診断などの医療分野に至るまで様々な分野で利用されている。ガスセンサ分野では電気特性を利用した半導体式ガスセンサが主流であるが、近年では磁気式ガスセンサが電気接点を必要としないことから火災による爆発の危険性が低くなる等のメリットがあることで研究されている[1]。本報告ではその中でも微弱な磁場変化を高感度に測定することが出来るスピン波を利用したマグノニックガスセンサ[2]に注目し、マグノニックガスセンサのメカニズム解明のために、スピネルフェライト酸化物粒子へのガス吸着前後の磁気共鳴特性の変化を測定した。

試料として、先行研究[2]でガス感応層として用いられていたスピネルフェライトの $\text{CuFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$ と、先行研究では用いられていない $\text{Fe}_3\text{O}_4$ (粒径約100nm)の粉末を使用し、また対象ガスとしてエタノールとガスバッグを用いて1ppm, 10ppm, 100ppmの濃度のエタノールガスを調整した。セプタム付きのバイアル瓶中に各粉末を封入し各濃度のガスを注入した後、各ガス雰囲気下において10分間のガス吸着を行い、ESR(電子スピン共鳴)装置において測定を行った。Fig.1にグラム当たりに変換した各粒子の信号強度変化および共鳴磁場変化の濃度依存性を示す。今回用いたエタノールガスのような還元性ガスとスピネルフェライトが起こす相互作用として、(1)スピネルフェライト中の酸素が欠乏することによるラジカルの増加[3]、(2)スピネルフェライト中の金属カチオンの還元反応によるイオン価数変化[2]、の二つが考えられる。Fig.1(a)の縦軸は不対電子スピンの強度に対応するが、いずれの材料も10ppmまで強度が大きく減少しており、強度増加に影響を与える(1)に比べて不対電子スピンを減らし強度減少に影響を与える(2)の寄与が大きいことが予想される。10ppmから100ppmで大きな変化がないのはナノ粒子表面に対するガスの飽和であることが推測される。また、Fig.1(b)は共鳴磁場変化を示しているが、ほとんど変化が見られていない $\text{CuFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$ に対して $\text{Fe}_3\text{O}_4$ は1ppm, 10ppmの低濃度で10mT以上の大きな変化を見せており、ガス感応層に用いる磁性材料として期待できることが予想される。

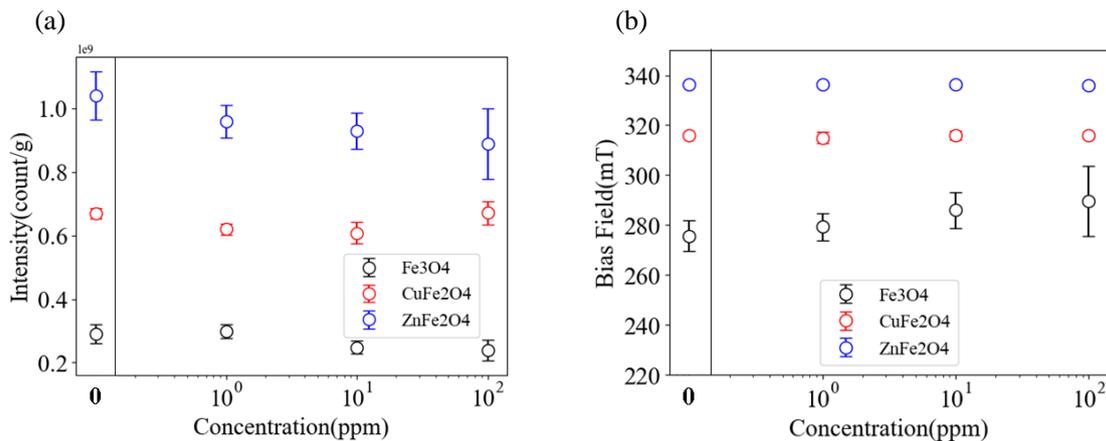


Fig.1 Concentration dependence of ESR signals: (a) intensity and (b) bias field for magnetic nanoparticles  
謝辞 This research was supported by Institute for AI and Beyond for the University of Tokyo, JST, CREST Grant Number JPMJCR22O2, Japan, AMED under Grant Number JP22zf0127006, JSPS KAKENHI Grant Number JP20H05651, JP22K18804, JP23H04099.

参考文献 [1] Shinde, P. V et al., *Nan. Adv.* 3, 1551–1568 (2021). [2] Matatagui, D et al., *Sens. Act. B: Chem* 240, 497–502 (2017). [3] Punnoose, A et al, *Nanotech.* 18,165502 (2007).