OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Surface Charge Control and Drift Suppression of Graphene FET for Ultra-Sensitive Detection of Viruses
Author(s)	山本, 佳織
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/105523
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏名（山本佳織）	
論文題名	Surface Charge Control and Drift Suppression of Graphene FET for Ultra-Sensitive Detection of Viruses （グラフェンFETの表面電荷制御とドリフト抑制によるウイルスの高感度検出）

論文内容の要旨

グラフェンFET（GFET）は表面の電気的変化に敏感であるという特長を利用して、高感度なバイオセンサを開発した。GFET表面にレセプター（抗体や糖鎖）を修飾することで、レセプターと特異的に結合するアナライト（ウイルスや細菌）を検出できる。アナライトが電荷を持ち、かつグラフェン近傍に存在すればそれが伝達特性のシフトとして現れる。GFETの電流値が最小のゲート電圧はDirac pointと定義されている。このDirac pointのシフトをアナライト検出の指標としている。バイオセンサの高感度化を目的として、以下３点についての研究を行った。

(1) GFETをアレイ化することでDirac pointの平均値と標準偏差を計算できるようになり、実験結果に対する信頼性を向上させた。また、同一基板上に参照のFETを作製できるようになったことで同時に参照実験も行えるようになった。これによりDirac pointのドリフトやGFET上に吸着したウイルスのノイズ信号を除去できるようになり、リガンドに結合したアナライトの電荷のみを検出できるようになった。実際に10^8 FFU/mLの新型コロナウイルスの検出を行ったところ、Dirac pointが16.5 mVシフトした。

(2) 参照電極の電圧とグラフェンの表面電荷密度の関係式を導出した。この関係式において電圧を電荷密度で微分することで感度が得られる。リン酸緩衝生理食塩水（PBS）と酢酸バッファーにおいて計算を行ったところ、どちらの電解液でも表面電荷密度が0に近いほど感度が高くなる傾向にあった。グラフェンのζ電位が負であることから、正電荷をもつpoly-L-lysine（PLL）をGFETに添加し、PBS中で10^7 FFU/mLの新型コロナウイルスの検出を行ったところ、Dirac pointが10.0 mVシフトし、従来よりも一桁高感度に検出が可能になった。一方で酢酸バッファー中ではPLL添加なしの方が感度が高いと言う結果が得られた。PLL添加を行った場合はPLLと抗体が強く正に帯電するため、表面電荷が大きく正方向に傾き感度が低下したと推測している。

(3) SiO_2絶縁膜により金属電極とゲート電極間のリーク電流を抑制することで、Dirac pointのドリフトが1/6程度まで抑制できることを実証した。これは金属電極表面と電解液間の酸化還元反応が抑制されたこと、また金属電極表面への電解液のイオンの吸着などが抑制されたことに起因すると考えられる。これによりドリフトを除去したウイルス検出を可能とした。

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏名（山本佳織）			
論文審査担当者	（職）		氏　　名
	主 査	教　授	田中　秀和　（産業科学研究所）
	副 査	教　授	夛田　博一
	副 査	教　授	芦田　昌明

論文審査の結果の要旨

本論文は、グラフェンが表面近傍の電気的変化に高い感度を示す特性に着目し、これを利用してグラフェンFET（GFET）を作製し、その高感度バイオセンサとしての性能向上を実現したものである。GFET表面に抗体や糖鎖などのレセプターを修飾し、特異的に結合するアナライトを検出する手法において、Dirac point のシフトを検出指標として用いている。

まず、GFETのアレイ化を行うことで、Dirac point の平均値および標準偏差を評価可能とし、測定結果の信頼性向上を図った。また、同一基板上に参照用FETを作製することで同時参照測定を可能とし、Dirac point のドリフトやウイルス吸着に起因するノイズ成分を低減した。その結果、リガンドに結合したアナライト由来の電荷のみを検出できることを示し、10^8 FFU/mL の濃度の新型コロナウイルスに対して、Dirac point の電圧シフトを観測することで検出に成功した。

次に、参照電極電圧とグラフェン表面電荷密度の関係式を導出し、リン酸緩衝生理食塩水（PBS）および酢酸バッファーを用いた系に対して計算を行った。その結果、表面電荷密度を零に近い条件に最適化することで、ウイルス検出感度がさらに向上することを示した。これらの知見に基づき、正電荷を有する poly-L-lysine（PLL）を添加することで、PBS中において新型コロナウイルスを、従来より一桁高感度で検出可能であることを実証した。

さらに、SiO_2絶縁膜を導入して金属電極とゲート電極間のリーク電流を抑制することで、Dirac point のドリフトを約 1/6 に低減できることを示した。これにより、ドリフトの影響を抑えた、より高精度なウイルス検出が可能となった。

以上の結果より、GFETを用いたバイオセンサの高感度化が実現されるとともに、さらなる高感度化に資する有用な知見が示されている。本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。