

有機ELを光源とするマイクロチップ用蛍光検出システムの開発

九大院工 ○中嶋秀, 大隈夕紀子, 今任稔彦
九大未来化学創造センター 八尋正幸, 安達千波矢

1. 緒言

反応・分離・検出からなる化学分析システムの小型化・集積化は、近年の計測科学の重要な課題となっている。これまでに、電気泳動用チップ、DNAチップ、免疫測定用チップなどが開発され、反応場や分離場の小型化・集積化が進む一方、検出システムの集積化については進展が遅れており、検出に使用されるレーザーや顕微鏡が大型かつ高価であるという共通した問題を抱えている。演者らはこれまでに、無機LEDをオンチップ化した蛍光検出システム^{1,2)}を開発しているが、さらなる小型化やアSEMBリーの低コスト化は容易ではなく、新しい光源や検出系の開発が求められている。そこで本研究では、真空蒸着法やインクジェット法などの安価なプロセスによってプラスチック基板上に容易に作製できる有機EL(Organic light-emitting diode; OLED)デバイスを光源とするマイクロチップ用蛍光検出システムを試作し、その評価を行った。

2. 実験

2-1. 有機ELデバイスの作製

真空蒸着法により表1に示す構造のりん光有機ELデバイス(発光部: 2 mm角)を作製した。

表1 有機ELデバイスの構造

Layer	Element	Thickness
Cathode Layer	Al	100 nm
Electron Injection Layer (EIL)	LiF	0.5 nm
Electron Transport Layer (ETL)	Alq ₃ tris(8-hydroxy-quinolin)aluminum	30 nm
Hole Blocking Layer (HBL)	BPhen 4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline	10 nm
Emitting Layer (EML)	6wt % Ir(ppy) ₃ tris(2-phenylpyridine)iridium CBP 4,4'-di(N-carbazolyl)biphenyl	20 nm
Hole Transport Layer (HTL)	TPD N,N'-diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)-benzidine	40 nm
Anode Layer	ITO (indium tin oxide)	110 nm

2-2. マイクロチップの作製

ガラス基板上にネガ型フォトレジスト(su-8)を塗布し、500 rpmで20秒間回転させた後、さらに2000 rpmで20秒間回転させた。この基板を95°Cで10分間ベークした後、目的流路を描写したフォトマスクを重ね、紫外線を露光した。次に、95°Cで3分間ベークした後、専用現像液で現像し、さらに200°Cで3分間ベークして、マイクロチップの鋳型となる凸型テンプレートを作製した(チャンネル幅1 mm, 長さ40 mm, 深さ50 μm)。このテンプレート上に触媒を添加したポリジメチルシロキサン(PDMS)プレポリマーを流し込み、60°Cで1時間ベークして硬化させた。これをテンプレートから剥離して試料導入排出用の穴を開け、プラズマ照射により表面を親水化した後、ガラス基板と張り合わせ、120°Cで4時間加熱してマイクロチップを作製した。

2-3. イムノグロブリンAの測定

図1に示すようなフロー分析システムを構築し、ストレスマーカーの一種として知られているイムノグロブリンA (IgA)の測定を行った。マイクロチャンネル内に抗IgA抗体を固定化した後、種々の濃度のIgA及びHRP標識抗IgA抗体を逐次導入した。さらに、過酸化水素及びAmplex® Redを導入し、生成したレゾルフィンの蛍光をリニアCCDセンサで検出することによりIgAの定量を行った。

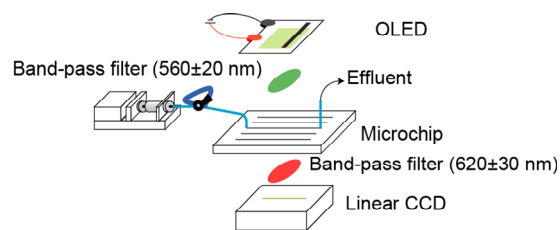


図1 フロー分析システム

Development of Integrated Fluorescence Detection System Using Organic Light Emitting Diodes as Light Source

Hizuru NAKAJIMA, Yukiko OKUMA, Toshihiko IMATO,
Masayuki YAHIRO and Chihaya ADACHI

3. 結果及び考察

3-1. 作製した有機EL素子の評価

作製した有機ELデバイスの発光スペクトルを図2に、また、図3に電流密度と電圧(a)、輝度と電流密度(b)、量子効率と電流密度(c)の関係を示す。最大発光波長511 nm、最大外部量子効率約10%、駆動電圧12 V(電流密度197 mA/cm²)における輝度32800 cd/m²の高効率な有機ELデバイスが得られた。しかし、発光スペクトルの半値幅が60 nm程度あるので、蛍光検出の光源として使用した場合、バックグラウンド信号の増加による感度の低下が予想される。そこで、バンドパスフィルターを用いた蛍光検出システム(図1)を構築し、レゾルフィン(Ex 571 nm, Em 586 nm)を用いてシステムの評価を行った。レゾルフィンに対する検量線は良好な直線関係を示し、SN比を3としたときの検出限界は7.9 nMであった。この結果から、有機ELを蛍光検出の光源として利用できることがわかった。

3-2. イムノグロブリンAの測定

開発したシステムをIgAの測定に応用した。図4にIgAに対する検量線を示す。一般に、IgAは唾液中に110~220 µg/mL含まれ、ストレスにより分泌量が減少することが報告されている。本システムにおけるIgAの検出限界(S/N=3)は3.8 ng/mLであることから、本システムはストレス計測においては十分な感度を有しているといえる。また、抗IgA抗体へのIgAの結合がラングミュア型の吸着式に従うと仮定すると、その結合定数は $8.3 \times 10^9 \text{ M}^{-1}$ と計算された。

有機ELはマイクロチップへの集積化が容易であり、分析システム全体の小型化に有用であると考えられる。

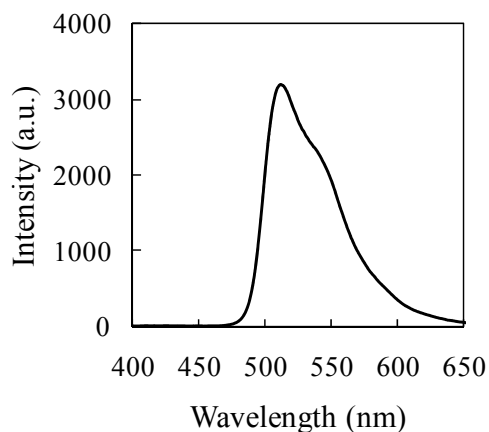


図2 有機ELの発光スペクトル

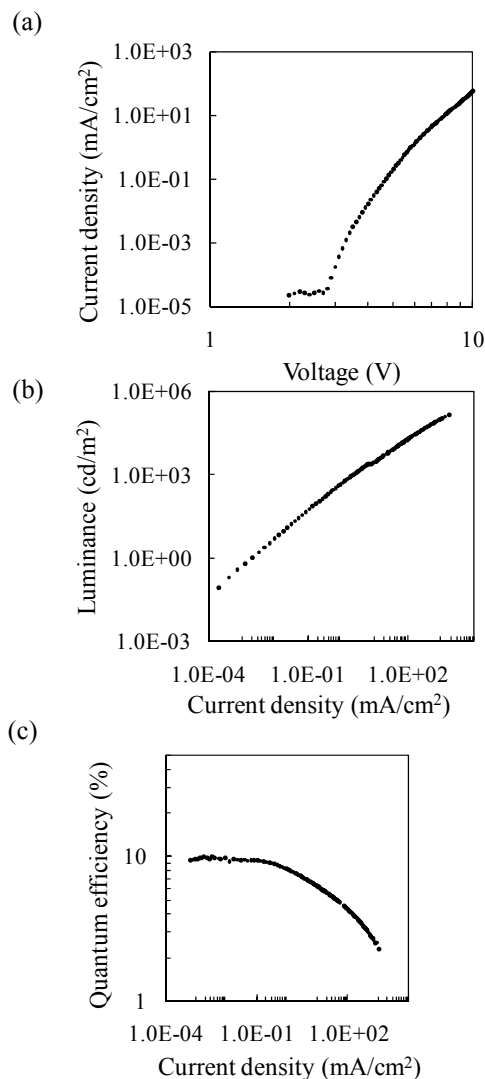


図3 有機ELデバイスの特性

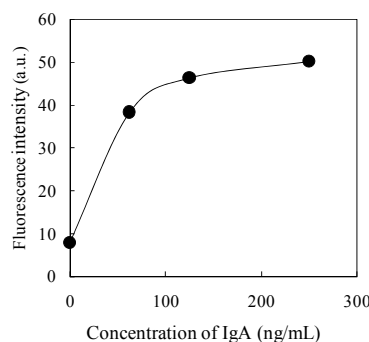


図4 IgAに対する検量線

4. 参考文献

1. Y. Guo, K. Uchiyama, T. Nakagama, T. Shimosaka, T. Hobo, *Electrophoresis*, **26**, 1843-1848 (2005).
2. K. Miyaki, Y. Guo, T. Shimosaka, T. Nakagama, H. Nakajima, K. Uchiyama, *Anal. Bioanal. Chem.*, **382**, 810-816 (2005).