



Title	生体超分子援用プロセスの高機能化と新規光電子デバイスへの応用に関する研究
Author(s)	橋元, 達也
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/27525
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	橋 元 達 也
博士の専攻分野の名称	博 士（工学）
学 位 記 番 号	第 2 6 1 4 6 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 25 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科生命先端工学専攻
学 位 論 文 名	生体超分子援用プロセスの高機能化と新規光電子デバイスへの応用に関する研究
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 渡部 平司 (副査) 教 授 金谷 茂則 教 授 福住 俊一 教 授 宮田 幹二 教 授 菊地 和也 教 授 伊東 忍 教 授 高井 義造 教 授 伊東 一良 教 授 兼松 泰男

論 文 内 容 の 要 旨

現在、半導体デバイスでは、金属ナノ粒子に発現する量子効果や局在表面プラズモン共鳴(LSPR)等の現象を利用し、新たな機能を付加した新機能デバイスの実現に期待が寄せられている。そのような状況の中、金属ナノ粒子を基板上に選択配置する技術として、フェリチンタンパク質を利用したボトムアップ型バイオナノプロセスが注目されつつある。本研究では、従来のトップダウン型半導体プロセスにバイオナノプロセスを組み合わせることで、新規光電子デバイスを実現することを目的としている。第1章では、本研究の背景について述べ、フェリチンタンパク質を利用したバイオナノプロセスによるデバイス作製の現状とその課題を明確にした。第2章においては、金属ナノ粒子選択配置技術の基礎となっているTiアプタマー修飾フェリチンタンパク質(TBF)のTi選択吸着機構の解明に取り組み、非イオン性界面活性剤であるTWEEN20の役割、及びTBFの選択吸着に求められる表面電荷分布の条件を明らかにした。さらに、得られた知見を基に、TBFによる金属ナノ粒子選択配置技術において、金属パターンを用いず、SiO₂膜の電氣的欠陥の生成・回復を利用する新たな手法を提案した。また、第3章では、フェリチンタンパク質に内包可能な金属ナノ粒子のサイズと種類の制限を突破し、プラズモニック機能デバイスへ応用するため、遺伝子改変フェリチンタンパク質(TFG)を用いたFerritin-based encapsulation systemによる金ナノ粒子選択配置技術を検討した。その結果、TFGは、粒子のサイズや形状によらず、金ナノ粒子周囲に配位可能であること、また、TFGで覆われた金ナノ粒子(TFG-GNP)は、大面积からナノスケールの範囲で選択配置できることを示した。さらに、基板上に配置したTFG-GNP層のプラズモニック特性は、粒子間の凝集を抑制することで、溶液中の独立した金ナノ粒子と同様の特性を示すことを実証した。さらに第4章では、TFG-GNP層をプラズモニック機能デバイスに利用するために、金ナノ粒子周囲のタンパク質除去処理法として、大気圧Heプラズマ処理を検討し、その優位性を示した。そして、第5章において、半導体プロセスとバイオナノプロセスの融合の成果として、新規光電子デバイスを提案・作製した。可視域で透明なNb-doped TiO₂膜とショットキー接合を形成するAu電極、及び、Ferritin-based encapsulation systemにより集積した金ナノ粒子から構成される新規光電子デバイスを作製し、金ナノ粒子のLSPRに起因する信号を電氣的に検出することに成功した。以上のように、本研究では、TBFの選択吸着機構を解明し、フェリチンタンパク質による金属ナノ粒子配置技術のデバイス応用範囲を拡大すると共に、ボトムアップ型バイオナノプロセスとトップダウン型半導体プロセスの融合により、新規光電子デバイスを作製

することに成功した。特に、提案した新規光電子デバイスは、金ナノ粒子をプラズモンアンテナ兼バイオセンシング部として利用するものであり、将来、電子回路やバイオセンサーを半導体チップ上に集積した超小型バイオセンサーチップを実現に導く基盤技術となることが期待できる。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

現在、半導体デバイスでは、金属ナノ粒子に発現する量子効果や局在表面プラズモン共鳴(LSPR)等の現象を利用し、新たな機能を付加した新機能デバイスの実現に期待が寄せられている。そのような状況の中、金属ナノ粒子を基板上に選択配置する技術として、フェリチンタンパク質を利用したボトムアップ型バイオナノプロセスが注目されつつある。本研究では、従来のトップダウン型半導体プロセスにバイオナノプロセスを組み合わせることで、新規光電子デバイスを実現することを目的としており、学術的にも優れた成果をあげている。

第1章では、本研究の背景について述べ、フェリチンタンパク質を利用したバイオナノプロセスによるデバイス作製の現状とその課題を明確にしている。第2章においては、金属ナノ粒子選択配置技術の基礎となっているTiアプタマー修飾フェリチンタンパク質(TBF)のTi選択吸着機構の解明に取り組み、非イオン性界面活性剤であるTWEEN20の役割、及びTBFの選択吸着に求められる表面電荷分布の条件を明らかにしている。さらに、得られた知見を基に、TBFによる金属ナノ粒子選択配置技術において、金属パターンを用いず、SiO₂膜の電氣的欠陥の生成・回復を利用する新たな手法を提案している。また、第3章では、フェリチンタンパク質に内包可能な金属ナノ粒子のサイズと種類の制限を突破し、プラズモニック機能デバイスへ応用するため、遺伝子改変フェリチンタンパク質(TFG)を用いたFerritin-based encapsulation systemによる金ナノ粒子選択配置技術を検討している。その結果、TFGは、粒子のサイズや形状によらず、金ナノ粒子周囲に配位可能であること、また、TFGで覆われた金ナノ粒子(TFG-GNP)は、大面积からナノスケールの範囲で選択配置できることを示している。さらに、基板上に配置したTFG-GNP層のプラズモニック特性は、粒子間の凝集を抑制することで、溶液中の独立した金ナノ粒子と同様の特性を示すことを実証している。さらに第4章では、TFG-GNP層をプラズモニック機能デバイスに利用するために、金ナノ粒子周囲のタンパク質除去処理法として、大気圧Heプラズマ処理を検討し、その優位性を示している。そして、第5章において、半導体プロセスとバイオナノプロセスの融合の成果として、新規光電子デバイスを提案・作製している。可視域で透明なNb-doped TiO₂膜とショットキー接合を形成するAu電極、及び、Ferritin-based encapsulation systemにより集積した金ナノ粒子から構成される新規光電子デバイスを作製し、金ナノ粒子のLSPRに起因する信号を電氣的に検出することに成功している。第6章では、これらの研究成果をまとめて総括している。

以上のように、本論文では、TBFの選択吸着機構を解明し、フェリチンタンパク質による金属ナノ粒子配置技術のデバイス応用範囲を拡大すると共に、ボトムアップ型バイオナノプロセスとトップダウン型半導体プロセスの融合により、新規光電子デバイスを作製することに成功している。特に、提案した新規光電子デバイスは、金ナノ粒子をプラズモンアンテナ兼バイオセンシング部として利用するものであり、将来、電子回路やバイオセンサーを半導体チップ上に集積した超小型バイオセンサーチップを実現に導く基盤技術となることが期待できる。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。