

Title	Study on Charge Transport Properties through DNA by Nanoscale Electrical Measurements
Author(s)	大塚, 洋一
Citation	
Issue Date	
oaire:version	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/837">https://hdl.handle.net/11094/837</a>
rights	
Note	

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

氏名	大塚 洋一
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 20018 号
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科化学専攻
学位論文名	Study on Charge Transport Properties through DNA by Nanoscale Electrical Measurements (ナノスケール電気伝導測定による DNA の電荷輸送特性に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 川合 知二  (副査) 教授 山口 兆 教授 渡會 仁

#### 論文内容の要旨

Various studies on "Electrical properties of DNA molecules" have been reported so far, but the results are still controversial. Author studied the charge transport properties of DNA by nanoscale electrical measurements with "electrode-DNA-electrode" configuration. Different types of geometry of electrodes such as "bottom-contacted geometry type electrode", "top-contacted geometry type electrode" and "conductive probe AFM method" can be employed to fabricate electrical contacts.

All of these different methods were employed, and electrical measurements of DNA were performed. Moreover, new methods for both of the fabrication of top-contacted geometry type electrode and the measurements by conductive probe AFM (PCI-AFM; Point-contact Current-Imaging AFM) were developed, and utilized for the electrical measurements of DNA.

Electrical measurements by both bottom-contacted geometry type electrodes and PCI-AFM indicate the ionic conduction through adsorbed water layer around DNA, but the charge transport properties along DNA were not obtained. On the other hand, measurements by top-contacted geometry type electrodes indicate the charge transport phenomenon along DNA. This is because the structural bending of DNA is prevented.

The detailed study indicates the charge transport along DNA is emerged in the presence of counter ions such as magnesium and sodium ion. The temperature dependency on the electrical properties indicates that the conductive carriers are formed due to counter ions, and they are transported along the localized states along DNA. The mechanism of charge transport is varied under different temperature and electrical field between electrodes; Hopping conduction at high temperature and lower bias voltage, Frenkel-Poole emission at higher temperature and higher electrical field and Trap assisted tunneling at lower temperature and higher electrical field.

「DNA の電気伝導」現象について、これまで多くの研究がなされてきたが、報告されている結果は幅広く異なる

ものであった。そこで申請者は「電極-DNA-電極」構造における DNA の電荷輸送現象に関する研究を行い、これまでの相反する結果の起源を探索した。DNA に対して電極を設ける際には、ボトムコンタクト型電極・トップコンタクト型電極・AFM による電気測定手法といった、複数の手法が考えられるが、申請者はそれぞれの手法を用いて DNA の電気伝導性測定を行った。また、AFM による電気測定法とトップコンタクト型電極の作製においては、新規に手法を考案することにより研究を遂行した。

新規に開発した、AFM による電気測定法は PCI-AFM (点接触電流画像化 AFM) と呼ばれる。本手法では、ナノスケールの局所的な表面構造と電気特性が一对一对応で得られるため、構造と物性の相関を検討することが出来る。また新規に開発した、傾斜蒸着法によるトップコンタクト型電極作製法を用いることにより、完全ドライプロセスで 100 nm 以下の電極間距離を有するトップコンタクト型電極を作製することが可能になった。

その結果、ボトムコンタクト型電極・AFM による電気測定では、DNA への吸着水層を介したイオン伝導が観測されたが、DNA を介した電荷輸送現象を測定することができなかった。

一方、トップコンタクト型電極を用いた測定では、DNA を介した電荷輸送現象を測定することができた。この理由として、DNA の構造変形を抑えた状態で、電極を作製することができたためであると考えられる。

以上の実験結果を詳細に検討したところ、電極-DNA 界面での構造が維持された条件下かつ対イオン (マグネシウムイオン・ナトリウムイオン) が存在する条件下において、ナノスケール電荷輸送現象が発現することを見いだした。さらに、DNA を疎水性・親水性にパターンニングされた基板表面上に伸張固定化する手法を考案し、それらの電気特性評価を、トップコンタクト型電極を用いて行うことにより、DNA の抵抗率を定量的に評価することができた。

また、温度特性評価から、対イオンによって生成された伝導キャリアが DNA 内部の局在化した準位を介して輸送されることが示唆され、その電荷輸送機構は、異なる電界および温度領域において、異なる伝導機構が支配的であることが分かった。低電界・高温領域においてはホッピング型機構、高電界・高温領域では Poole-Frenkel 型伝導機構、高電界・低温領域においては Trap assisted tunneling 伝導機構が支配的であることが示唆された。

#### 論文審査の結果の要旨

申請者は DNA の電荷輸送特性に関する研究を、新規なトップコンタクト型ナノ電極作成法を開発・適用することにより遂行した。本手法により基板上における DNA の構造変形を抑えた状態で電極を作製することに成功し、本電極構造における DNA の電気測定結果からは、DNA を介した電荷輸送現象が見いだされた。電極間距離の変化に伴う抵抗値の変化から、得られた電気特性は、電極-DNA 間の電荷注入機構ではなく、DNA 自体を介した電荷輸送現象によるものである事が見出された。さらに、カウンターイオン種による電気特性の比較からは、ナトリウムイオンよりマグネシウムイオン存在化にて伝導度の向上が見られたが、これは過去の計算結果から予測されていた、対イオン種による塩基分子の  $\pi^*$  準位へのキャリアドーピングが生じた結果に対応すると考えられる。

温度特性評価による伝導機構の検討からは、異なる温度領域・電界条件下において、異なる伝導機構が示唆され、高温・低電界下では Hopping 機構、高温・高電界下では Frenkel-Poole 機構、そして低温・高電界下では Trap assisted tunneling 機構により説明することが出来る事が明らかになった。これらの伝導機構における共通点として局在準位におけるキャリアの存在が挙げられることから、対イオン種により導入されたキャリアが、 $\pi$ スタッキング構造内部における局在準位間を移動することにより電荷輸送現象が発現することが示唆された。以上、申請者は新規な測定手法を考案・開発することにより、従来の手法では実施することが困難であった、構造変形を抑えた上での DNA の電気測定を行うことを可能にし、その結果、DNA の構造と対イオン種による電荷輸送現象への影響を見出した。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。