The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Study on Dynamics of Particles in Extended Solid State Nanopore
Author(s)	岸本, 匠平
Citation	大阪大学, 2021, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/85328
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　（　岸本匠平　）	
論文題名	Study on Dynamics of Particles in Extended Solid State Nanopore (拡張固体ナノポアにおける粒子のダイナミクスの研究)

論文内容の要旨

ナノポアには大きな電界が印加されており、そこを通過する粒子は静電気力によって加速され、その後、粘性力によって減速される。本論文では、この加速・減速を含む一連の１粒子ダイナミクスを研究した。本研究で得られた新しい知見をまとめると以下のようになる。

電解質溶液中の粒子の加速と減速は、粒子速度の緩和時間後に完了し、粒子は一定の速度で移動する。ナノポアを通過する粒子の加速・減速過程の速度を測定するためには、粒子速度の緩和時間内で起こる現象を測定する必要があり、イオン電流変化(パルス波形)の時間応答を決める要因を把握することが重要である。パルス波形の時間応答性の指標となるのは、パルス波形の遅延の度合いである。膜の静電容量を小さくすると、パルス波形の遅れが小さくなることが知られている。この現象は、膜にイオンが吸脱着していることを示唆しており、電極とナノポアの間のイオンの移動を妨げている可能性がある。しかし、この問題の全容はまだ明らかになっていない。そこで今回は、電極とナノポアの間を移動するイオンが、パルス波形の遅延にどのように関与しているのか、そのメカニズムを調べた。信号の伝達にはナノポア外抵抗が支配的に関与していること、その抵抗にはアクセス抵抗が部分的に含まれていること、電極とナノポアとの距離が短いほどその抵抗が小さくなることを明らかにした。その結果、粒子がナノポアを通過したときのパルス波形の応答性には、ナノポアの外側の抵抗と膜の静電容量が寄与しており、抵抗が小さいほど応答性が良いことがわかった。

パルス波形の応答性には、ナノポアの外側の抵抗と膜の静電容量が寄与していることがわかり、これらを最適化することで、溶液中の粒子の加速・減速を含む一連の１粒子ダイナミクスを測定する目処が立った。１粒子に作用する静電気力と粘性力が等しい時に１粒子が等速で運動する。その直前の１粒子ダイナミクスを観察することを試みた。垂直に並んだナノポアを持つ「オクテットナノチャネル」と呼ばれるチャネル構造を考案し，本構造ではナノポア入口での粒子の加速とナノポア出口での粒子の減速が繰り返される。実験の結果、粒子は明らかにナノポアの間を通過し、オクテットナノチャネルを通過する粒子の速度は，下流に行くほど大きくなることがわかった．注意深くシミュレーションを行ったところ，粒子はチャネルの中心軸に向かって通過し，チャネル下流に行くほど通過する距離が短くなることがわかった。実験とシミュレーションから、粒子はチャネルに広がる等電位線の法線方向に沿って移動するが、粒子速度の緩和時間の間、粒子は元々位置した場所での作用ベクトルに沿って移動するため、チャネルの中心軸に向かって移動し、結果的に移動距離が短くなっていることがわかった。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名（　　岸本　匠平　　）			
論文審査担当者		（職）	氏　　名
	主 査	教授	谷口　正輝
	副 査	教授	中澤　康浩
	副 査	教授	松本　卓也

論文審査の結果の要旨

タンパク質などの生体高分子を同定するため、飛行型質量分析装置が広く用いられているが、生体分子が存在する溶液環境下で、1 分子の質量/電荷数（m/z）を測定することはできない。本論文は、溶液中の 1 分子の質量を計測する原理を創出するため、ナノポアを用いて、溶液中の 1 粒子の流動ダイナミクスを解明することを目的としている。

ナノポア測定は、電界質溶液で満たされたチャンバーを貫通孔(ナノポア)を持つ薄膜で区切り、その両端に設置された電極間に電圧を印加し、イオン電流を計測する。1 粒子がナノポアを通過すると、イオン電流が減少し、イオン電流変化（パルス波形）が観測される。このパルス波形から 1 粒子の体積、形状、および表面電荷が測定される。粒子がナノポアを通過する時、粒子は等速運動していると見なされているが、ナノポア周辺での急峻な電界強度変化のため、粒子は加速運動、等速運動、および減速運動していると考えられる。粒子が加速・減速する時間は粒子速度の緩和時間で決まり、粒子速度の緩和時間は粒子径に依存する。本論文では 1 粒子がナノポアを通過する時の加減速過程を観測し、1 粒子流動ダイナミクスにおける粒子質量の影響を詳細に研究した。

1 粒子がナノポアを通過するときの流動ダイナミクスを正確に観測するためには、イオン電流変化を正確に観測する必要がある。ナノポアを通過する粒子の加速・減速過程の速度を測定するためには、粒子速度の緩和時間内で起こる現象を測定する必要があり、パルス波形の時間応答を決める要因を解明しなければならない。パルス波形の時間応答性の指標となるのは、パルス波形の遅延度合いである。ナノポア膜の静電容量を小さくすると、パルス波形の遅れが小さくなることが知られているが、この現象の詳細は明らかにされていない。本論文では、電極配置を変えたナノポア計測を行うことで、パルス波形の遅延機構を詳細に調べ、信号の伝達にはアクセス抵抗を含むナノポア外抵抗が支配的であり、ナノポア外抵抗値が電極―ナノポア間距離と正の相関を示すことを明らかにした。

早い応答性を示すナノポアの設計原理を基盤にして、溶液中の粒子の加速・減速を含む一連の 1 粒子流動ダイナミクスを測定する計測システムの開発を行なった。平面基板上に、8 個のナノポアが直列に並んだオクテットナノチャネル構造を考案し、微細加工技術を用いて作製した。この構造では、ナノポアの入口と出口で、それぞれ、粒子の加速と減速が繰り返される。実験の結果、オクテットナノチャネルを通過する粒子の平均通過時間が、下流に行くほど小さくなり、ナノポアの入口と出口付近で、それぞれ、加速運動、等速運動することを見出した。マルチフィジックスシミュレーションにより、ブラウン運動の 1 粒子流動ダイナミクスへの寄与は小さく、溶液の粘性が小さいほど、直線的な軌跡を示すことが示唆された。さらに、粒子速度の緩和時間が粒子の質量密度に依存し、質量密度の異なる粒子がオクテットナノチャネルを通過した時の軌跡が異なることを明らかにした。

以上、本論文により、溶液中の 1 粒子の流動ダイナミクスと質量の相関を明らかにした。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。