OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Towards Ion Transport Manipulation and Single Particle Sensing with Solid-State Nanopores
Author(s)	梁, 逸偉
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/92172
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　（　　梁　逸偉　　）	
論文題名	Towards Ion Transport Manipulation and Single Particle Sensing with Solid-State Nanopores （固体ナノポアにおけるイオン輸送操作と単一粒子計測に向けて）

論文内容の要旨

ナノポア技術は当初DNAシーケンサーとして活用され、すでに膜タンパク質を用いた生体工学で形成された生体ナノポアは実用的な技術になった。ナノポア技術とは、外部電圧を印加することでナノポア近傍の電位勾配により検体を電気泳動させ、検体がナノポア通過の際に生じるイオン電流変化を計測することで、検体の物理情報と化学情報を得られる。近年では、分子や粒子を対象とし、マイクロメートルからナノメートルまでの任意のサイズの細孔を形成することにより、ナノマテリアルを高スループットと高分解能で計測する方法開発が着目されている。

本研究では、塩分濃度勾配下での低アスペクト比の固体ナノ細孔におけるイオンおよび物質輸送の研究を行った。サブマイクロメートルスケールのポアサイズでは、イオン電流と計測粒子の移動は電気泳動、電気浸透と拡散浸透の複数の物理的特徴の影響を受ける傾向がある。そこで、目標の 1 つは、ナノポア単一粒子計測法によるナノ材料の 3次元形状と表面電荷分布の特性評価の実現である。しかし、ナノポア内の物質およびイオン輸送はまだ十分に理解されておらず、この目的のために背後にある物理と化学の基本的な理解することが不可欠である。そこで、イオン電流計測の実験と合わせてマルチフィジックスシミュレーションをすることで、前述の物理化学の相互作用を解明し、ナノマテリアルの特性評価に最適なナノポア設計と材質を明確にする。

第１章では、本論文の序論であり、ナノマテリアル開発のための分析技術と固体ナノポアの背景を説明している。固体ナノポアにおけるイオン輸送操作と単一粒子計測の実現を向けた課題を明確にし、塩分濃度勾配を利用する目的と意義を述べている。本研究で使用する固体ナノポアデバイスの構造、微細加工過程、イオン電流測定、シミュレーションの詳細、ならびにデータ解析を含む実験方法の概要を第２章に説明している。

第３章では、厚さ対直径比が小さいナノポアでのイオン電流整流現象を報告する。ナノポアで隔てられた両側のイオン濃度が等しい場合、イオン電流－電圧特性はオーミック特性を示した。対照的に、塩分濃度差が存在する場合、低いイオン選択性にもかかわらず、イオン電流整流現象が観察された。この結果は、マルチフィジックスシミュレーションを用い、ナノポア付近の電気浸透流、イオン濃度と電場変化の相互作用がイオン電流整流を誘発すると結論付けている。そして、第４章に両側の塩分濃度差の比を100倍まで増大した場合、ナノポアによる負性抵抗と抵抗スイッチング効果を述べている。また、負性抵抗の形成に必要な表面電荷と厚さ対直径比の条件を詳細に調査した。第５章では、ナノポアの特定表面に金属酸化物薄膜を被覆することにより、ナノ流体が抵抗、ダイオードとバイポーラトランジスタの特性を示す条件を明らかにした。

第６章では、ナノポア単一粒子計測法における電極、固体膜と溶液条件の研究を行った。まずは、電極界面でのイオン拡散動力学の干渉を着目した。コットレル拡散による液体-電極界面におけるインピーダンスの増大により、ナノポアを通過するイオン電流の緩やかな減少現象を解明した。第７章では、単一粒子計測法における固体膜コンダクタンスの影響を調査した。そこで、絶縁層としてポリマー層を増設したことにより、信号対雑音比の改善が示された。そして、ナノ粒子が塩分濃度勾配を有するナノポアの通過過程を第８章に述べている。その結果、ナノポア近傍の電気浸透流により、分析物の通過速度の制御と可能な捕捉半径が可変であることを確認した。

第９章では、本研究の成果を要約した。さらに、固体ナノポアの可能な応用をセンサー、トランジスタと塩分濃度差発電素子の3つの方向に分けて今後の展望について述べている。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名	（　梁　逸偉　）

	（職）	氏　名
論文審査担当者	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

本論文では､塩分濃度勾配下での低アスペクト比の固体ナノ細孔におけるイオンおよび物質輸送の研究を行った。本論文の新たな知見は以下のように要約される。

サブマイクロメートルスケールのポアサイズでは、イオン電流と計測粒子の移動は電気泳動、電気浸透と拡散浸透の複数の物理的特徴の影響を受ける傾向がある。これらの影響を明らかにするためには、ナノポア単一粒子計測法によるナノ材料の 3 次元形状と表面電荷分布の特性評価が必要である。しかし、ナノポア内の物質およびイオン輸送はまだ十分に理解されておらず、この目的のために背後にある物理と化学の基本的な理解することが不可欠である。そこで、イオン電流計測の実験と合わせてマルチフィジックスシミュレーションを行うことで、物質輸送とイオン輸送の物理化学を解明し、ナノマテリアルの特性評価に最適なナノポア設計と材質を明確にすることを目的とした。

厚さ対直径比が小さいナノポアにおけるイオン電流整流現象を実験とマルチフィジックスシミュレーションにより詳細に調べた。微細加工技術を用いて、ナノポアを作製し、ナノポア計測に最適な極微電流計測システムを開発した。ナノポアで隔てられた両側のイオン濃度が等しい場合、イオン電流－電圧特性はオーミック特性を示した。対照的に、塩分濃度差が存在する場合、低いイオン選択性にもかかわらず、イオン電流整流現象が観察された。この結果は、マルチフィジックスシミュレーションを用い、ナノポア付近の電気浸透流、イオン濃度、および電場変化の相互作用がイオン電流整流を誘発することを明らかにした。

イオン濃度差の研究を発展させ、両側の塩分濃度差の比を 100 倍まで増大した場合、ナノポアによる負性抵抗と抵抗スイッチング効果を見出した。さらに、負性抵抗の形成に必要な表面電荷と厚さ対直径比の条件を詳細に研究し、電圧掃引時における電気浸透流によるナノポア付近の急激なイオン濃度分布変化がその主要因であることを見出した。得られた知見を元に、ナノポアの特定表面に金属酸化物薄膜を被覆することで 3 通りの表面電荷状態を作製し、ナノ流体が抵抗、ダイオードとバイポーラトランジスタの特性を示す条件を明らかにした。

ナノポア単一粒子計測法における電極、固体膜と溶液条件の研究を行った。まず、電極界面でのイオン拡散動力学の干渉を着目した。コットレル拡散による液体-電極界面におけるインピーダンスの増大により、ナノポアを通過するイオン電流の緩やかな減少現象を解明した。さらに、単一粒子計測法における固体膜コンダクタンスの影響を詳細に研究した。絶縁層としてポリマー層を追加することにより、信号対雑音比を向上させることに成功した。さらに、ナノ粒子が塩分濃度勾配を有するナノポアの通過過程を研究し、ナノポア近傍の電気浸透流により、分析物の通過速度の制御と可能な捕捉半径が可変であることを明らかにした。

本論文で得られた結果は、ナノポアにおける溶液中の物質輸送とイオン輸送の解明において、ナノスケール空間における物質の流動ダイナミクスの分野に大きく貢献すると期待される。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値があるものと認める。