

共振電磁界解析を基盤とした金属メッシュデバイスを用いた物質定量測定法に関する研究

神波, 誠治

<https://doi.org/10.15017/1931884>

出版情報 : 九州大学, 2017, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :

氏 名 : 神波誠治

論 文 名 : 共振電磁界解析を基盤とした金属メッシュデバイスを用いた物質定量測定法に関する研究

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

金属メッシュデバイス (Metal Mesh Device, MMD) とは、金属薄膜に同じ形状の貫通孔を周期的に配置した構造体を指す。MMD は、この貫通孔の周期構造に応じた光学特性を有する。その光学特性は、特定の周波数帯の電磁波のみが透過するバンドパスフィルター的な特性になる。2005年に田中ら、2006年に宮丸らによって、MMDに物質が付着することでMMDの電磁波透過特性が変化することが示され、MMDを用いた物質の定量測定技術の可能性が示唆されたことから、以降、これに関する研究が数多く報告されることになった。しかし、これら先行研究では被測定物の付着によりMMDの電磁波透過特性が変化する事は示されているが、本当に定量できるのかについて議論した報告が殆ど見られなかった。MMDを用いた定量測定技術を確立し、実用化を目指すためには、先行研究からさらに詳細な検討が必要であり、定量測定の原理や基本性能 (感度、定量性、直線性) を明確にする必要があった。そこで、本研究では、MMDを用いた物質の定量測定における測定原理と基本性能を明らかにし、それが実現可能であることを示した。

MMDを用いた物質の定量測定では、物質の付着によるディップ点 (通過帯中の生じる透過率が落ち込む波形のボトム点) の周波数変化を測定することで、被測定物の定量が行われる。計算と実験により、ディップ点ではMMDの固有振動モードであるTE₁₁-like mode共振が生じていることが明らかになった。また、この共振モードを等価回路で表現するとLC並列共振回路となり、その回路の共振周波数がディップ点の周波数に対応することが明らかになった。(L:インダクタンス、C:リアクタンス) これらの結果から、定量測定原理は、MMDに物質が付着することで共振空間の見掛け誘電率が増加し、等価回路のC成分が増加することから、共振周波数の低下が生じることによると説明できることが示唆された。また、物質付着によるC成分の増加量 (物質量に相当) と共振周波数の変化量が近似的に比例関係を有することが明らかとなり定量性と直線性が示唆された。

物質をタンパク質とすることで、定量原理で示されたように、MMDを用いたタンパク質の定量測定が実現可能であることを実証した。計算、及び、BiotinとStreptavidinの特異吸着を利用した実験系により、MMDに吸着したタンパク質の質量[ng mm⁻²]とそれによるディップ点の周波数変化量[THz]が比例すること、また、感度[THz ng⁻¹ mm²]が使用するMMDのディップ点

の周波数[THz]の二乗に比例して大きくなることが明らかになった。これらの結果から、基本性能である直線性、定量性、感度が明らかになり、MMD を用いたタンパク質の定量測定は実現可能であることが示唆された。

前記とは異なる 3 種類のタンパク質 (Avidin、BSA、Lysozyme) を用いた実験系により、MMD を用いたタンパク質の定量測定に関する汎用性を明らかにした。3 種類のタンパク質を用いて前記と同様の検討を行った結果、タンパク質の種類によらず、前記と同様の基本性能が得られることが明らかになった。また、その性能はタンパク質自身が持つ吸光特性に殆ど影響を受けないことが明らかになった。これら結果から、MMD を用いたタンパク質の定量測定に汎用性があることが示唆された。また、この汎用性は、タンパク質の光学特性の類似性により成立しており、MMD と類似の測定原理を有する SPR センサーで用いられているタンパク質の定量に関する近似が MMD でも同様に成り立つことが示唆された。

MMD の検出可能光領域の大きさを制御するにより、タンパク質より大きな被測定物であっても同様に測定できることを明らかにした。計算により、MMD の検出可能光領域は、ディップ点の周波数における電磁波の波長を λ_0 とすると、孔の内部、及び、主面から外部に約 $0.10 \times \lambda_0$ の空間になることが明らかになった。実験により、孔の内部、及び、主面から外部に約 300nm の検出可能光領域を有する MMD を用い、領域内に収まるサイズの平均粒径 100nm の粒子吸着によるディップ点の周波数変化を測定した結果、粒子溶液濃度 [mol L^{-1}] とディップ点の周波数変化量 [THz] の関係が Langmuir の式で近似される関係となり、タンパク質の特異吸着で得られる関係と同様になることが明らかになった。ディップ点の周波数 λ_0 と孔の周期 P は概ね $P=0.85 \lambda_0$ の関係を満たし、この関係を用いて MMD の周波数制御が行っている。この関係を用いて、被測定物が収まるように MMD の検出可能光領域を制御することで、タンパク質より大きな被測定物でも同様に定量測定できる可能性が高いことがこれらの結果から示唆された。

本研究により、MMD を用いた物質の定量測定は実現可能と結論した。原理が等価回路の C 成分の増加による共振周波数の低下で説明されるため、MMD 構造による検出可能光領域の制御で大きなサイズの被測定物であっても定量測定ができると考えられ、本研究のタンパク質以外に、ウイルス、細菌、細胞等の生体物質の定量測定の実現可能性が示唆された。