

4P041

## 低アスペクト比マイクロポアデバイスを用いた単一粒子検出

(阪大産研\*) ○有馬 彰秀\*, 筒井 真楠\*, 谷口 正輝\*

### Single-particle detections using low-aspect-ratio micro-pore devices

(ISIR, Osaka Univ.\* ) ○Akihide Arima\*, Makusu Tsutsui\*, Masateru Taniguchi\*

E-mail: akihide.arima32@sanken.osaka-u.ac.jp

[序] ナノメートルサイズの細孔（ナノポア）を通るイオン電流計測によって、ポアを通過する物体を1分子レベルで検出する手法は、DNAなどの生体分子の識別やその動的挙動の観察に広く応用されている。この固体ナノポアセンサーの研究において、近年ではその空間分解能の高さからグラフェンナノポアに代表される低アスペクト比ナノポアのセンサー応用に期待が集まっている[1, 2]。一方、我々のグループでは、微細加工技術を用いることで、ポアの直径を検出対象粒子よりも1桁以上小さい超低アスペクト比ポアセンサーを開発し、これを用いて単一粒子の形状認識や電氣的トラップへの応用に向けた研究を展開してきている[3]。今回は、超低アスペクト比構造を有する  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ポアデバイスを用いてイオン電流計測による単一粒子検出を行い、イオン電流応

答に現れる粒子表面の表面電荷状態の影響を調べた。

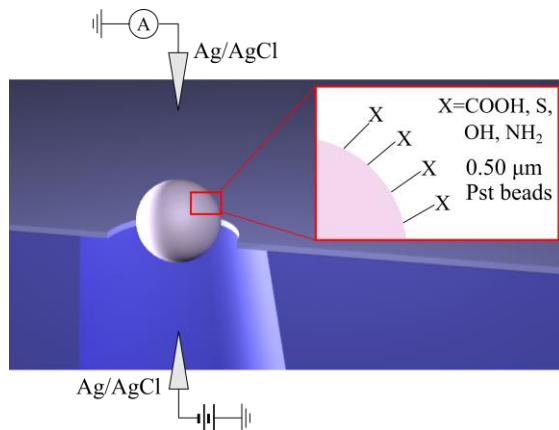


図1 低アスペクトマイクロポアデバイスと単一微粒子

[実験]  $\text{Si}_3\text{N}_4$  膜 (厚さ 50 nm) で両面が被覆された Si ウェハ (厚さ 0.5 mm) 上の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  膜を反応性イオンエッチング法により部分的に除去した後、KOH 水溶液を用いた Si(110)の異方性エッチングにより  $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレンを作製した。続いて、電子線描画法を用いてマイクロポア ( $\phi = 0.7 \mu\text{m}$ ) を描画し、反応性イオンエッチン

グ法によりこの部分の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  を掘削することで、低アスペクト比ポア構造をメンブレン中に作製した。このウェハとポリジメチルシロキサン(PDMS)で作製した流路を組み合わせたデバイスで、単一粒子検出実験を行った。検出実験では、Ag/AgCl 電極を用いて一定電圧  $V_{\text{ion}}$ のもと、表面修飾が異なる粒径  $d = 0.5 \mu\text{m}$  のポリスチレンビーズ分散溶液(溶媒: TE バッファ, pH 8.0)について、ポアを流れるイオン電流  $I_{\text{ion}}$  の時間変化を計測した。

[結果と考察] イオン電流のスパイク状の低下が観測された。この電流シグナルの時間幅とピーク高さの値として  $t_d$  と  $I_p$  を抽出し、その分布を調べた (図2)。ヒストグラムから得られたピークの値  $I_{Pst}$  と半値幅を図3にまとめた。また、表1には表面修飾の異なる粒子のゼータ電位を示した。

$I_{Pst}$  は計算により求めたポアを粒子が通過した際に得られる値よりもかなり小さな値が得られた。このことより、本実験において粒子はポア近傍まで電氣的に引きつけられるが、ポア壁面に生じる電気浸透流による抗力のため、粒子は通過することができていないと考えられる。その場合、粒子表面の負電荷量が大きいほど、粒子はより大きな電気泳動力を受けるため、より長い時間ポア近傍に滞在すると予測できる。実際に、 $t_d$  の分布を比較すると、最もゼータ電位の小さい NH<sub>2</sub> 修飾された粒子において、粒子の滞在時間が若干長くなっている傾向が観測された。さらに、シグナルの高さを調べたところ、粒子の粒径が同じであるにも関わらず、表面修飾の異なるそれぞれの粒子において、異なる  $I_p$  の分布が得られたことから、低アスペクト比ポアセンサーでは、粒子の体積だけでなく、その表面電荷密度の違いがイオン電流応答に影響することが分かった。この結果は、低アスペクト比マイクロポアデバイスにより粒子表面電荷状態の識別が可能であることが示唆された。

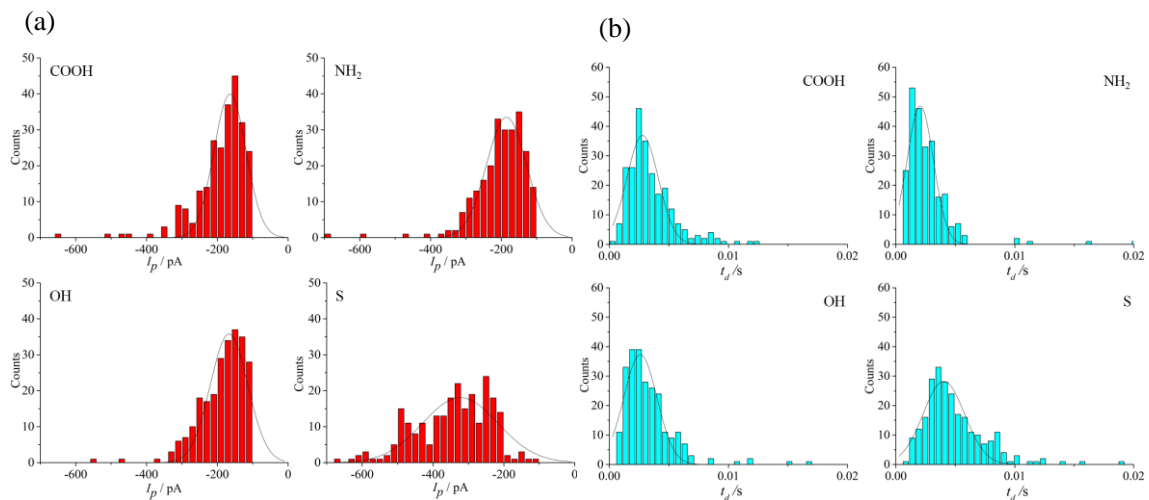


図2 シグナルのピーク値と時間のヒストグラム (a)ピーク値 (b)時間

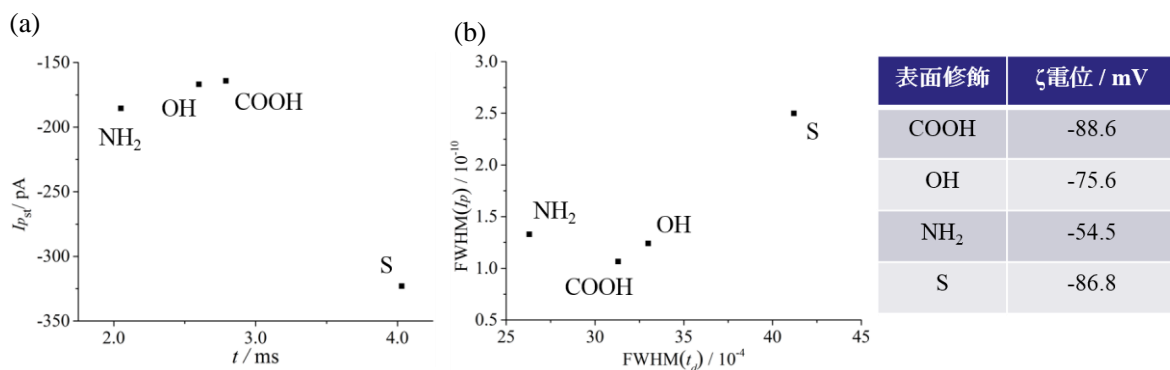


図3 (左)各粒子における (a)ヒストグラムのピーク値 (b)半値幅  
(右)表面修飾によるζ電位の違い

[1] M. Tsutsui et al., *ACS Nano*, 6, 3499 (2012) [2] M. Davenport et al., *ACS Nano*, 6, 8366 (2012)  
[3] M. Tsutsui et al., *Appl. Phys. Lett.*, 103, 013108 (2013).