

フォトニック結晶ナノレーザにおける試料吸着による屈折率変化の考察

A Consideration on Refractive-Index Change in Photonic Crystal Nanolasers by Protein Adsorption

○渡部工, 羽中田祥司, 西島喜明, 馬場俊彦 (横国大・院工)

○T. Watanabe, S. Hachuda, Y. Nishijima and T. Baba (Yokohama Nat'l Univ.)

E-mail: watanabe-takumi-dk@ynu.jp

医療・バイオ応用に向けて様々なフォトニックセンサが研究されている。我々は GaInAsP フォトニック結晶 (PC) ナノレーザバイオセンサ¹⁾ を用いストレプトアビジン (SA) といった汎用タンパク質のサブ aM からの超高感度検出を実証しており²⁾, 同様の検出が Si 共振器においても報告されている³⁾。このときの検出原理は, 共振モードがタンパク質の吸着による等価屈折率の上昇を感じ, その波長がレッドシフトした, とされている。しかし極低濃度において大きさ数 nm のタンパク質の吸着が有意なシフトを引き起こすほど屈折率を変化させるのか疑問である。前回, この現象の説明として, タンパク質とデバイス間の電子の授受による酸化還元反応の可能性を議論し, それによってわずかな吸着でも大きな屈折率変化を生むと予想した。今回は二つの方法で, 低濃度におけるシフト量を計算し, それらの妥当性を検討した。

まず従来, 議論されてきたメカニズムでのシフト量 $\Delta\lambda$ は以下の式(1)で与えられる⁴⁾。

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \sigma_p \alpha_{ex} \frac{2\pi\sqrt{n_m^2 - n_s^2}}{\epsilon_0 \lambda^2} \frac{n_m}{n_s^2} S \quad (1)$$

前回は 1 fM の免疫グロブリン G (IgG) の検出で $\Delta\lambda = 0.5$ nm を得た。まずこの $\Delta\lambda$ に対する吸着密度 σ_p を式(1)より求める。発振波長 $\lambda = 1600$ nm, タンパク質の過剰分極率 $\alpha_{ex} = 3.56 \times 10^{-37}$ Fm²⁴⁾, デバイスの屈折率 $n_m = 3.4$, 溶媒の屈折率 $n_s = 1.32$, 屈折率感度 $S = 400$ nm/RIU を代入すると吸着密度 σ_p は 1.3×10^9 molecules/mm²となった。一方, 1 fM の IgG 溶液を 1 ml 用意したことから見積もりを行うと, 液中には約 6×10^5 個の分子があり, それらが約 1 mm 角のデバイス表面に均等に吸着したとすると $\sigma_p = 6.0 \times 10^5$ molecules/mm²となった。つまり二つの求め方の間に 3 桁以上の違いがある。この密度から $\Delta\lambda$ を求めると $\Delta\lambda = 0.25$ pm となり実験より 3 桁以上小さい。

次にタンパク質の吸着によって半導体の表面酸化膜, 例えば Ga₂O₃ が還元され, 屈折率が上昇する状況を見積もる。デバイスに Fig. 1(a) のような導波路モデルを使い, 厚さ t_0 , 屈折率 1.5 の酸化膜が屈折率 3.4 に還元されたときの伝搬定数の変化から $\Delta\lambda$ を計算した。その結果, Fig. 1(b) に示すように, ナノスロットやエアブリッジ構造に寄与する偏波では 4.2 nm/nm となった。一方, IgG の分子量を 150 kDa, アミノ酸の分子量を 150 とすると IgG 一分子には 1000 個のアミノ酸があり, それが全て反応に関与すると仮定する。Ga₂O₃ が還元されるには 3 個の電子が必要なので, 1 fM の IgG 溶液 1 ml には 2.0×10^8 個の原子を還元する能力がある。GaInAsP の格子定数より, 1 mm² の原子一層には 2.9×10^{12} 個の原子があり, このうち 2.0×10^8 個が還元されればその比から $\Delta\lambda = 0.17$ pm となり, 上の考察と同じオーダーとなった。

以上より, 極低濃度検出を説明するにはセンサ領域への吸着が特に促進されるか, または屈折率変化ではなく $\Delta\lambda$ 自体を数桁増大させるメカニズムが必要である。実際, 本センサでは, 表面の帯電状況を変えるとセンサ領域での反応や吸着も変化することが確認されており⁵⁾, エアブリッジ構造がこの効果を増強している可能性がある。本大会ではその効果の検証を交えつつ, 考察を深める。

本研究は科研費基盤(S)の援助を得て行われた。 参考文献 1) S. Kita, et al., Opt. Express **97**, 161108 (2011). 2) S. Hachuda et al., Opt. Express **21**, 12815 (2013). 3) D. Yang, et al., Appl. Phys. Lett. **105**, 063118 (2014). 4) M.G. Scullion, et al., Biosensors and Bioelectronics **27**, 101, (2011). 5) 高橋ら, 本大会, 2015.

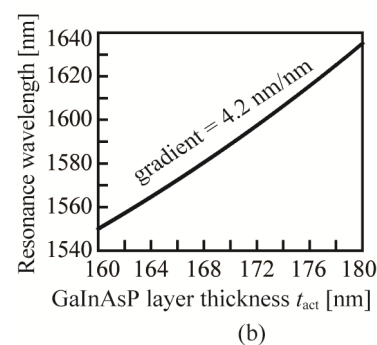
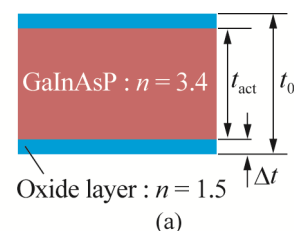


Fig. 1 酸化膜の還元による $\Delta\lambda$ の見積もり. (a) 計算モデル. (b) GaInAsP 層の厚さ t_{act} に対する共振波長. (a) で計算した伝搬定数から共振波長を計算した。