

190 共鳴フリー-SERS分析法の創出とタンパク質機能の解明	馬越 貴之
---------------------------------	-------

**【目的】** 生体分子の化学結合状態を 1 分子レベルで分析・理解することは、生命科学において基礎的かつ重要なトピックである。1 分子化学結合分析には、金属ナノ構造上での局在プラズモン共鳴現象で生成する増強電場が有効である (SERS 分析法)。分子 1 つからでも分子結合に由来するラマン散乱光を検出できるため、生命科学のみならず様々な分野で用いられてきた。しかしながら、文字通り特定波長でのみ起こる現象であるため、動作波長が限られるという課題を抱えていた。様々な波長で同一分子を 1 分子 SERS 分析できれば、化学結合を網羅的に検出することができるようになる。本研究では、共鳴フリーなプラズモン超集束という現象を用いることによって、革新的な波長の自由度を持つ新規 1 分子 SERS 分析法を創出することを目的とした。プラズモン超集束は、テーパー型金属構造上を伝播するプラズモンによって先端に増強電場を生成する現象である。プラズモンの共鳴ではなく伝播に立脚した共鳴フリーな現象であるため、極めて広帯域に動作すると考えた。本技術を用いれば、生体分子を 1 分子レベルで波長スクリーニングして網羅的に化学結合分析できるため、分子内の結合状態を極めて詳細に解明できるようになる。

**【方法】** まずは、電磁場シミュレーションを用いて、共鳴フリー-SERS 分析法に最適なテーパー型金属構造を模索した。金属の種類やテーパー構造の角度、膜厚など網羅的に計算した。また、実際に電子ビームリソグラフィでテーパー構造を作製し、実験的にも所望の特性が得られていることを確認した。テーパー構造の最適化の後、高波長自由度 SERS 分析装置の開発に取り組んだ。442 nm~785 nm にわたる様々な波長を同時入射、同時検出できる系を構築した。テーパー構造先端からのみのラマン散乱光を検出するため、共焦点系も導入した。また、開発途中で、構造的なドリフトによって、安定的に計測が行えない事案も見出したため、高安定化ステージなどを導入し、装置の安定化も図った。ある程度装置が完成した後、実際に色素分子を用いて高波長自由度 SERS 分析装置の特性を評価した。様々な波長で同一分子を計測するだけでなく、その計測感度や速度、安定性なども評価した。

**【結果】** 電磁場シミュレーションより、532 nm、633 nm、785 nm などの比較的長波長な可視光では、テーパー構造の材料として銀を用いた方が良いことを見出した。一方で、442 nm など短波長も同時に用いる場合はアルミニウムが適していた。実験的にも、同様の結果を得ることができた。次に、上記に示した通り、442 nm、488 nm、532 nm、633 nm、785 nm の波長を同時に照射できる高波長自由度 SERS 分析装置の構築に成功した。有機分子 4-aminothiophenol を試料として、実際に同一分子を多波長で SERS 分析することに成功した。また、波長に応じて異なるラマンスペクトルが得られており、より詳細な分析が可能であることを示すこともできた。計測感度や速度など、まだまだ改善の余地はあるが、高波長自由度 SERS 分析技術を実現することができた。

共鳴フリーなプラズモン超集束と高波長自由度 SERS 分析法

