

令和 2 年 7 月 8 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05649

研究課題名（和文）金属導波路を用いたテラヘルツ・遠赤外分光法の高度化と動的揺らぎの研究展開

研究課題名（英文）Study on dynamic fluctuation by terahertz and FIR spectroscopy using metal parallel-plate waveguide

研究代表者

山本 晃司（Yamamoto, Kohji）

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・准教授

研究者番号：70432507

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,900,000円

研究成果の概要（和文）：金属平板導波路にプラスチックチューブを挟んだ系に対して、テラヘルツ波透過特性を明らかにし、微量液体流路をカップルさせたテラヘルツ分光法の開発に一步前進した。特に、分光実験から得られた知見と合わせて、有限要素法と用いたシミュレーション実験からの治験を組み合わせることで、減衰ピーク共鳴を利用することが可能であることを明らかにした。

ヒト成人ヘモグロビン（Hb A）の酸素親和性制御に起因するタンパク質主鎖のゆらぎに関して、Hb Aの協同的酸素結合機能発現における遠赤外領域振動の差異の実験的検証を行い、脱酸素形と酸素形のテラヘルツ領域における主鎖のゆらぎの差異を検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

金属導波路を用いて微量液体流路をカップルさせた金属導波路の開発を進めることができ、タンパク質の「機能発現」と「テラヘルツ領域の揺らぎ」との相関に関する新たな知見を得ることに成功し、テラヘルツ分光が動的揺らぎの研究の進展に寄与することを示した。

研究成果の概要（英文）：We investigated transmission properties of terahertz waves through a metal parallel-plate waveguide sandwiching a plastic tube. We have taken a forward step in developing terahertz spectroscopy using a minute fluid channel. We showed that loss attenuation peaks observed in this system can be applied in terahertz spectroscopy from terahertz spectroscopic experimental results as well as those obtained by computer simulations based on the finite element method. We experimentally investigated dynamical fluctuations of human adult hemoglobin (Hb A) originating controlling oxygen affinity. We obtained fluctuation properties of the main chain of Hb A in high and low oxygen affinity.

研究分野：テラヘルツ分光

キーワード：テラヘルツ分光 遠赤外分光 金属導波路

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ時間領域分光法では、フェムト秒レーザーパルスでテラヘルツ発生素子に照射し、サブピコ秒のパルス幅を持つテラヘルツ波を発生させ、これを空間伝播させた後に、テラヘルツ発生素子において検出する。この分光法ではテラヘルツ波の電場を時間領域で検出するため、そのシグナルをフーリエ変換することで、周波数領域のデータ(電場の振幅と位相)を直接的に扱うことができる。これにより、テラヘルツ帯の複素屈折率の実部・虚部のスペクトルを同時に測定することができる。このデータから、屈折率と吸光係数スペクトルや、複素誘電率スペクトル(誘電率の実部・虚部のスペクトル)も得ることができる。

テラヘルツ時間領域分光測定は、主に、10 mm以上のサイズを持つ均一なバルク試料に対して行われてきた。このような試料サイズに関する制限は、波長よりも小さい領域に電磁波を集光することが不可能であること(回折限界)に起因するため、サブミリメートル以下のサイズの対象物をテラヘルツ時間領域分光測定することは非常に困難な状況である(0.1 THzの電磁波の波長=3 mm)。この結果、テラヘルツ帯の研究対象となる物質系は非常に限定されたものとなり、テラヘルツ分光の研究の広がりを阻害してきた。この問題を解決するため、テラヘルツ波に対して波長よりも狭い間隔でも電磁波の透過(超集束)が可能となる金属導波路を用いることで、従来の1/100のサイズの試料、または、1%の分量の試料に対して、定量的なテラヘルツ時間領域分光測定が可能であることを実証した。

タンパク質に代表される生体分子において、低振動数領域での大振幅振動および動的揺らぎが、機能発現にとって重要な役割を果たしていることが指摘されている。つまり、x線構造解析などで得られる静的な構造だけでなく、動的な構造揺らぎを明らかにすることによって、機能発現に対する新たな知見が得られることが期待される。遥動散逸定理から、テラヘルツ領域における誘電応答は、双極子の自己相関関数の周波数特性に比例する。よって、テラヘルツ時間領域分光測定によって、双極子揺らぎを通してタンパク質の動的揺らぎを直接観測することが可能である。

これらのことから、テラヘルツ時間領域分光法を、より小さいサイズの試料に対して可能とすることによって、動的揺らぎの研究に大きく寄与することが期待されている。

### 2. 研究の目的

本研究では、金属導波路を用いて微量粉末試料の定量的なテラヘルツ時間領域分光法を確立した土台を基盤として、微量液体流路をカップルさせた金属導波路の高度化を達成し、タンパク質の「機能発現」と「テラヘルツ領域の揺らぎ」との相関に関する新たな知見を得ることを目標とする。また、実験および計算機シミュレーションによって、流路によるテラヘルツ波応答の特性を明らかにすることで、微量液体流路をカップルさせた金属導波路の新たな応用方法を検討する。

### 3. 研究の方法

本研究では、次の課題を取り組んだ。

課題[1]: 金属導波路と微量液体流路をカップルさせたシステムのテラヘルツ波応答の解明と応用

課題[2]: 金属導波路と微量液体流路をカップルさせたテラヘルツ分光法の確立

課題[1]では、図1の金属導波路の金属平板間に、微量液体流路としてプラスチックチューブを挿入したシステムに対して、テラヘルツ時間領域分光測定により実験的に透過特性を調べるとともに、有限要素法を用いた計算機シミュレーションによる透過解析を行った。

課題[2]では、図1のシステムに対する水の透過実験を行い、構造に由来するテラヘルツ波の減衰ピークによって、測定感度改善を試みた。また、ここで開発した手法を用いて、ヒト成人ヘモグロビンの機能発現と動的揺らぎの相関について新たな知見を得た。

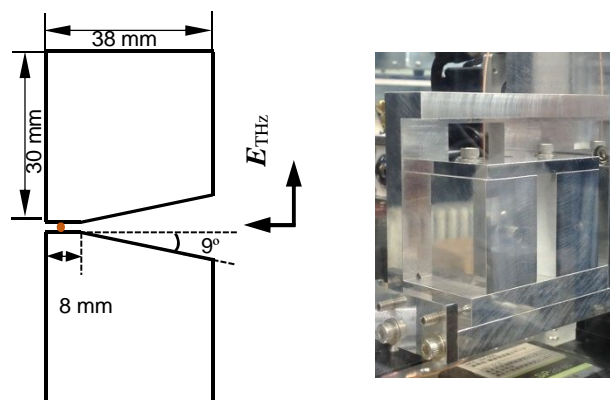


図1 微量液体流路としてプラスチックチューブを挿入した金属導波路システム

#### 4. 研究成果

図1のシステムに対して、時間領域でガウス型波形を持つ電磁波を波源として電磁波解析の結果を示す。金属平板間にチューブを配置することで、鋭敏な減衰ピークが存在することが明らかとなった。また、そのピーク周波数は、チューブの内径を変えることで変化することがわかり、広帯域テラヘルツ波だけでなく、狭帯域テラヘルツ波でも感度よく分光応用できることを示唆した。

電磁波の空間パターンを解析することにより、金属平行平板のカットオフ周波数と、チューブを挟んだ近傍におけるカットオフのミスマッチから急峻なトラップバンドが形成されること、また、

そのトラップされる電磁波はチューブの両端を反射する共振器モードとして動作していることが明らかになった。

ヒト成人ヘモグロビン (Hb A) の酸素親和性制御に起因するタンパク質主鎖のゆらぎに関して、Hb A の協同的酸素結合機能発現における遠赤外領域振動の差異の実験的検証を行い、脱酸素形と酸素形における共鳴ラマンスペクトルでは差異が観測されるが、テラヘルツ分光ではその差異が検出されないことがわかった (図3)。このことから、共鳴ラマン分光法で観測されるポルフィリン近傍における動的揺らぎと、テラヘルツ分光で観測される主鎖のゆらぎに違いがあることが示唆された。

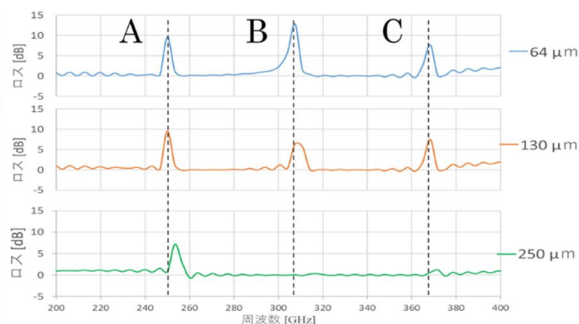


図2 金属導波路システムを透過したテラヘルツ波の減衰スペクトル

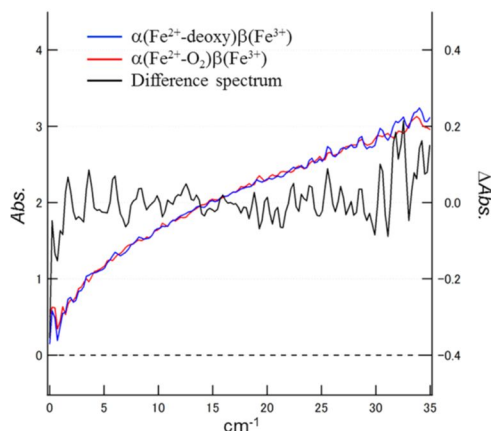


図3 Hb A の脱酸素形と酸素形におけるテラヘルツ吸収スペクトル。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 23.Takayasu Kawasaki, Yudai Izumi, Gaku Ohori, Hideaki Kitahara, Takashi Furuya, Kohji Yamamoto, Koichi Matsuo, Masahiko Tani, and Koichi Tsukiyama	4. 巻 40
2. 論文標題 Study on Irradiation Effect of Mid-Infrared Free Electron Laser on Hen Egg-White Lysozyme by Using Terahertz-Time Domain Spectroscopy and Synchrotron-Radiation Vacuum-Ultraviolet Circular-Dichroism Spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves	6. 最初と最後の頁 998-1009
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10762-019-00626-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 23.Takayasu Kawasaki, Yudai Izumi, Gaku Ohori, Hideaki Kitahara, Takashi Furuya, Kohji Yamamoto, Koichi Matsuo, Masahiko Tani, and Koichi Tsukiyama	4. 巻 40
2. 論文標題 Study on Irradiation Effect of Mid-Infrared Free Electron Laser on Hen Egg-White Lysozyme by Using Terahertz-Time Domain Spectroscopy and Synchrotron-Radiation Vacuum-Ultraviolet Circular-Dichroism Spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves	6. 最初と最後の頁 998-1009
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） doi: <a href="https://doi.org/10.1007/s10762-019-00626-9">https://doi.org/10.1007/s10762-019-00626-9</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 delos Santos Ramon, Mag-usara Valynn, Tuico Anthony, Copa Vernalyn, Salvador Arnel, Yamamoto Kohji, Somintac Armando, Kurihara Kazuyoshi, Kitahara Hideaki, Tani Masahiko, Estacio Elmer	4. 巻 39
2. 論文標題 Metal-Coated <100>-Cut GaAs Coupled to Tapered Parallel-Plate Waveguide for Cherenkov-Phase-Matched Terahertz Detection: Influence of Crystal Thickness	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves	6. 最初と最後の頁 514 ~ 520
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10762-018-0487-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Alexander De Los Reyes, Elizabeth Ann Prieto, Karim Omambac, Jeremy Porquez, Lorenzo Lopez Jr., Karl Cedric Gonzales, John Daniel Vasquez, Mae Agatha Tumanguil, Joselito Muldera, Kohji Yamamoto, Masahiko Tani, Armando Somintac, Elmer Estacio, and Arnel Salvador	4. 巻 17
2. 論文標題 Terahertz emission characteristics of GaMnAs dilute magnetic semiconductor under 650 mT external magnetic field	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Curr. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 522-526
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cap.2017.01.021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shigenori Nagatomo, Kazuya Saito, Kohji Yamamoto, Takashi Ogura, Teizo Kitagawa, and Masako Nagai	4. 巻 56
2. 論文標題 Heterogeneity between Two Subunits of $\alpha_2\beta_2$ Human Hemoglobin and O <sub>2</sub> Binding Properties: Raman, <sup>1</sup> H Nuclear Magnetic Resonance, and Terahertz Spectra	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Biochemistry	6. 最初と最後の頁 6125-6136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.biochem.7b00733	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 山本晃司	4. 巻 101
2. 論文標題 テラヘルツ時間領域分光で迫る物質の性質	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 照明学会誌	6. 最初と最後の頁 500-503
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jessica P. C. Afalla <sup>1</sup> , Alexander de los Reyes, Valynn Katrine Mag-usara, Lorenzo P. Lopez Jr., Kohji Yamamoto, Masahiko Tani, Armando S. Somintac, Arnel A. Salvador, and Elmer S. Estacio	4. 巻 7
2. 論文標題 Defect-related temperature dependence of THz emission from GaAs/AlGaAs MQWs grown on off- and on-axis substrates	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 125210
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5004597	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 .Osamu Morikawa, Kohji Yamamoto, Kazuyoshi Kurihara, Masahiko Tani, Fumiyoshi Kuwashima, and Masanori Hangyo	4. 巻 33
2. 論文標題 Aperture transmission measurements for characterization of focusing of sub-THz radiation	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America B	6. 最初と最後の頁 1456-1461
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/JOSAB.33.001456	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Osamu Morikawa, Kohji Yamamoto, Kazuyoshi Kurihara, Masahiko Tani, Fumiyoshi Kuwashima, and Masanori Hangyo	4. 巻 33
2. 論文標題 Sub-terahertz imaging using a low-cost system with photoconductive spiral antennas and a multimode laser diode	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America B	6. 最初と最後の頁 1940-1948
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) JOSAB.33.001940	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ramon delos Santos, Shinpei Ozawa, Valynn Mag-usara, Syougo Azuma, Anthony Tuico, Vernalyn Copa, Arnel Salvador, Kohji Yamamoto, Armando Somintac, Kazuyoshi Kurihara, Hideaki Kitahara, Masahiko Tani and Elmer Estacio	4. 巻 24
2. 論文標題 Cherenkov-phase-matched nonlinear optical detection and generation of terahertz radiation via GaAs with metal-coating	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 24980-24988
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.24.024980	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Valynn Katrine Mag-usara, Stefan Funkner, Gudrun Niehues, Elizabeth Ann Prieto, Maria Herminia Balgos, Armando Somintac, Elmer Estacio, Arnel Salvador, Kohji Yamamoto, Muneaki Hase, Tani, Masahiko	4. 巻 24
2. 論文標題 Low temperature-grown GaAs carrier lifetime evaluation by double optical pump terahertz time-domain emission spectroscopy	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 26175-26185
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.24.026175	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Valynn Katrine Mag-usara, Dmitry S. Bulgarevich, Mitsuharu Shiwa, Makoto Watanabe, Masahiko Tani	4. 巻 56
2. 論文標題 External magnetic field distribution mapping using terahertz emission from indium antimonide	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 28001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.7567/JJAP.56.028001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 1件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 105.Hideaki Kitahara, Hiroyuki Kato, Masaki Shiihara, Akihiro Esaki, Kohji Yamamoto, Takashi Furuya, Elmer Estacio, Michael I. Bakunov, Masahiko Tani
2. 発表標題 High Sensitivity Heterodyne Electro-Optic Sampling with 1.5- $\mu$ m Laser Source
3. 学会等名 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hideaki Kitahara, Takuro Yasumoto, Daiki Goto, Hiroyuki Kato, Masaki Shiihara, Jessica Afalla, Valynn Mag-usara, Kohji Yamamoto, Takashi Furuya, Elmer Estacio, Michael Bakunov, and Masahiko Tani
2. 発表標題 Sensitivity Improvement of Heterodyne Electro-Optic Sampling
3. 学会等名 2018 43rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuyoshi Kurihara, Kiwamu Kusama, Fumfiyoshi Kuwashima, Osamu Morikawa, Kohji Yamamoto, Hideaki Kitahara, Masahiko Tani
2. 発表標題 Enhancement Of Electric Field In E-plane Sectoral Horn Antennas Reconsidered By Plasmonic Theory
3. 学会等名 2018 43rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田畑 寛明, 北原 英明, 山本 晃司, 福井 一俊, 栗原 一嘉, 森川 治, 桑島 史欣, 谷 正彦
2. 発表標題 FDTD法による金属テーパー構造導波路のテラヘルツ帯透過解析
3. 学会等名 第78回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 長友 重紀, 山本 晃司, 長井 雅子, 北川 禎三
2. 発表標題 ヘモグロビンの酸素親和性制御に関する大振幅ヘリックス揺らぎの実験的検証: テラヘルツ (THz) 分光による研究
3. 学会等名 日本生物物理学会第55回年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山本晃司, 田畑 寛明, 倉田 樹, 福井 一俊, 神原 大, 栗原 一嘉, 森川 治, 桑島史欣, 谷正彦
2. 発表標題 金属平行平板を用いたテラヘルツ分光とその定量解析
3. 学会等名 分子科学討論会2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Kohji Yamamoto, Hiroaki Tahata, Itsuki Kurata, Kazuyoshi Kurihara, Fumiyoshi Kuwashima, Osamu Morikawa, Ohki Kambara, Kazutoshi Fukui, and Masahiko Tani
2. 発表標題 Application of a metal parallel-plate waveguide to terahertz spectroscopy
3. 学会等名 Molecular Photoscience Research Center International Symposium (招待講演)
4. 発表年 2017年



〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----