

機関番号：13601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009 年度～平成 2010 年度

課題番号：21760036

研究課題名(和文)

サブ波長構造を用いたテラヘルツ表面プラズモンの高局在化と高感度センシングへの応用

研究課題名(英文)

Localization of terahertz surface plasmons by using sub-wavelength structure.

研究代表者：宮丸 文章 (MIYAMARU FUMIAKI) 信州大学 理学部 助教

研究者番号：20419005

研究成果の概要(和文)：本研究では、サブ波長構造を用いることにより、Spoof 表面プラズモンを励起させることに成功した。Spoof 表面プラズモンは、従来の表面と比較して、空間的にも時間的にもより表面に局在しているため、センシング感度を高感度にすることができる。さらに、メタマテリアルと呼ばれるサブ波長共鳴構造を作製し、その共鳴周波数付近でセンシング感度が劇的に向上させることに成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we investigated the excitation of the spoof surface plasmons by using sub-wavelength metallic structure. Such a spoof surface plasmons can be more localized in the vicinity of the metal surface in comparison to the conventional surface waves, indicating that the sensitivity can be increased. We also investigated the resonant sub-wavelength structure and confirmed that we can obtain the highly sensitive detection of the tiny sample.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2010 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：光学素子・装置・材料

1. 研究開始当初の背景

本研究の目的は、プラズモニック結晶による高感度な表面プラズモンセンサを開発し、それをテラヘルツ光によるDNAのラベルフリー診断や病理画像診断に応用する可能性を開拓することである。

テラヘルツ光とは、光と電波の境界領域に位置する電磁波であり、他の周波数領域には無い特長を利用し、近年様々な実用分野への応用が提案されている。その一つとして、DNAのラベルフリー診断がある[1-2]。なぜなら、DNAの2重らせん構造の形成は4種の核酸のペアが

水素結合により結合することで形成されており、この水素結合を介した分子間振動の振動数はテラヘルツ領域の周波数であるためである。一方、テラヘルツ光を用いた病理画像診断の例として、癌組織の分光及び診断法などが研究されており、後に述べるように、他の分光手法と比較してテラヘルツ光の持つメリットを生かした癌診断手法を確立しようとする研究報告がある[3-4]。しかし実用化のためには、次に示すような技術課題を残しており、実用化には至っていない。本研究では、プラズモニック結晶による表面プラズモンセンサを開発することにより、それ

らの技術課題を克服し、テラヘルツ光によるDNAのラベルフリー診断や病理画像診断など、高感度センシングが必要とされている分野の技術開発を飛躍的に加速させることを目的とする。

2. 研究の目的

【 従来技術の問題点 】

(1) 極微量物質における測定感度不足

現在のDNAの診断技術では、RI(放射性同位元素)や蛍光色素でラベリングする必要があり、煩雑な前処理を行う必要がある。そこでラベルフリー診断の実現が非常に期待されており、テラヘルツ分光による方法が提案されている。しかしながら、診断で使用するDNA試料の量は極微量であり、特に可視光や近赤外と比べ波長が長いテラヘルツ光では、測定感度が不足する問題がある。

(2) 薄膜試料における測定感度不足

一方、病理診断などで用いる試料は一般的に薄く、数 μm 程度であり、テラヘルツ領域ではその高い透過性を活かすことにより、従来に比べ試料を厚くすることができ(数百 μm 程度)、より大きな組織の状態を一度に観測することができる。しかし数百 μm といえども、テラヘルツ光にとっては十分な情報量を得ることができない厚みであり、測定感度が不足する問題がある。

【 研究目的 】

本研究では、以下に示す方法により上記の2つの問題の解決を目指す。

上記の2つの問題点に共通するのが、極微量試料または薄膜試料をテラヘルツ分光により測定する際の、測定感度の不足である。そこで本研究では、テラヘルツ領域において、プラズモニック結晶を用いた測定感度の向上手法を提案する。プラズモニック結晶とは、金属に電磁波(光)の波長と同程度の周期構造を施した人工構造物である。特に金属薄膜に2次元状に開口をあけた、金属開口アレイ型プラズモニック結晶では、ある周波数で共鳴的に透過率が增大する、“異常透過現象”が現れる。この異常透過現象は、金属表面に強く局在している表面プラズモンポラリトンによって引き起こされるものであり、金属表面に置かれた試料の微小な変化によって影響を受ける。その特性を利用して、DNAのハイブリッド状態の有無を検出したり、病理試料における正常・非正常組織間の識別を行うことができるようになることが期待できる。

このような、プラズモニック結晶による微量試料測定感度の向上は、平成18~19年度に採択された若手研究(B)「表面光局在素子を用いたテラヘルツ微量成分検出装置の開発と指紋イメージングへの応用」で行い、実際に、プラスチックテー

プ表面に付着した指紋の高感度検出に成功している(図1)。本研究では、プラズモニック結晶構造に新たな概念を元にした改良を加え、それらの高感度検出技術をさらに発展させることにより、DNAのラベルフリー診断の実現や、テラヘルツ光による病理画像診断の技術開発を飛躍的に発展させることを目的としている。

3. 研究の方法

具体的には、プラズモニック結晶構造の改良方法として、次の2つを提案する。1つ目は、Spoof表面プラズモンと呼ばれる、擬似的な低周波表面プラズモンを励起させる構造を用いる。テラヘルツ領域では、ほとんどの金属はほぼ完全導体として振る舞うため、可視光や近赤外領域の場合と比較して、金属表面への局在強度が低くなってしまふ。そのため、表面プラズモンを用いたセンシングの感度も低下してしまふ。そこで、電磁波の波長よりも十分に小さい構造を金属表面に作製することによって、擬似的に金属表面のプラズマ振動数を減少させ、それ故、表面プラズモンの分散曲線が、テラヘルツ領域に近い低周波数側に下げることができる。これは表面プラズモンの金属表面への局在強度を向上させる結果となり、それ故、センシング感度も向上することが期待される。

2つめの改良方法として、サブ波長共鳴構造を用いる。サブ波長サイズの金属構造によって、その形状とサイズに応じて、ある周波数に共鳴的な透過(または反射)特性が生じることが知られている。この共鳴周波数において、その形状に応じた光局在効果を示す。本研究では、このサブ波長サイズの構造を金属表面に作製し、なおかつ光の波長サイズの周期構造を融合させることにより、周期的共鳴及びサブ波長共鳴を同時に励起させ、光の局在強度を飛躍的に増強させることを目指す。

4. 研究成果

(1) Spoof表面プラズモンによる光局在強度の増大

Spoof表面プラズモンとは、人工構造により有効的な誘電率が形成された金属表面に励起される擬似的な表面プラズモンのことである。本研究ではまず、Spoof表面プラズモンを励起できるような2重構造金属開口アレイの作製を行った。その透過特性を測定したところ、Spoof表面プラズモンが励起されたことにより、共鳴透過ピークの大幅な増大や、線幅の狭線化が実現できることが確認された。これは、Spoof表面プラズモンにより、プラズモニック結晶による微量物質センシングの感度が向上されることが十分期待される結果である。この結果を踏まえ、本研究ではさらに、Spoof表面プラズモンによる異常透過現象の詳細な特性を調べた。上記の方法では、表面プラズモンを励起させ

る回折格子の役割をする周期系と、有効誘電率を形成するサブ波長開口の周期系との位置関係は同調されていなかった。そこで、本研究において、レーザー加工機を自作することにより、より綿密な加工を可能にした。それにより、両周期系の位置関係を同調させることができ、Spoon表面プラズモンに関するより詳細な性質を観測することができた。具体的には、サブ波長開口の開口径を大きくすることにより、異常透過のピーク周波数が低周波数側にシフトする様子を観測した。これは、サブ波長構造の開口によって、金属の有効的なプラズマ周波数が通常の紫外領域からテラヘルツ領域まで低下したことを意味しており、それ故Spoon表面プラズモンが励起されたことが実証された。また、Spoon表面プラズモンの分散関係に関する解析的な計算結果と比較したところ、実験で観測された異常透過の共鳴周波数と非常に一致が見られており、理論的な面からもSpoon表面プラズモンの存在が裏付けられた結果である。

(2) サブ波長共鳴と周期共鳴の融合による光局在強度の増大

2つ目の方法において、金属表面にサブ波長共鳴を起こしうる構造を作製した。その透過特性を測定したところ、構造に特有な共鳴特性が観測された。これは、サブ波長共鳴構造によって、微量物質の高感度センシングが可能になることを意味している。サブ波長共鳴構造を用いることにより、センシング応用にとどまらず、高感度イメージング応用に際しても、高感度化と高空間分解能化の両立を実現できることが期待できる。実際、作製したサブ波長共鳴構造に、水やアルコールを微量滴下し、その際の透過スペクトルを観測したところ、ピーク周波数付近のスペクトルに非常に大きな変化が観測された。本研究ではさらに、サブ波長の共鳴構造を変化させることにより、共鳴ピークの先鋭度(Q値)がより大きくなる構造を作製した。Q値の増大は、センシング応用においてより感度の高いセンシングが可能になったことを意味している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (すべて査読あり)

F. Miyamaru, M. W. Takeda, and K. Taima, Characterization of Terahertz Metamaterials Fabricated on Flexible Plastic Films: Toward Fabrication of Bulk Metamaterials in Terahertz Region, *Applied Physics Express*, 査読有 2, 042001-1~042001-3, 2009.

H. Hoshina, A. Hayashi, N. Miyoshi, F. Miyamaru, and C. Otani, Terahertz pulsed

imaging of frozen biological tissues, *Applied Physics Letters*, 94, 123901-1~123901-3, 2009.

F. Miyamaru and M. W. Takeda, Coupling between localized resonance and excitation of surface waves in metal hole arrays, *Physical Review B*, 79, 153405-1~153405-4, 2009.

F. Miyamaru and M. Hangyo Temporal spectroscopic characteristics of terahertz pulses transmitted through metal hole arrays *電気学会論文誌*, 129-A, 751-754, 2009.

F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, L. Liu, B. Hou, W. Wen, and P. Sheng, Emission of terahertz radiations from fractal antennas, *Applied Physics Letters*, 95, 221111-1~221111-3, 2009.

K. Takano, T. Kawabata, C.-F. Hsieh, K. Akiyama, F. Miyamaru, Y. Abe, T. Tokuda, R.-P. Pan, C.-L. Pan, and M. Hangyo, Fabrication of terahertz planar metamaterials using a super-fine ink-jet printer, *Applied Physics Express*, 3, 016701-1~016701-3, 2009.

K. Takano, K. Shibuya, K. Akiyama, T. Nagashima, F. Miyamaru, and M. Hangyo, A metal-to-insulator transition in cut-wire-grid metamaterials in the terahertz region, *Journal of Applied Physics*, 107, 024907-1~024907-6, 2010.

F. Miyamaru, Y. Sasagawa, and M. W. Takeda, Effect of dielectric thin films on reflection properties of metal hole arrays, *Applied Physics Letters*, 96, 021106-1~021106-3, 2010.

F. Miyamaru, S. Kubota, K. Taima, K. Takano, M. Hangyo, and M. W. Takeda, Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range, *Applied Physics Letters*, 96, 081105-1~081105-3, 2010.

F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, B. Hou, W. Wen, and P. Sheng, Characteristics of terahertz radiations emitted from fractal photoconductive antennas, *Japanese Journal of Applied Physics*, 49, 070205-1 - 070295-3, 2010.

F. Miyamaru, M. Kamijyo, K. Takano, M. Hangyo, H. Miyazaki, and M. W. Takeda, Characteristics and generation process of surface waves excited on a perfect conductor surface, *Optics Express*, 18, 17576-17583, 2010.

Xiao Xiao, Wu Jinbo, Yuki Sasagawa, Fumiaki Miyamaru, Mengying Zhang, Mitsuo W. Takeda, Chunyin Qiu, Weijia Wen, and Ping Sheng,

Resonant terahertz transmissions through metal hole array on silicon substrate, *Optics Express*, 18, 18558-18564, 2010.

Xiao Xiao, Wu Jinbo, Fumiaki Miyamaru, Mengying Zhang, Shunbo Li, Mitsuo W. Takeda, Weijia Wen, and Ping Sheng Fano effect of metamaterial resonance in terahertz extraordinary transmission, *Applied Physics Letters*, 98, 011911-1 -011911-3, 2010.

[学会発表]

T. Kawabata, K. Takano, C. -F. Hsieh, K. Akiyama, E. Miyamaru, M. W. Takeda, Y. Abec, Y. Tokuda, R. -P. Pan, C. -L. Pan, and M. Hangyo, Application of Super-Fine Ink-Jet Printer to Fabrication of Terahertz Planer Metamaterials, The 37th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2009/9/24, Busan, Korea.

E. Miyamaru, K. Takano, M. Takeda, and M. Hangyo Transmission characteristics of terahertz metamaterials fabricated on polyethylene terephthalate films, THE THIRD INTERNATIONAL CONGRESS ON ADVANCED ELECTROMAGNETIC MATERIALS IN MICROWAVES AND OPTICS, 2009/9/2, London, United Kingdom.

K. Takano, T. Kawabata, C-F. Hsieh, E. Miyamaru, M. Takeda, R-P. Pan, C-L. Pan, and M. Hangyo, Terahertz metamaterials fabricated with the super-fine ink-jet printer, THE THIRD INTERNATIONAL CONGRESS ON ADVANCED ELECTROMAGNETIC MATERIALS IN MICROWAVES AND OPTICS, 2009/9/2, London, United Kingdom

Hiromichi Hoshina, Aya Hayashi, Norio Miyoshi, Yukihiro Fukunaga, Fumiaki Miyamaru, and Chiko Otani, Terahertz pulsed imaging of frozen biological tissues, The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2009/9/22, Busan, Korea.

S. Kubota, E. Miyamaru, M. W. Takeda, Terahertz response of fractal metamaterials, The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2009/9/23, Busan, Korea.

K. Takano, E. Miyamaru, K. Akiyama, Y.

Chiyoda, H. Miyazaki, M. W. Takeda, Y. Abed, Y. Tokuda, H. Ito, and M. Hangyo, Terahertz Responses of Near Self-Complementary Metallic Checkerboard Patterns, The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2009/9/23, Busan, Korea.

E. Miyamaru, M. W. Takeda, K. Takano, M. Hangyo, and H. Miyazaki, Coupling Between Localized Resonances and Lattice Resonances in Resonant Transmission of Metal Hole Arrays, The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2009/9/22, Busan, Korea.

窪田志朗, 宮丸文章, 武田三男, 萩行正憲, 高野恵介, 宮寄博司, フラクタルメタマテリアルのテラヘルツ電磁応答, 第70回応用物理学会学術講演会, 2009/9/8, 富山大学.

上條元嗣, 宮丸文章, 武田三男, 萩行正憲, 高野恵介, 宮寄博司, カゴメ格子金属開口アレイのテラヘルツ応答特性, 第70回応用物理学会学術講演会, 2009/9/8, 富山大学.

高野恵介, 宮丸文章, 松本直樹, 宮崎博司, 武田三男, 萩行正憲, 誘電体球からなるテラヘルツメタマテリアル, 第70回応用物理学会学術講演会, 2009/9/8, 富山大学.

笹川侑希, 宮丸文章, 武田三男, 宮寄博司, テラヘルツ領域における金属開孔アレイを用いた高感度反射センシングの研究, 日本分光学会 テラヘルツ分光部会 国際シンポジウム 「テラヘルツ分光法の最先端Ⅲ～テラヘルツ領域の次世代技術と高感度分光・計測への応用～」, 2009/10/22, 福井大学.

保科宏道, 林朱, 三好憲男, 福永幸裕, 宮丸文章, 大谷知行, 凍結生体組織のテラヘルツパルスによるイメージング, 日本分光学会 テラヘルツ分光部会 国際シンポジウム 「テラヘルツ分光法の最先端Ⅲ～テラヘルツ領域の次世代技術と高感度分光・計測への応用～」, 2009/10/22, 福井大学.

川畑拓, 高野恵介, 宮丸文章, 武田三男, 秋山浩一, 徳田安紀, 阿部雄次, 萩行正憲, スーパーインクジェットプリンタを用いたテラヘルツメタマテリアルの作製, レーザー学会学術講演会第30回年次大会, 2010/2/2, 大阪.

花岡直樹, 宮丸文章, 高野恵介, 萩行正憲, 宮

寄博司, 武田三男, 金属チェッカーボードパターンのテラヘルツ波偏光特性, 第 57 回応用物理学関連連合講演会, 2010/3/18, 東海大学.

宮丸文章 3次元バルクメタマテリアルのテラヘルツ光学応答, 第 57 回応用物理学関連連合講演会, 2010/3/19, 東海大学.

M. Hangyo, K. Takano, K. Shibuya, E. Miyamaru, H. Miyazaki, Terahertz propagation in structured metals, SPIE Optics+Photonics 2010, 2010 年 8 月 1 日, San Diego, USA.

K. Takano, T. Kawabata, E. Miyamaru, S. Kuboda, M. W. Takeda, and M. Hangyo, Planar and three-dimensional metamaterials in the terahertz region, The International Conference on Nanophotonics 2010, 2010 年 5 月 30 日, 筑波.

K. Takano, T. Kawabata, K. Murata, K. Masuda, E. Miyamaru, and M. Hangyo, Photoconductive antenna with split ring resonators for terahertz radiation, The Metamaterial Congress 2010, 2010 年 9 月 16 日, Karlsruhe, German.

K. Takano, T. Kawabata, K. Murata, K. Masuda, E. Miyamaru, and M. Hangyo, Enhanced terahertz emission from metaatom-loaded photoconductive antennas, The 35th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave, 2010 年 9 月 5 日, Rome, Italy.

E. Miyamaru, Optical property of metallic photonic crystals and metamaterials in terahertz region, International Symposium on Frontier of Terahertz Spectroscopy IV, 2010 年 10 月 20 日, 長野.

E. Miyamaru, Surface wave resonance sensor with metal hole array, International Symposium on Frontier of Terahertz Spectroscopy IV, 2010 年 10 月 20 日, 長野.

S. Kubota, E. Miyamaru, M. W. Takeda, M. Hangyo, K. Takano, and H. Miyazaki, Terahertz response of fractal metamaterials, International Symposium on Frontier of Terahertz Spectroscopy IV, 2010 年 10 月 20 日, 長野.

M. Kamijyo, E. Miyamaru, M. Takeda, M. Hangyo, K. Takano, and H. Miyazaki, Terahertz

response of metal hole arrays, International Symposium on Frontier of Terahertz Spectroscopy IV, 2010 年 10 月 20 日, 長野.

E. Miyamaru, M. Kamijyo, K. Takano, M. Hangyo, H. Miyazaki, and M. W. Takeda, Generation process of surface waves excited on a structured perfect conductor surface., European Optical Society Annual Meeting, 2010 年 10 月 25 日, Paris, France.

6. 研究組織

(1) 研究代表者: 宮丸 文章 (MIYAMARU FUMIAKI) 信州大学 理学部 助教

研究者番号: 20419005