

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 26 日現在

機関番号：12608  
研究種目：挑戦的萌芽研究  
研究期間：2014～2015  
課題番号：26600023  
研究課題名(和文)非輻射表面プラズモンを使ったバイオセンシング

研究課題名(英文)Biosensing using dark-mode surface plasmons

## 研究代表者

梶川 浩太郎 (Kajikawa, Kotaro)

東京工業大学・総合理工学研究科(研究院)・教授

研究者番号：10214305

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：平面波を用いた場合には多重極子モード(非輻射モード)を励起することはできないが構造近傍に双極子源を置くと、非輻射モードへのアクセスが可能となる。この構造はFano共鳴を示したり、光誘起透明化(EIT)現象を示したりする。本研究の目的は非輻射モードの理解を深めるめるとともに、センシングデバイスなどへの応用を検討することである。

その結果、本研究で提案するi構造はシンプルな構造でFano共鳴を起こす構造であり、大きな屈折率を持つことがわかった。よって、本研究の成果として、その構造は非輻射モードバイオセンシング構造として期待できるとして提案できるとわかった。

研究成果の概要(英文)：The dark mode localized surface plasmon (LSP) cannot be excited by plane light wave, but it can be excited when a dipole source is located adjacent to the LSP structure. This structure shows Fano resonance or Electromagnetically-induced-transparency (EIT).

This study aims at understanding the dark mode plasmonics, and considers the application of the dark mode plasmonics to biosensors. We have investigated simple Fano structures on the basis of FDTD analysis. The structure was experimentally fabricated and measured the performance for biosensing. As a result, we found that the i-shape structure is promising for Fano resonance with high refractive index resolution.

研究分野：応用物理学

キーワード：表面プラズモン メタマテリアル バイオセンシング

### 1. 研究開始当初の背景

金属ナノ構造中の局在表面プラズモン(LSP)の研究では、これまで双極子モード(見えるモード、輻射モード)が使われてきた。一方、光と相互作用しない(見えない)多重極子モード(ダークモード、非輻射モード)のLSPも存在する。一般に光源に平面波を用いた場合には非輻射モードを励起することはできないが非輻射モードを示す構造の近傍に双極子源を置くことにより、非輻射モードへのアクセスが可能となる。このような構造は、Fano 共鳴を示したり、光誘起透明化(EIT)現象を示したりする。近年それらの重要性が認識され、多くの研究が行われるようになってきた。しかしながら、実際にこれらをデバイスとして用いる研究ははじまったばかりであり、多くの研究が進められている訳ではない。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、理論的な考察をもとにダ非輻射モードの理解を深めるめるとともに、センシングデバイスなどへの応用を検討することである。以上の知見をもとに、バイオセンシングデバイスとしての有用性を示すことである。まず、シンプルな構造で Fano 共鳴を起こす構造を検討するために、FDTD 法を用いた電磁界解析を行い構造の特性などを明らかにする。次に、実際に構造を試作して非輻射モードを用いたバイオセンシングデバイスの検討を行う。

### 3. 研究の方法

電磁界解析には Lumerical 社の FDTD ソフトウェア FDTD Solutions 8.12 を用いた。光源には TFSF(Total Field Scattering Field) を使って散乱界のみを取り出して計算できるようにした。メッシュサイズは2nmで3次元 FDTD 計算を行った。結果として得られるのは、散乱および吸収と消光断面積である。図1に示す i 型構造のギャップ距離を変えながらこれらを計算すると、ギャップが 10nm 程度で強い Fano 共鳴が観測できることがわかった。そのため、実際の構造作成では 10nm 程度のギャップ距離が得られるようにした。他の研究グループと共同で EB リソグラフィにより作製した。

### 4. 研究成果

FDTD 法を用いて、伝搬光と非輻射モードを効率的に結合する構造の設計を行った。ドルメン型などの他の構造の検討も行った結果、2種類の金ナノロッドを一直線上に並べた図1に示す i 型の構造が、シンプルでかつ比較的高い効率で結合が行えることを見いだした。得られた消光断面積スペクトルを図1に示す。630nm および 680nm 付近のピークの間、650nm 付近に幅の狭いディップが観測さ

れる。これが、非輻射モードに起因するディップである。この結果は、ギャップ距離を変えて消光断面積スペクトルを求めたものである。これまで、この種の構造は計算のみが行われてきていたが、実験的な研究は行われてこなかった。これは、ギャップ長のコントロールが難しいためである。

長い方のロッドの長辺は 250nm、短辺は 45nm、厚さ 50nm 程度で、短い方のロッドの長辺は 110nm、短辺は 45nm、厚さ 50nm 程度の場合に、空気中では、620nm と 680nm 付近にピークを持ち、660nm 付近にディップを持つ Fano 共鳴に特徴的なスペクトルが得られる。これを様々屈折率の周辺媒質に浸した際に起こるピークシフトを計算したところ、350nm/RIU 程度の大きな屈折率感度が得られることがわかった。また、性能指数(屈折率感度をピークの半値幅で割った数値)は 3.46 程度であった。ナノ粒子の屈折率感度は 50nm/RIU 程度であるので、これに比べると 1 桁近く大きな感度が得られることがわかった。

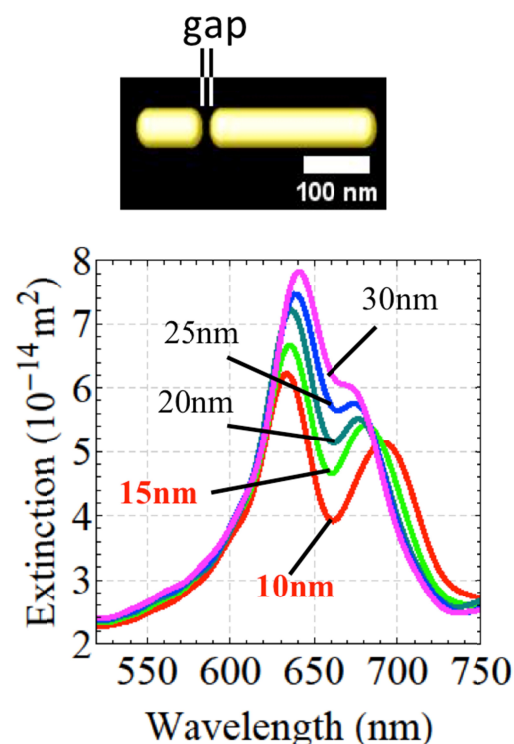


図1 計算した構造とギャップによる消光スペクトルの変化 数字はギャップ長を示している。

この構造をもとに、実験的に構造の作製を行った。グルコースなどの濃度を変えた周辺媒質に試料を浸したところ、最大で 270nm/RIU の屈折率感度が得られて、計算で期待される感度が得られていることがわかった。

以上の結果より、i 構造はシンプルな構造で Fano 共鳴を起こす構造であり、大きな屈折率を持つことがわかった。よって、本研究

の成果として、その構造は非輻射モードバイオセンシング構造として期待できるとして提案できることがわかった。

#### 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](計 8 件)

1. Pham Tien Thanh, Ken Yamamoto, Ryushi Fujimura, and Kotaro Kajikawa, "All optical bistability device with counterclockwise hysteresis using twisted nematic liquid crystals on metal-insulator-metal structure", Jpn. J. Appl. Phys., 53, 092202 (2014).

2. Amir Syahir, Kenji Usui, Kin-ya Tomizaki, Kotaro Kajikawa and Hisakazu Mihara, "Label and Label-free Detection Techniques for Protein Microarrays", Microarrays, 4, 228-244 (2015).

3. Yaado Yonenaga, Masayuki Shimojo Atsushi Kubono and Kotaro Kajikawa, "Random Laser of dye-injected holey photonic-crystal fiber", Phys. Rev. A, 92, 013824 (2015).

4. 梶川浩太郎, 「メタマテリアル光吸収体」, レーザー研究, 44, 27-31 (2016).

5. T. Noriki, S. Abe, K. Kajikawa and M. Shimojo; Patterning technique for gold nanoparticles on substrates using a focused electron beam; Beilstein J. Nanotechnol., 6, (2015), 1010-1015.

6. Yuusuke Ebihara, Ryoichi Ota, Takahiro Noriki, Masayuki Shimojo and Kotaro Kajikawa, "Biometamaterials: Black Ultrathin Gold Film Fabricated on Lotus Leaf", Sci. Reports, 5, 15992 (2015).

7. Yuusuke Ebihara, Yuta Sugimachi, Takahiro Noriki, Masayuki Shimojo, and Kotaro Kajikawa, "Biometamaterial: dark ultrathin gold film fabricated on taro leaf", Opt. Mat. Express, 6, 1429-1435 (2016).

8. Juri Ito, Kotaro Kajikawa, "Measurement of Molecular Length of Self-Assembled Monolayer Probed by Localized Surface Plasmon Resonance", Proceedings of SPIE, Vol. 9745, 97450T (2016).

[学会発表](計 31 件)

1. 梶川浩太郎 「表面プラズモンのバイオ分野への応用」 日本学術振興会 第 174 委員会 2014 年 12 月 12 日 京都大学品川オフィス (invited)

2. 梶川浩太郎 「表面プラズモンとメタマテリアル」 日本学術振興会 第 151 委員会 2014 年 11 月 14 日 早稲田大学 (invited)

3. Kotaro Kajikawa "Label-free multichannel biochip based on anomalous reflection of gold" AP-03 EMN Fall Meeting (Energy Materials Nanotechnology) Orlando, Florida, USA, 22-28 November, 2014. (invited)

4. Kotaro Kajikawa, "All Optical Bistability Device based on Metal/Liquid Crystal/Metal Structure", 5Th International Conference on Photonics (ICP2014) 2-4 September, 2014, Kuala Lumpur Malaysia. (invited)

5. 梶川浩太郎 「光ナノアンテナの線形・非線形光学」 第 13 回プラズモニクス研究会 2015 年 1 月 24 日 早稲田大学

6. Kazuki Fujii, Ryushi Fujimura, Masayuki Shimojo, Kotaro Kajikawa "Transmission of Light across a Gold Thin film through Gold Nanospheres" 5Th International Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials (NANOMETA 2015), TUE4f-P-26 January 6, 2015

7. Yuusuke Ebihara, Masayuki Shimojo, Kotaro Kajikawa "Blackbody Metamaterials using a Lotus-Leaf as a Bio-template" 5Th International Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials (NANOMETA 2015), TUE4f-P-27 January 6, 2015

8. 梶川浩太郎 「ナノアンテナの非線形光学」 日本学術振興会 第 187 委員会 2014 年 12 月 19 日 機械振興会館 (invited)

9. 梶川浩太郎 「金属ナノ構造体の特異な光学応答とフォトニクスへの応用」 プラズモニクス化学研究会 早稲田大学 2014 年 6 月 20 日 (invited)

10. 米永也亜土, 藤村隆史, 梶川浩太郎 「フォトニック結晶ファイバーを使った色素ラマンレーザー」 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 19a-C1-4 2014 年 9 月 19 日 北海道大学

11. 諏訪泰介, 徳光敦, 藤村隆史, 梶川浩太郎 「金ナノ構造で充填したナノホールの光

透過現象」第75回応用物理学会秋季学術講演会 17p-C1-1 2014年9月17日 北海道大学

12. 山本 賢, 藤村隆史, 梶川浩太郎 「アンチストークス近接場蛍光を使ったナノ領域の温度測定」第75回応用物理学会秋季学術講演会 18p-PB11-16 2014年9月18日 北海道大学

13. 梶川浩太郎 「イントロダクトリートーク プラズモニクスとは」JOEM 研究会 2014年4月24日 新宿 NSビル会議室 (invited)

14. Juri Ito and Kotaro Kajikawa, Measurement of molecular length of self-assembled monolayer probed by localized surface plasmon resonance, Conference 9745, SPIE Photonics West, The Moscone Center, California SA, USA 16 February, 2016, 9745-27.

15. 山本賢、藤村隆史、梶川浩太郎 「アンチストークス近接場蛍光を使ったナノ領域の温度測定」第62回応用物理学会春季学術講演会 11p-A12-6 2015年3月11日 東海大学

16. 藤井鐘多、藤村 隆史、梶川浩太郎 「ハーフコアシェル MIM 構造による磁気共鳴」第62回応用物理学会春季学術講演会 13p-P3-23 2015年3月13日 東海大学

17. 藤井 一輝, 藤村 隆史, 下条 雅幸, 梶川 浩太郎 「金ナノ粒子を介した金薄膜の光透過」第62回応用物理学会春季学術講演会 112a-A12-8 2015年3月12日 東海大学

18. 海老原 佑亮, 下条 雅幸, 梶川 浩太郎 「蓮の葉をバイオテンプレートに使用した黒体メタマテリアル」第62回応用物理学会春季学術講演会 12a-A12-11 2015年3月12日 東海大学

19. Ryosuke Kanazawa and Kotaro Kajikawa, "Optical cloaking of cylinder at visible wavelengths", The 5th Korea-Japan Metamaterials Forum, June 30, 2015, Hoam Faculty House Convention Center, Seoul National University.

20. 伊藤樹理、梶川浩太郎 「表面プラズモンを用いた SAM 形成過程の追跡」第76回応用物理学会秋季学術講演会 名古屋国際会議場 2015年9月15日、15p-2G-8

21. 金沢亮介、梶川浩太郎 「可視光における円柱構造のクローキング」第76回応用

物理学会秋季学術講演会 名古屋国際会議場 2015年9月15日、16a-2G-4

22. Yusuke Ebihara, Yuto Onuma, Yutaka Majima, Kotaro Kajikawa, Fano resonance in i-shaped gold dimers, JSAP-OSA Joint Symposia 2015, 13 September, 2015, E 13a-2C-8, Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan

23. Juri Ito, Kotaro Kajikawa, Molecular length of Self-Assembled Monolayers Probed by Surface Plasmon Resonance, JSAP-OSA Joint Symposia 2015, 14 September, 2015, E 14p-2C-7, Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan.

24. Kotaro Kajikawa, Bio-metamaterial: Black Ultrathin Gold Film Fabricated on Lotus Leaf, EMN Fall Meeting, Las Vegas, NV USA, November 18, 2015 (invited).

25. 梶川浩太郎 「表面プラズモンを使った化学・バイオセンシング」第55回光波センシング技術研究会 2015.6.10 東京理科大学 森戸記念館 LST55-23 (招待講演)

26. Kotaro Kajikawa, "Bio-metamaterial: Black Ultrathin Gold Film Fabricated on Lotus Leaf", The 5th Korea-Japan Metamaterials Forum, June 29, 2015, Hoam Faculty House Convention Center, Seoul National University (invited)

27. 外川 遼太郎, 梶川 浩太郎 「エバネッセント光領域のレーザー冷却」日本光学会 ナノオプティクス研究グループ 第22回研究討論会、2016年3月1日(火)、東京農工大学 科学博物館 本館

28. Yuusuke Ebihara, Ryoichi Ota, Takahiro Noriki, Masayuki Shimojo, Kotaro Kajikawa, Bio-metamaterial: Black Ultrathin Gold Film Fabricated on Lotus Leaf, The 9th International Conference on Nanophotonics, Oral-33 March 24, 2016, Academia Sinica, Taipei, Taiwan.

29. Shao-Chieh Chen and Kotaro Kajikawa, Ag Nanowire Immobilized on Gold Substrate by SAM for Surface Enhanced Raman Spectroscopy, The 9th International Conference on Nanophotonics, P-07-09 March 23, 2016, Academia Sinica, Taipei, Taiwan.

30. Ryotaro Togawa and Kotaro Kajikawa, Local Refrigeration by Evanescent Anti-Stokes Luminescence, The 9th

International Conference on Nanophotonics,  
P-10-01 March 23, 2016, Academia Sinica,  
Taipei, Taiwan.

31. 杉町 悠太、海老原 佑亮、乗木 貴広、  
下条 雅幸、梶川 浩太郎 「里芋の葉をテン  
プレートに使ったメタマテリアル」第63回  
応用物理学会春季学術講演会 東京工業大  
学 2016年3月20日、20p-S622-6

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.opt.ip.titech.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

梶川 浩太郎 (KOTARO KAJIKAWA)

東京工業大学・大学院総合理工学研究科

・教授

研究者番号： 1 0 2 1 4 3 0 5

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし