

# Terahertz label-free biochip sensor with thin metal mesh

Yuichi Ogawa<sup>1</sup>, Shin'ichiro Hayashi<sup>1,2</sup>, Eiji Kato<sup>3</sup>, Hisa Yoshida<sup>1</sup>, Fumiaki Miyamaru<sup>2</sup>,

Chiko Otani<sup>2</sup>, Kodo Kawase<sup>1,2,4</sup>

<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>RIKEN, <sup>3</sup>Advantest Laboratories Ltd., <sup>4</sup>Nagoya University

**Abstract**— We demonstrated a biological sensing application using thin metallic mesh — a two-dimensional array of sub-wavelength holes. The band-pass filter property of the thin metal mesh depends not only on its geometrical parameters, but also on the refractive index of the medium in the vicinity of the mesh openings. In order to demonstrate the applicability of this principle in THz biosensing, we used electrospray deposition for realizing a uniform and controllable layer of avidin on a metal mesh substrate. We found out that a quantity of 200 ng/mm<sup>2</sup> electrosprayed avidin produced a distinct shift in the mesh transmission spectrum towards lower frequencies. This observation suggests that it is possible to achieve label-free sensors in the THz range using thin metal mesh sample substrates.

## 1. Introduction

Many researchers have been investigating various methods for analyzing biomolecules using terahertz (THz) waves [1-6]. This interest is explained by the fact that large molecules exhibiting complex structures have absorption peaks lying in the THz band; for example, the hybridization of DNA and the antigen-antibody reaction can be distinguished without labeling them with fluorescent agents. At present, the THz time-domain spectroscopy (THz-TDS) technique is used for most of the research on biomolecules in the terahertz region. Although THz-TDS is a sensitive detection method, it involves building complex and expensive systems. Consequently, a simpler and cheaper analysis method would be very beneficial.

In parallel, research in the far-infrared using metallic meshes to build band-pass filters has started from around the 1960s. It became clear that the frequency characteristics are determined by geometrical parameters such as the grid's spatial period and aperture size, and application in spectroscopic analysis was suggested [7, 8].

We have been developing a novel sensing method which uses the band-pass characteristics of a thin conductive metal mesh. This sensing method relies on the change in the transmittance of the THz radiation through a metal mesh when a sample substance is inserted in its openings; the transmittance changes not as much because of the absorption in the sample, but mostly because of the different refractive index of the propagation medium near the openings. Our target is to develop a simple and cheap label-free biochip by using a monochromatic light source and a metal mesh.

## 2. Characteristics of thin metal mesh

Figure 1 shows pattern diagrams of a thin metal mesh (also called an inductive two-dimensional grid) and the equivalent electrical circuit to illustrate its transmission properties. The circuit parameters are determined as functions of the grid geometric parameters [7] and can be calculated approximately from the grating period ( $g$ ), its thickness ( $t$ ) and the wire strip width ( $2a$ ).

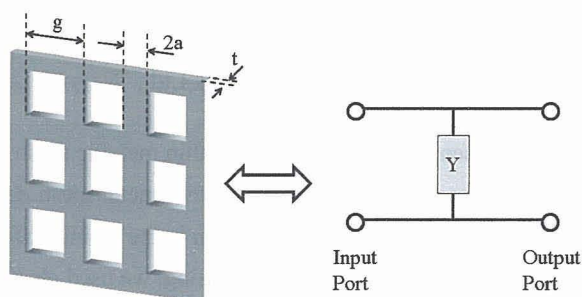


Figure 1. Schematic of the thin metal mesh and the equivalent circuit.

Ulrich's theory shows that at long wavelengths ( $g/\lambda < 1$ ) and for very small thickness ( $t \ll \lambda$ ) the optical properties of the thin metal mesh are conveniently represented as an equivalent electrical circuit by a single admittance ( $Y$ ) shunting the input. The complex amplitude reflection coefficient of this circuit is

$$\Gamma = -\frac{Y/2}{1 + Y/2} \quad (1)$$

In our experiment, the material of metal mesh is electroformed nickel. The thickness of this metal mesh is  $5 \mu\text{m}$ , the grating constant (mesh period) is  $63.5 \mu\text{m}$ , and the side of the square apertures is  $45 \mu\text{m}$ . The transmission spectrum, shown in Figure 2, was measured by FTIR spectroscopy. Figure 2 also shows the calculated transmission spectrum resulting from the geometric parameters of thin metal mesh, based on Ulrich's theory.

This metal mesh behaves as a high-pass filter and the transmittance is approximately 7% at 1 THz. The difference between the experimental curve and the calculated values are relatively small at low frequencies, approximately up to where  $g/\lambda$  is 0.6. Large differences around the peak transmittance are explained by the propagation of diffracted modes [9].

### 3. Electro sprayed protein sample

Considering the results presented in the previous section, it is natural to infer that the transmission of the thin metal mesh is also sensitive to biomolecular samples, such as avidin and biotin. The affinity between biotin and avidin is nearly as strong as covalent bonding. To disrupt the complex, extreme denaturing conditions are required. The highly specific and strong binding of the avidin-biotin system has led to its wide usage in a variety of biotechnological applications [4].

In order to apply an avidin sample uniformly and in a controllable quantity, we used the electrospray deposition (ESD) technique [10]. ESD is a versatile method for forming thin films, applicable for solute molecules with a wide range of molecular weights, such as DNA, proteins, and polymers. In the ESD technique, solutions of these materials are transformed into droplet jets; charged electrospray products are deposited onto specific areas of a conductive substrate under control of electrostatic forces. One major advantage of the ESD is that it preserves the functional properties of the electrosprayed biological molecules, such as antigenic and catalytic properties of proteins and hybridization ability of DNA molecules.

In our experiments, electrospraying was carried out using an electrospray deposition device (Esprayer, Fuce Co., Ltd., Japan); the sprayed area was 8 mm in diameter, and the surface density of avidin was 200 ng/mm<sup>2</sup>. We investigated the basic sensor property of a thin metal mesh made of nickel (thickness: 6  $\mu$ m, grid period: 76.2  $\mu$ m, aperture size: 58  $\mu$ m). Figure 4 shows the result of transmittance measurements of the thin metal mesh with and without avidin, obtained using an FTIR spectrometer.

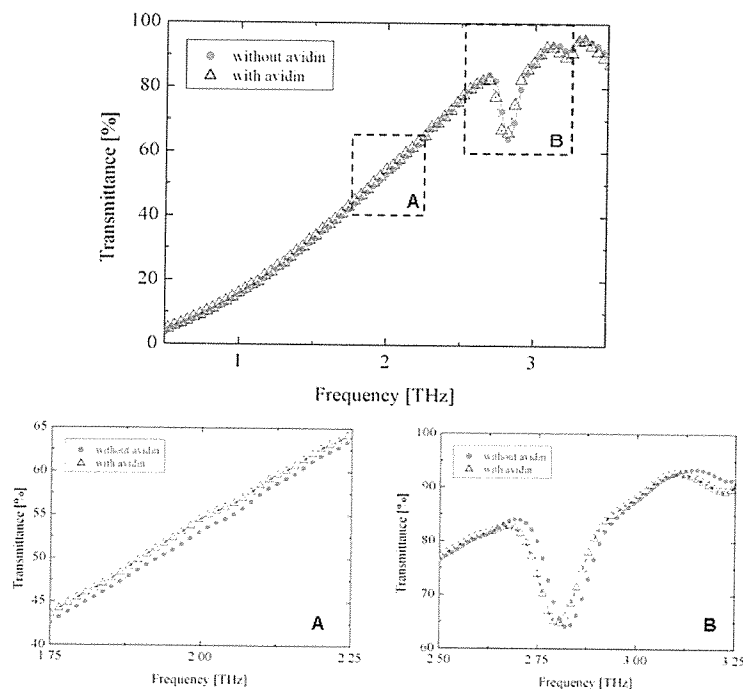


Figure 4. Measured transmission spectra of the thin metal mesh without any sample (●) and with avidin (Δ). Expanded parts of the plot are shown in (A) and (B).

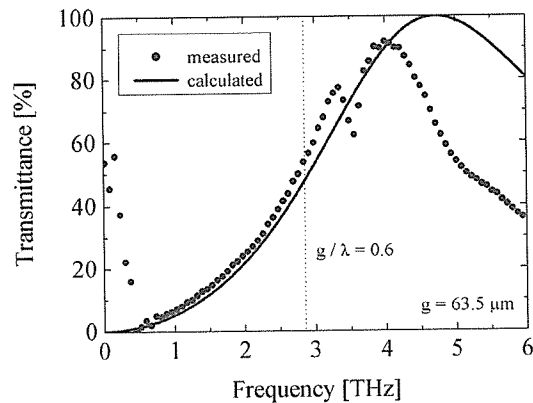


Figure 2. A measured transmission spectrum of the thin metal mesh ( $\bullet$ ) and its theoretical version calculated using Ulrich's theory (solid line). The dashed line indicates where  $g/\lambda = 0.6$ .

We first investigated the transmission characteristics of this metal mesh and the way they change depending on the refractive medium in the vicinity of the mesh. For this purpose we coated the mesh with vegetable oil ( $n = 1.5$ ,  $k = 0.01$ ) as a sample. The sample quantity was about  $1.0 \text{ mg/cm}^2$  on the mesh. The oil extended uniformly so that its thickness was approximately the same as the metallic mesh, that is,  $5 \text{ }\mu\text{m}$ .

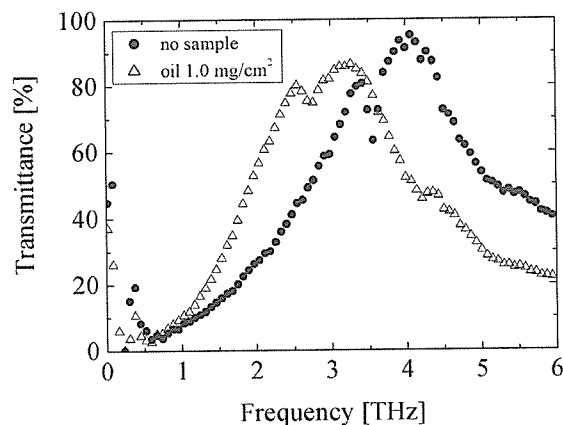


Figure 3. Measured transmission spectra of the thin metal mesh without sample ( $\bullet$ ) and with vegetable oil as sample ( $\Delta$ ).

The amplitude of the transmission peak in the spectrum decreases by about 10% when the oil covers the mesh apertures; at the same time the peak frequency drops from 4.1 THz to 3.3 THz. This result demonstrates that the thin metal mesh is sensitive to the refractive index of the sample. Noting that in the frequency range below the peak of the thin metal mesh without sample the transmittance of the thin metal mesh with sample is higher, we conclude that it should also be possible to perform an imaging of the refractive index change at a single frequency.

The transmission spectrum of the avidin-sprayed mesh was found to shift towards lower frequencies relative to the bare mesh. As a result, at 2 THz the transmission of the mesh with avidin is approximately 0.8% higher than without avidin. Simultaneously, the resonance absorption peak at 2.82 THz was shifted to 2.79 THz. This shift is believed to be caused by the different refractive index in the vicinity of the metal mesh surface when the small amount of avidin is sprayed on the mesh [11].

#### 4. Conclusion

We demonstrated a sensor application using thin metal mesh, based on the change in the transmission characteristics produced by a variation of the refractive index near the mesh. This result suggests the possibility of realizing a label-free biosensor that may be used, for example, in investigating the biological affinity, such as DNA hybridization and protein interaction. In this report, we will present some detailed results of a sensitivity evaluation of the mesh sensor. Additionally, to confirm the feasibility of biochip sensors, we performed a series of imaging experiments using a monochromatic source at 1 THz.

#### Acknowledgment

The authors would like to thank Dr. Horoshi Kase and Dr. Kaname Mogami from Fulence Co., Ltd. for allowing us to use their electrospray deposition system.

#### References

- [1] M. Brucherseifer, M. Nagel, P. H. Bolivar, H. Kurz, A. Bosserhoff and R. Büttner: *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4049 (2000)
- [2] M. Nagel, P. H. Bolivar, M. Brucherseifer, H. Kurz, A. Bosserhoff and R. Büttner: *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 154 (2002).
- [3] P. H. Bolivar, M. Brucherseifer, M. Nagel, A. Bosserhoff and R. Büttner: *Phys. Med. and Biol.*, **47**, 3815 (2002).
- [4] S. P. Micken, A. Menikh, H. Liu, C. A. Mannella, R. MacColl, D. Abbott, J. Munch, and X.-C. Zhang, *Phys. Med. Biol.*, **47**, 3789 (2002).
- [5] B. Ferguson and X.-C. Zhang, *Nature materials*, **1**, 26 (2002).
- [6] A. Menikh, S P. Micken, H. Liu, R. MacColl, X.-C. Zhang, *Biosensor and Bioelectronics*, **20**, 658 (2004).
- [7] R. Ulrich, *Infrared Phys.*, **7**, 37 (1967).
- [8] K. Sakai, T. Fukui, Y. Tsunawaki and H. Yoshinaga, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **8**, 1046 (2003).
- [9] J. M. Laarre, N. Coron, R. Courtin, G. Dambier and M. Charra, *Int. J. Infrared and Millimeter Waves*, **2**, 273 (1981).
- [10] V. N. Morozov and T. Ya. Morozova, *Anal. Chem.* **71**, 3110 (1999).
- [11] F. Miyamaru, S. Hayashi, C. Otani, K. Kawase, Y. Ogawa, H. Yoshida, E. Kato, *Opt. Lett.*, **31**, 1118 (2006).

# THz sensing method based on thin metallic mesh and an application for bimolecular sensing

Eiji Kato<sup>1,2</sup>, Hisa Yoshida<sup>3</sup>, Shin'ichiro Hayashi<sup>3,4</sup>, Yuichi Ogawa<sup>3</sup>, Kodo Kawase<sup>2,3,4</sup>

<sup>1</sup> Advantest Labs. Ltd., 48-2 Matsubara, Kamiyashi, Aoba-ku, Sendai, Japan 989-3124

<sup>2</sup> Nagoya Univ., Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Japan 464-8603

<sup>3</sup> Tohoku Univ., 1-1 Amamiya, Tsutsumidori, Aoba-ku, Sendai, Miyagi, Japan 981-8555

<sup>4</sup> RIKEN SENDAI, 519-1399 Aramaki-aoba, Aoba-ku, Sendai, Japan 980-0845

eiji.kato@atl.advantest.co.jp

**Abstract**—We report on a novel sensing method in the terahertz (THz) range using thin metallic mesh (TMM). Conventionally, the filter property of a TMM can be changed by the geometrical parameters of the TMM. Considering that it is also change when the medium in the vicinity of the mesh openings has a different refractive index, we inspected this principle. For the biomaterial measurements, we deposited the avidin solution uniformly on the TMM. We observed the change of the transmission characteristics

## I. INTRODUCTION

Many researchers have been investigating various methods for analyzing biomolecules using terahertz (THz) waves (see, for example, Ref. [1]). This interest is explained by the fact that large molecules exhibiting complex structures have absorption spectra lying in the THz band. We considered a sensor application using thin metallic mesh (TMM), which is a metallic membrane with a two-dimensional array of sub-wavelength holes. Such TMM is conventionally used as a quasi-optical component. The transmission characteristic of a TMM can be determined by the geometric parameters of the mesh [2]. Since the band-pass properties are also affected when the refractive index of the medium near the mesh openings changes, we can infer that the transmission peak will shift [3]. Consequently, the TMM could work as a simple sensor, sensitive to the refractive index of a sample attached to its surface.

## II. EXPERIMENTS

In order to demonstrate that the TMM has sensitivity to biomolecules, we chose avidin for the sample that has led to its wide usage in a variety of biotechnological applications [4]. To deposit an avidin solution uniformly and in a controllable quantity, we used the electrospray deposition (ESD) technique [5]. In the ESD technique, solution of the sample is transformed into micro droplets with positive charge; the droplets are deposited by electrostatic force onto specific areas of a conductive substrate (TMM). One major advantage of the ESD is that it preserves the functional properties of the electrosprayed biological molecules. In our experiments, we used the ESD equipment (Esprayer, Fuce Co., Ltd. Japan); the sprayed area was 8mm in diameter and the density of avidin was 200 ng/mm<sup>2</sup>. We used nickel TMM with grid constant of 76.2  $\mu$ m for the substrate.

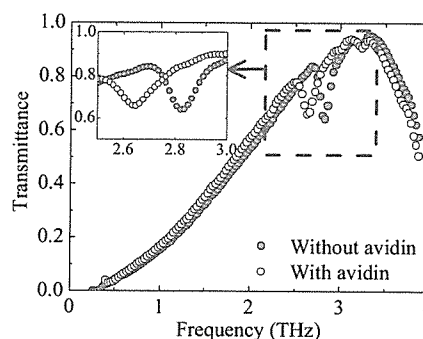


Figure 1. Measured transmission spectra of the TMM without any sample (●) and with avidin (○). The enlarged plot is shown in the inset.

Figure 1 shows the result of transmission measurements of the TMM with and without avidin, obtained using an FTIR spectrometer. The transmission spectrum of the avidin-sprayed mesh was found to shift towards lower frequencies relative to the bare mesh. The dip at 2.82 THz without avidin was shifted to 2.79 THz with avidin. This shift is considered to be caused by the different refractive index in the vicinity of the metal mesh surface when the small amount of avidin is sprayed on the mesh.

## III. CONCLUSION

We demonstrated a sensor application using TMM. This result suggests the possibility of realizing a label-free biosensor that may be used, for example, in investigating the biological affinity.

## ACKNOWLEDGEMENTS

The authors would like to acknowledge for the support Fuce Co., Ltd. for electrospray deposition system.

## REFERENCES

- [1] A. Menikh, S. P. Micken, H. Liu, R. MacColl, and X.-C. Zhang, *Biosensor and Bioelectronics*, vol. 20, pp. 658-662, 2004.
- [2] K. Sakai, and L. Genzel, *Reviews of Infrared and Millimeter Waves*, vol. 1, Plenum Press, New York, 1983 pp. 155-243
- [3] M. Tanaka *et al.*, *Opt. Lett.*, vol. 30, pp. 1210-1212, 2005
- [4] S. P. Micken *et al.*, *Phys. Med. Biol.*, vol. 47, pp. 3789-3795, 2002
- [5] V. N. Morozov and T. Y. Morozova, *Anal. Chem.*, vol. 71, pp. 3110-3117, 1999.

# Compact Terahertz-Wave Parametric Generators

S. Hayashi<sup>1,3</sup>, H. Minamide<sup>2</sup>, T. Ikari<sup>2</sup>, Y. Ogawa<sup>3</sup>, T. Shibuya<sup>1</sup>, K. Shindo<sup>1</sup>,  
H. Sakai<sup>4</sup>, H. Kan<sup>4</sup>, T. Taira<sup>5</sup>, H. Ito<sup>2,6</sup>, C. Otani<sup>1</sup>, and K. Kawase<sup>1,3,7</sup>

<sup>1</sup>RIKEN, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama, 351-0198, Japan,

<sup>2</sup>RIKEN Sendai, 519-1399 Aramaki-Aoba, Aoba-ku, Sendai, 980-0845 Japan,

<sup>3</sup>Graduate School of Agricultural Science, Tohoku Univ., 1-1 Tsutsumidori Amamiyamachi, Aoba-ku, Sendai 981-8555, Japan

<sup>4</sup>Central Research Lab., Hamamatsu Photonics K. K., 5000 Hirakuchi, Hamamatsu 434-8601, Japan

<sup>5</sup>Laser Research Center for Molecular Science, Institute for Molecular Science, Myodaiji, Okazaki 444-8585, Japan

<sup>6</sup>RIEC, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577, JAPAN

<sup>7</sup>Dept. of Quantum Eng., Nagoya Univ., Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601, Japan

Author e-mail address: shayashi@riken.jp

**Abstract:** We developed two new kinds of terahertz-wave parametric generators (TPG) by using compact pump sources. One TPG generates high energy and broadband THz-waves with high stability, the other has a potential to be a narrow-linewidth injection-seeded TPG.

## 1. Introduction

In recent years, Terahertz (THz) wave sources have received considerable attention for use in many applications. Especially, recent researches using THz-waves, transparency and fingerprint spectra have had an important contribution in the Bioengineering or Security fields. As you know, the subject of research decides the source specifications. For example, to study the environment or living plants, experiments must be performed outside the laboratory. Then, you need high energy, portable sources and detectors. In spectroscopic studies, you need widely tunable sources. Analyzing or detecting gasses requires a narrow linewidth. Consequently, the goal is to have customized sources for each application. In this paper, we introduce two compact THz-wave parametric sources with different characteristics. One generates high energy, broadband and stabilized THz-wave, the other has a potential of widely tunability and narrow linewidth. The characteristics of these sources depend on its pump source. The former is for transmitting detection of samples with high absorption coefficient or diffuse detection. The later is for on site spectroscopic measurement of samples.

## 2. Principle of the THz-wave Parametric Generation

In a TPG, generation of the THz-waves is achieved through an efficient parametric scattering of laser light via a polariton - stimulated polariton scattering. The scattering process involves both second- and third-order nonlinear processes. Thus, strong interaction occurs among the pump, the idler, and the polariton (THz) waves.

The principle of THz-wave generation is as follows. Polaritons exhibit phonon-like behaviour in the resonant frequency region. However, they behave like photons in the off-resonant low-frequency region, where a signal photon at THz frequency ( $\omega_T$ ) and a near-infrared idler photon ( $\omega_i$ ) are parametrically created from a near-infrared pump photon ( $\omega_p$ ), according to the energy conservation law  $\omega_p = \omega_T + \omega_i$  ( $p$ : pump;  $T$ : THz;  $i$ : idler). In the stimulated scattering process, the momentum conservation law  $k_p = k_i + k_T$  (noncollinear phase-matching condition; see the inset in Fig. 1) also holds. This leads to angle-dispersive characteristics of the idler- and THz-waves. The bandwidth of the TPG depends on the parametric gain and the absorption coefficients in the THz region. More details about TPG are given in Refs. [1].

## 3. Experimental setup

The experimental apparatus, shown in Fig. 1, consists of a pump source and two nonlinear crystals. About energy enhancement version, we used compact Q-sw. Nd:YAG laser as a pump source. All components, except for the detector, can be mounted on a 12 × 22 cm breadboard. The pump beam is collimated by a lens at the output of the source and reflected by mirrors for downsizing of a source. It has a top-hat profile with a beam diameter of 1.3 mm (FWHM) on the first crystal. We used two 65-mm-long nonlinear MgO:LiNbO<sub>3</sub> crystals. A Si-prism array placed on the  $y$  surface of the second crystal acts as an efficient output coupler for the THz-waves to avoid the total internal reflection of the THz-waves on the crystal output side. For an efficient THz-wave emission, the pumped region within the second crystal must be as close as possible to the Si-prism array, because of the large

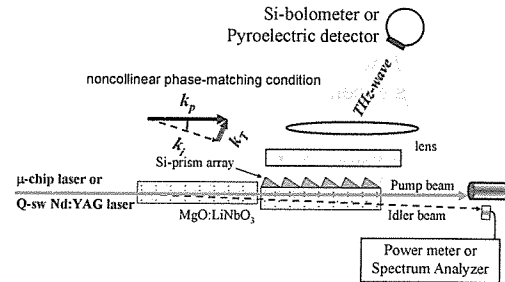


Fig. 1: Schematic of the experimental setup.



absorption coefficient of the  $\text{MgO:LiNbO}_3$  crystal in the  $1 \sim 3$  THz range ( $10 \sim 100 \text{ cm}^{-1}$ ). A top-hat beam profile is suitable for this purpose, since the high intensity region of the pump beam is closer to the  $y$  surface than in the case of a Gaussian beam. The distance between the  $y$  surface and the beam center was precisely adjusted to obtain a maximum THz-wave output, and it was approximately equal to the pump beam radius. The THz-wave output extracted through the Si-prism array was measured using a 4.2 K Si bolometer, while the idler-wave energy was measured using a pyroelectric detector.

About another source for narrow linewidth, we replace pump source to microchip laser [2]. All components except for the detector can be mounted within an area of  $25 \times 5 \text{ cm}^2$ . This pump source is a diode end-pumped single-mode microchip  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  laser passively Q-sw. by  $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$  saturable absorber. This microchip configuration enables the low order axial and transverse mode laser oscillation, which linewidth is below  $0.009 \text{ nm}$ . The laser delivers  $1.8 \text{ MW}$  peak power pulses ( $750 \text{ }\mu\text{J/pulse}$ ) with  $420 \text{ ps}$  pulse width at  $100 \text{ Hz}$  repetition rate with a  $M^2$  factor of  $1.09$ . This laser is free from the electric noise compared with active Q-sw. lasers. Additionally, this kind fixed passively Q-switching allows us the stabilized peak power, less than  $\pm 2\%$  power jitter [2]. The pump beam diameter on the first crystal is  $0.3 \text{ mm}$  (FWHM). We used a pyroelectric sensor to detect both the THz-wave and the idler-wave.

#### 4. Experimental results

First, we show experimental results of high energy TPG. The output energy of the THz-wave reached  $105 \text{ pJ/pulse}$  ( $62 \text{ mW}$  at the peak) when the pump energy is  $66 \text{ mJ/pulse}$  ( $820 \text{ MW/cm}^2$ ) [3]. In our previous TPG research, the damage threshold of the crystal was under  $200 \text{ MW/cm}^2$  of pump beam when using multimode pump source. With this report, the damage threshold is increased about 4 times. We generated 100 times more output energy by higher energy pumping and lower absorption due to the short pulsed, top-hat distribution of the pump beam. Fig. 2 shows the stability of the THz-wave pumped by this pump source. We measured the pulse-to-pulse energy stability and found that it is  $3.8 \text{ }\%$  rms. This value shows that its stability is about ten times better than other THz-wave parametric sources.

Second, we show some results about narrow linewidth TPG. The characteristics of the generated THz-wave is depends on that of pump beam. To generate narrow linewidth THz-wave, narrow linewidth pump beam is required. We replaced above pump source to microchip laser. As the pump energy is increased above the generation threshold, the energy of the idler wave increases linearly. The maximum energy of the idler wave is  $110 \text{ }\mu\text{J/pulse}$ , obtained at a pump energy of  $750 \text{ }\mu\text{J/pulse}$  ( $2.9 \text{ GW/cm}^2$ ). When using the previous singlemode pump laser with  $15 \text{ ns}$  pulse width, the damage threshold of the crystal was  $450 \text{ MW/cm}^2$ , but in this experiment the crystal is not damaged even when pumped by  $2.9 \text{ GW/cm}^2$  [4]. The short pulse width of the microchip laser allows the pumping power to be about 5 times higher. We observed an output energy of the THz-wave of about  $0.1 \text{ pJ/pulse}$  ( $1 \text{ mW}$  at the peak) when the pump intensity is  $2.9 \text{ GW/cm}^2$  [3].

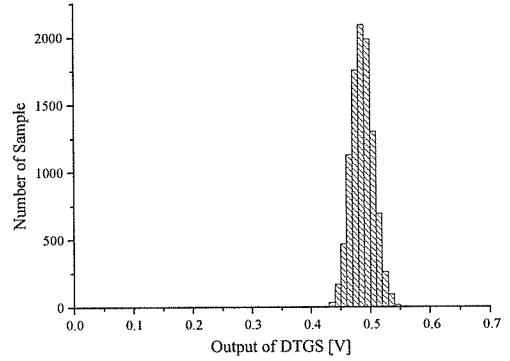


Fig. 2: Stability of the THz-wave generated by the TPG.

#### 5. Conclusion

We demonstrated two new kinds of palmtop TPG by using compact pump sources. We showed the output power enhancement, high stability and the downsizing of the TPG pumped by multimode  $\text{Nd}:\text{YAG}$  laser with tophat beam profile. We expect its broadband, high energy, stability and palm-top size offer good advantages for many applications. We also observed THz-wave output pumped by single-mode microchip  $\text{Nd}:\text{YAG}$  laser. This TPG has a potential of narrow linewidth THz-wave by injection seeding for the idler wave.

#### Acknowledgements

The authors would like to acknowledge the continuing encouragement of Prof. J. Nishizawa. The authors thank C. Takyu for his excellent work coating the crystal surface, and T. Shoji for polishing the crystals superbly.

#### References

- [1] J. Shikata, K. Kawase, T. Taniuchi, and H. Ito, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, 134 (2002)
- [2] N. Pavel, J. Saikawa, S. Kurimura, and T. Taira, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, pt. 1, no. 3A, 1253 (2001).
- [3] S. Hayashi, K. Maki, C. Otani, and K. Kawase, Proceedings of the International symposium TOPICAL PROBLEMS OF NONLINEAR PHYSICS, High-field Laser Physics (NWP-2), pp 50-51 (2005).
- [4] K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **34**, R1 (2001).



## Microlaser Pumped Narrow-linewidth Terahertz-Wave Parametric Generation

S. Hayashi<sup>1,2</sup>, T. Shibuya<sup>1,3</sup>, H. Sakai<sup>4</sup>, H. Kan<sup>4</sup>, T. Taira<sup>5</sup>, Y. Ogawa<sup>2</sup>, C. Otani<sup>1</sup>, and K. Kawase<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup>RIKEN SENDAI, 519-1399 Aramaki-cho, Aoba, Sendai, 980-0845 JAPAN

<sup>2</sup>Graduate School of Agricultural Science, Tohoku Univ., 1-1 Tsutsumidori Amamiyamachi, Aoba, Sendai, 981-8555 JAPAN

<sup>3</sup>Graduate School of Engineering, Nagoya Univ. Furo-cho, Chikusa, Nagoya, 464-8603 JAPAN

<sup>4</sup>Hamamatsu Photonics K. K., 5000 Hiraguti, Hamamatsu, 434-8601 JAPAN

<sup>5</sup>Institute for Molecular Science, 38 Nishigo-Naka, Myodaiji, Okazaki, 444-8585 JAPAN

shayashi@riken.jp

**Abstract-** We developed injection-seeded terahertz wave parametric generator pumped by microlaser. Microlaser is the half palm-sized, LD-pumped single-mode microchip Nd:YAG laser, delivers 1.1 MW peak power pulses (530  $\mu$ J/pulse) with 430 ps pulse width at 100 Hz repetition rate. This THz-wave source generated narrow-linewidth THz-wave by injection seeding for the idler-wave. We observed its peak output power of more than 20 mW (2 pJ/pulse) at 1.6 THz and its palm size, portable source offer good advantages for many applications.

### I. INTRODUCTION

In recent years, Terahertz (THz) wave sources have received considerable attention for use in many applications. Especially, recent researches using THz-waves, transparency and fingerprint spectra have had an important contribution in the bioengineering or security fields. As you know, the subject of research decides the source specifications. For example, to study the environment or living plants, experiments must be performed outside the laboratory. Then, you need high energy, portable sources and detectors. In spectroscopic studies, you need widely tunable sources. Analyzing or detecting gasses requires a narrow linewidth. Consequently, the goal is to have customized sources for each application. In this paper, we introduce compact, tunable and narrow linewidth THz-wave parametric source.

### II. PRINCIPLE OF THE THZ-WAVE PARAMETRIC GENERATION

In a THz-wave parametric generation, generation of the THz-waves is achieved through an efficient parametric scattering of laser light via a polariton - stimulated polariton scattering. The scattering process involves both second- and third-order nonlinear processes. Thus, strong interaction occurs among the pump, the idler, and the polariton (THz) waves. Polaritons exhibit phonon-like behavior in the resonant frequency region. However, they behave like photons in the off-resonant low-frequency region, where a signal photon at THz frequency ( $\omega_{\text{THz-wave}}$ ) and a near-infrared idler photon ( $\omega_{\text{idler}}$ ) are parametrically created from a near-infrared pump photon ( $\omega_{\text{pump}}$ ), according to the energy conservation law  $\omega_p = \omega_{\text{THz}} + \omega_i$ . In the stimulated scattering process, the momentum conservation law  $k_p = k_i + k_T$  (noncolinear phase-matching condition) also holds. This leads to angle-dispersive characteristics of the idler- and THz-waves. More details about TPG are given in Refs. [1].

### III. EXPERIMENTAL SETUP

The experimental setup consists of a pump source, seeding source and nonlinear crystal. This pump source is a diode end-pumped single-mode microchip Nd<sup>3+</sup>:YAG laser passively Q-sw. by Cr<sup>4+</sup>:YAG saturable absorber. This microchip configuration enables the low order axial and transverse mode laser oscillation, which linewidth is below 0.009 nm. The laser delivers 1.1 MW peak power pulses (530  $\mu$ J/pulse) with 430 ps pulse width at

100 Hz repetition rate with a  $M^2$  factor of 1.09. This laser is free from the electric noise compared with active Q-sw. lasers. Additionally, this kind fixed passively Q-switching allows us the stabilized peak power, less than  $\pm 2\%$  power jitter [2]. The pump beam diameter on the first crystal is 0.3 mm (FWHM). We used a 4K Si-bolometer to the THz-wave.

### IV. EXPERIMENTAL RESULTS

Figure 1 shows time dependent THz-wave output signals measured by the 4K Si-bolometer. When we generate THz-wave without injection seeding to the idler-wave, we observed broadband THz-wave with power of about 1 mW at the peak (lower curve), however, after injection seeding, we observed narrow linewidth THz-wave with power of about 20 mW at the peak (upper curve). This is about more than 100 times narrower and 20 times higher than seeding laser is cut off. In addition, the pulse width of this microlaser is the shortest in our parametric sources [3, 4].

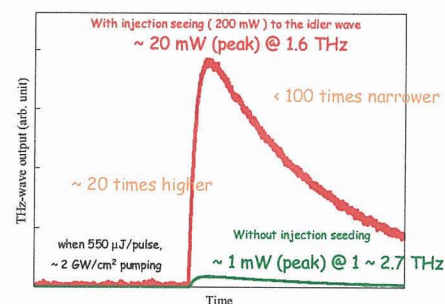


Fig. 1: Time dependent THz-wave output signals.

### V. CONCLUSION

We demonstrated compact, tunable and narrow linewidth THz-wave source. We observed THz-wave output pumped by single-mode microchip Nd:YAG laser. This source generates narrow linewidth THz-wave by injection seeding for the idler wave. We expect this source offer good advantages for many applications.

### ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank Dr. Minamide, Dr. Ikari, Dr. Shikata, and Prof. Ito for useful discussion, Mr. C. Takyu for his excellent work coating the crystal surface, and Mr. T. Shoji for polishing the crystals superbly. This work was supported in part by a Grant-in-Aid for Young Scientist (No. 17760290) from Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology.

### REFERENCES

- [1] J. Shikata, K. Kawase, T. Taniuchi, and H. Ito, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, 134 (2002).
- [2] N. Pavel, J. Saikawa, S. Kurimura, and T. Taira, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, pt. 1, no. 3A, 1253 (2001).
- [3] S. Hayashi, K. Maki, C. Otani, and K. Kawase, *Proc. SPIE*, **5975**, 219 (2006).
- [4] K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **34**, R1 (2001).

## テラヘルツ波の農学応用

小川 雄一<sup>\*</sup> 林 伸一郎<sup>\*,\*\*</sup> 吉田 永<sup>\*</sup> 阿部 香織<sup>\*</sup> 大谷 知行<sup>\*\*</sup> 川瀬 晃道<sup>\*,\*\*,\*\*\*</sup>

<sup>\*</sup>東北大学大学院農学研究科 〒981-8555 宮城県仙台市青葉区堤通雨宮町 1-1

<sup>\*\*</sup>理化学研究所 〒980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 519-1399

<sup>\*\*\*</sup>名古屋大学大学院工学研究科 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町

E-mail: yogawa@bios.tohoku.ac.jp

あらまし 近年急速に応用分野が広がりつつあるテラヘルツ波帯の電磁波を、農学分野へ応用展開する試みについて報告する。特に、食品や生体の中で重要な成分である糖に関する分析への応用、農産物や植物の非破壊計測、薄型金属メッシュを用いた生体高分子のセンサーについて報告する。

キーワード テラヘルツ波、農学、糖、非破壊計測、センサー

## Applications of terahertz wave to agricultural science

Yuichi OGAWA<sup>\*</sup> Shin'ichiro HAYASHI<sup>\*,\*\*</sup> Hisa YOSHIDA<sup>\*</sup> Kaori ABE<sup>\*</sup> Chiko OTANI<sup>\*\*</sup> and  
Kodo KAWASE<sup>\*,\*\*,\*\*\*</sup>

<sup>\*</sup>Tohoku university 1-1 Tsutsumidori Amamiyamachi, Aoba-ku, Sendai, 981-8555, Japan

<sup>\*\*</sup>RIKEN 519-1399 Aramaki-Aoba, Aoba-ku, Sendai, 980-0845, Japan

<sup>\*\*\*</sup>Nagoya university Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8603 Japan

E-mail: yogawa@bios.tohoku.ac.jp

**Abstract** The applicable field of a terahertz wave has spread quickly in recent years. In this presentation, we introduce our recent study of the applications of terahertz wave to agricultural science. In particular, "application to analysis of the sugar which is an important component in food or a living body", "nondestructive measurement of agricultural products or plants" and "biosensor using a thin metallic mesh" are reported.

**Keyword** Terahertz wave, Agricultural science, Sugar, Nondestructive measurement, Sensor

### 1. はじめに

農学と呼ばれる分野は、古くから食を豊かにし、自然との調和を目指した学問として研究されてきた。しかし、20世紀後半から急速に発展してきたバイオテクノロジーやライフサイエンスにより、大きくその形態を変え、現在では医療や生物工学なども含んだ非常に多岐に亘る分野を形成するに至っている。その背景になっているのは、社会背景のみならず工学や理学分野の研究者が明らかにしてきた様々な物理現象に基づく新しい計測技術の発展によるものも大きい。このような中にあり、近年理工学の研究者らによって精力的に行われているテラヘルツ (THz) 波領域と呼ばれる未開拓領域の電磁波に関する研究は、農学分野においても新しい発見や知見につながる可能性を秘めていることから注目を集めている。

現在 THz 波に関しては既に数多くの応用可能性が報告されている。例えば、THz 帯の分光スペクトルはビ

タミンやアミノ酸、DNA など多くの物質で既に見出されている[1]-[6]。最近ではさらに、全反射分光法 (ATR 法) を導入した分光技術[7]も報告されており、食品や生物など水分を含む多くの分野への発展が期待される。また、この帯域の電磁波が持つ透過性を利用することで、非破壊検査が可能となり、医薬品や食品製造現場での成分や異物検査としての応用が見込まれている[8]。このような技術は、THz 帯に感度を持つ多素子検出器の登場により、今後飛躍的にその利用範囲が広がるものと期待される。さらに、最近では生体高分子の高次構造の形成に起因する吸収が THz 帯に存在するため、蛍光標識を用いることなく DNA のハイブリダイゼーションや抗原抗体反応をセンシングできる。従って、これらを利用した生体高分子などのラベルフリーセンシングに関する研究が報告されている[9]-[12]。



現在我々は、このような可能性が見出されてきた THz 波を農学分野に役立てるための研究を行っている。それらを大別すると、「THz 帯の分光スペクトルの利用」、「水や氷の吸収の利用」、「新しいセンシングデバイスに関する基礎研究」である。以下にこれらの研究概要および成果について報告する。

## 2. 農学利用への試み

### 2.1. THz 波を利用した糖分析

THz 帯の分光スペクトルを農学分野に役立てる際に、まず必要となるのはスペクトルのデータベースである。そこで本研究では、FT-IR を用いて様々な食品成分の分光測定を行い、データベースの構築を目指している。その結果、数多くの食品成分に物質固有の吸収スペクトルを見出すことができた。これらの結果は、THz 分光イメージングとの組み合わせにより、食品や医薬品などの品質チェックに利用できることが期待できる。また、液体の食品についても凍結乾燥法の導入により、分析できる可能性が示唆された。

一方、糖は一旦水溶させると水和物となり、凍結乾燥法を用いても十分に水分を飛ばすことが困難であったが、水和物と無水物で吸収スペクトルに大きな違いが確認された。図 1 はグルコース水和物をオープンで乾燥させた際の吸収スペクトル変化を示している。このように水和物が無水物に変化する際にスペクトルの形状が大きく変化する様子が確認された。

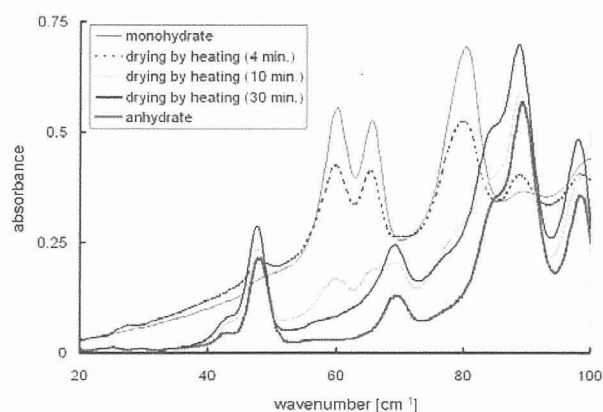


Fig. 1 Terahertz transmittance spectra of the changing from monohydrate to anhydrate glucose.

THz 帯は水の吸収係数が高い（約  $200 \text{ cm}^{-1}$  @ 1 THz）[13]ことが知られており、このことを積極的に利用することで、高感度な水分計測が可能となることが考えられる。そこで一般に広く食品分析に利用されているカールフィッシャー法との比較を行い、THz 波による簡便な食品中水分計測の可能性を検討した。この結果、多くの試薬を用いる必要があると同時に、化学分析法

であるため測定サンプルを回収することができないカールフィッシャー法に対して、THz 波の透過スペクトルから算出した水分量は高い相関を示し、本手法が簡便かつ高感度な水分計測法として利用できる可能性が示された。

食品のみならず様々な化学反応において、水分子が生成されたり、費やされるといった反応は多い。さらに THz 波の透過性と組み合わせることにより、密閉容器内での加水、脱水反応をセンシングできると考えられる。このため、雰囲気中の水蒸気の影響を受けることなく高感度に水をセンシングできることが予想できるため、食品加工や製薬工程などで活躍できる技術になりうる。一方、産業用途のみならず、生体内においても酵素反応など多くの反応で水が関与している。THz 波は、このような反応を計測する際に必要としていた様々な試薬や標識を使うことなく分析できる可能性を秘めているため、今後ライフサイエンス分野を視野に入れた更なる研究を進める予定である。

### 2.2. 植物および食品の非破壊水分モニタリング

透過性を持つ電磁波には X 線やラジオ波が挙げられる。前者はその高い空間分解能と直進性により医療用途や検査用途として広く利用されており、後者は、放送や通信など情報伝達用途として利用されている。これらと THz 波やミリ波を比較した際、水の吸収が高いことに気付く。ここでは、これらの特性を積極的に利用した非接触による植物の水分モニタリング技術について報告する。

植物細胞の約 90 % が水で構成されており、植物生長には細胞内への水の流入が不可欠である。具体的には、光合成、栄養素の循環、温度コントロール、体を支持するといった生命を司る多くの重要な役割を担っている。また逆に、この水を精密に制御することで一部の農作物の生産現場では高品質な農産物の栽培を行っている事例もある。一例として、トマトやメロンにおいて、十分な水分管理のもとで水ストレスを与えると糖の蓄積が促され、糖度の高い農作物を生産できることが知られている。しかし実際の栽培現場では、茎の萎れ角度や葉の丸まり方、茎の太さといった目視による情報から農家の勘と経験を使って推測しているにすぎず、微妙な変化を見落とすと、着果量の減少や尻割れ果が発生し、農家に大きな損害をもたらすことになる。そのため、水ストレスに対する栽培管理は極めて重要である。実際、水ストレスが作物栽培上最も大きく収量に影響を与えるという報告[14]もある。また、農産物の鮮度は内部の水分状態と深く関わっており、水分の減少がみずみずしさを低下させ、エチレン発生の促進につながる[15]。従って、農産物内部の水分減

少を THz 波でモニタリングすることで、農産物の鮮度に関する情報を非破壊かつ非侵襲で迅速に得ることができると考えられる。

本実験ではまず、THz 波光源としてテラヘルツ波パラメトリック発振器 (THz-wave Parametric Oscillator, TPO) [16] を用いてイメージング光学系を構築し、葉柄を切断した直後からの水分変化量を THz 波の透過率変化を用いてモニタリングした。今回の測定には観葉植物のアイビーを用いた。アイビーは観葉植物として人気のある植物で、葉の厚さが一様かつ凹凸の少ない形状であるため、本実験の対象物として採用した。イメージングは葉柄を切断した直後、1 時間後、2 時間後、さらに 2 日、4 日後に同じ設定で測定し、葉柄を切断することにより葉内部の水分が蒸散し、葉の水分分布が変化する様子を可視化した。可視化した領域は  $40 \times 40 \text{ mm}$ 、画像サイズは  $80 \times 80 = 6400$  画素に相当する。水分が変化する様子を THz 波の透過画像よりモニタリングした結果を図 2 に示す。なお、1 枚の画像を得るのに要した時間は、約 15 分である。

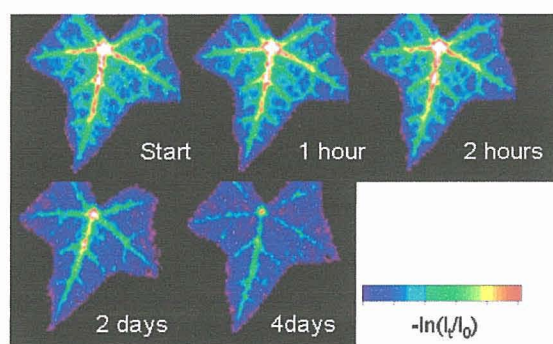


Fig. 2 Moisture distribution map obtained by transillumination THz imaging (pseudocolor)

図中上段の左は、葉柄を切断した直後の画像である。以後順に、1 時間後（上段中）、2 時間後（上段右）、2 日後（下段左）、4 日後（下段右）に測定した画像を示す。これらの画像のスケールは、透過した THz 波の強度を入射強度で割った値の対数をとったものとなっており、256 階調の擬似カラーで示している。今回用いたアイビーは、葉柄を切断した後も萎れや変色が少なく、室温約  $23.5^\circ\text{C}$ 、湿度約 30% において水分の蒸散が少なかったため、4 日後まで測定を行った。蒸散が少なかった理由は、葉を固定することを目的としたプラスチックシートで挟んだため葉の蒸散が抑制されたためと考えられる。

画像中で葉脈が際立って認識できるのは、他の部位よりも 2 倍程度厚みがあり、水分の違いだけでなく、厚みの違いを反映しているためである。しかし、厚みが均一な部分に着目すると、水分分布が変化している

様子がはっきりと確認できた。特に 2 日後への変化は大きく、水分の減少により半分程度にまで THz 波の吸収量が減少している事が分かる。THz 波イメージングシステムにより水分分布の挙動を既存技術では煩雑で困難とされていた可視化に成功したと共に、 $500 \mu\text{m}$  という適度な空間分解能を有する本手法が植物生理学的新たな知見を得ることができる新しい手法としての可能性を示すことができた。

植物や農産物中の水分を簡便に知る技術は、その栽培環境を決定するのに重要な技術である。上記に報告したような技術は極めて単純な手法であるにもかかわらず、生物をセンサーとした環境計測技術そのものであり、生物の重み付けが施された最適なセンサー、言い換えれば生物との対話を可能とする技術に他ならない。従ってその結果をフィードバックし、建物の温度や遮光カーテンの制御などを行い、生物生産現場を最適化し高品質な農産物の生産が可能となることが期待できる。また、先に報告した凍結モニタリングに関しても、農産物の冷害のメカニズム解明や凍結によって透過しやすくなった液状サンプルからの分光分析、イメージングなど幅広く展開できる技術になることが期待できる。

一方、植物や農産物のみならず、様々な産業分野において、サンプルの水分含量を測定することは品質管理や加工現場でも重要な作業である。水分測定法で典型的なものとしてはオープンに入れて乾燥させサンプルの乾燥前後の重量から測定する乾燥重量法がある。この乾燥重量法はサンプルの水分を正確に測定するのに有効である。しかしこの方法には真空や高温状態でサンプルを乾燥させる必要があるので測定に長時間を要する点、オープンの熱がサンプルの品質を変えるなどの欠点がある。

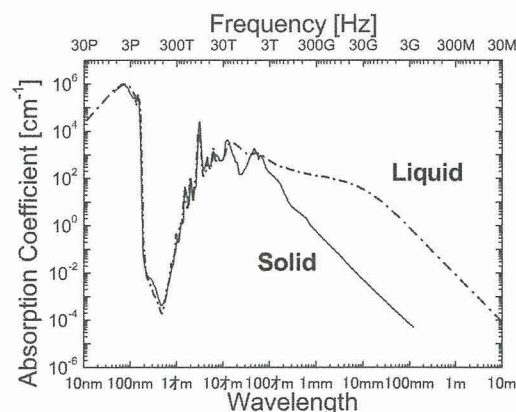


Fig. 3 Absorption coefficient of water and ice. ([13], [17], [18])



一方、水や氷は図3のような吸収特性を持っている。特にTHz帯より長波長側で水が凍ると急に吸収係数が小さくなる点は、可視や赤外域と大きく異なる。このことを利用すると、物質内部の水分が凍ることによるTHz波の透過量変化から水分量を知るという新しい計測方法が考えられる。この方式は、従来の水分計測方法と異なる新しい方法であり、THz波もしくは電波帯の電磁波の特徴を生かした方法と言える。そこで本研究では、この新しい方法を利用してサンプル中の水分計測可能性を検討した。また今回の研究では実用レベルでの応用を考え、35 GHzのミリ波を用いた。この周波数のミリ波は大気中の減衰が少ないため自由空間を伝搬させて測定するのに適しており、また近年のデバイス技術の向上により低価格で小型のコンポーネントの入手が可能であり、非破壊・非接触の水分計測系の実用化に向いていると考えられる[19]。今回の実験サンプルには水分含量の異なるオリーブ油と水の乳化物（水分含有率10%、15%、20%、25%、30%の計5種類）を用い、冷凍庫内に設置した透過実験系で透過強度ならびにサンプル温度を同時に計測した。

図4に水を冷凍庫内で凍結させる際の吸光度変化をモニタリングした結果を示す。また図中で示す矢印間の変化量を吸光度変化とし、水分量の異なるサンプルで測定した結果を図5に示す。実際には、サンプルを固定しているため、水と氷の屈折率の違いから温度変化により屈折率が変化して干渉波形がシフトすると予想されるので、測定終了後凍結した状態で凍結前と同様に干渉波形を得て、凍結前後での透過率を算出した。

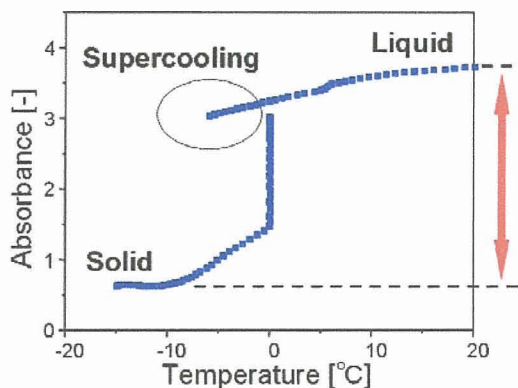


Fig. 4 Monitoring of the phase transition in water.

実験の結果、水分含有率が増加するにつれて吸光度の変化量が増加する様子が確認され、吸光度の変化から水分を定量できる可能性が示唆された。今回の乳化剤のように、比較的高い吸収を持つ物質が含まれている場合、単純な透過測定では水のみ量を正確に測定できない場合がある。それに対して凍結させる方法を導入することにより、水の吸光度だけが大幅に変化する

ため、その影響は少なくなることが分かった。

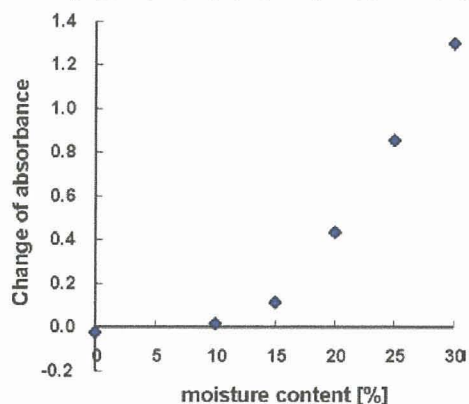


Fig. 5 Moisture content dependence of change of absorbance.

### 2.3. 薄型金属メッシュを利用したバイオセンサーの開発

近年 THz 波を用いた生体高分子などのセンシングに関する研究が多く報告されている。その理由には先にも述べたように、生体高分子の高次構造の形成に起因する吸収が THz 帯に存在するため標識を用いることなく DNA のハイブリダイゼーションや抗原抗体反応などで利用されるアビジン-ビオチン結合の有無をセンシングできることが挙げられる[9]-[12]。また、タンパク質の構造を決定する弱いエネルギーは、室温での熱エネルギー程度と言われており、おおよそ 6 THz 以下の周波数帯でそのダイナミクスに関する情報を得られると考えられている。現在、生体高分子の THz 領域における計測には THz-TDS 法によるものが多くを占める。THz-TDS により高感度な検出が可能であるが、このシステムには複雑なシステムを必要とするため、実用化を考えた際、より簡便かつ安価な分析方法が必要になると考えられる。一方、1960 年代からメタルメッシュを遠赤外領域のバンドパスフィルタとして用いた研究が行われ、メッシュの形状や開口サイズの異なるものの周波数特性を明らかにすると共に、メタルメッシュエタロンとして利用した分光方法も提案されている[20][21]。そこで我々は薄型導電性メッシュのバンドパス特性に着目し、メッシュに付着させた物質の屈折率の違いに起因する透過強度の変化を読みとるセンシング方法を提案し、安価で簡便なラベルフリーバイオチップの開発を目指した。

本研究ではまず、厚さ 5  $\mu\text{m}$ 、グリッド間隔 63.5  $\mu\text{m}$ 、スリット幅 18.5  $\mu\text{m}$  の薄型導電性メッシュにインクや油を詰めることにより、透過強度が変化する様子を FT-IR で確認した。その結果、図 6 に示すように、メッシュに油を付着させることで透過特性が低周波側にシフトすることが明らかとなった。このとき、滴下し

たサンプルの油の量は、 $1.0 \text{ mg/cm}^2$ でメッシュに均一に付着させたものである。また、メッシュに水を滴下し、その様子を1 THzにて画像化した(図7)。表面張力により盛り上がった部位は透過が困難であったが、周囲の薄く分布した箇所はメッシュ単体よりも透過強度が高くなる様子が確認された。これは、先の実験と同様に、メッシュ近傍の水によりメッシュの透過特性が低周波側にシフトし、THz波の透過量が増えたためと考えられる。

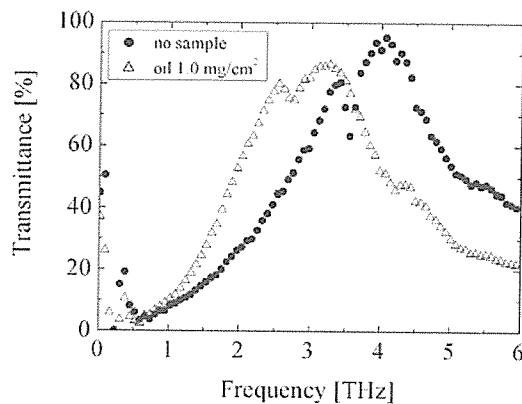


Fig. 6 Measured transmission spectra of the thin metal mesh without sample (●) and with vegetable oil as sample (Δ).

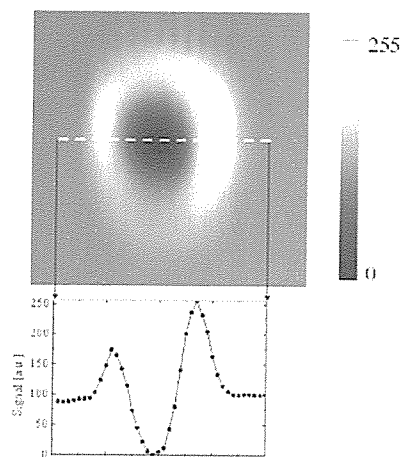


Fig. 7 THz image of water on the thin metal mesh.

バイオセンサーとしての原理検証として、薄型金属メッシュに生体高分子を定量的に固定し、透過特性の測定を行なった。固定する生体高分子にはタンパク質の一種のアビジン(Avidin)を用いた。アビジンは卵白中に存在する低塩基性糖タンパク質で、ビオチン(Biotin)と結合し、その親和力は強く不可逆であり、研究用試薬として広く利用されている。アビジンの定量的な固定にはエレクトロスプレーデポジション(Electrospray

Deposition: ESD)法[22]を用いた。

タンパク質を固定する基板として、フィルタ特性を有する薄型金属メッシュによるセンシングとの比較のため、テラヘルツ帯で周波数特性がフラットなポリエチレン膜(厚さ約  $10 \text{ }\mu\text{m}$ )に白金をスパッタしたものを用意した(以後、Pt-PEと表記する)。ポリエチレン膜に白金をスパッタしたのは、ESD法を用いてタンパク質を固定するために、基板が導電性を有している必要があるためである。これらの基板に純水を溶媒とするアビジン溶液をESD装置(Fuence社製 ES-1000)を用いてそれぞれ固定した。作成したサンプル量は、メッシュ上で  $200 \text{ ng/mm}^2$ と  $1200 \text{ ng/mm}^2$ となるように調整した。これらの作成したサンプルの透過特性をFTIRで測定した。

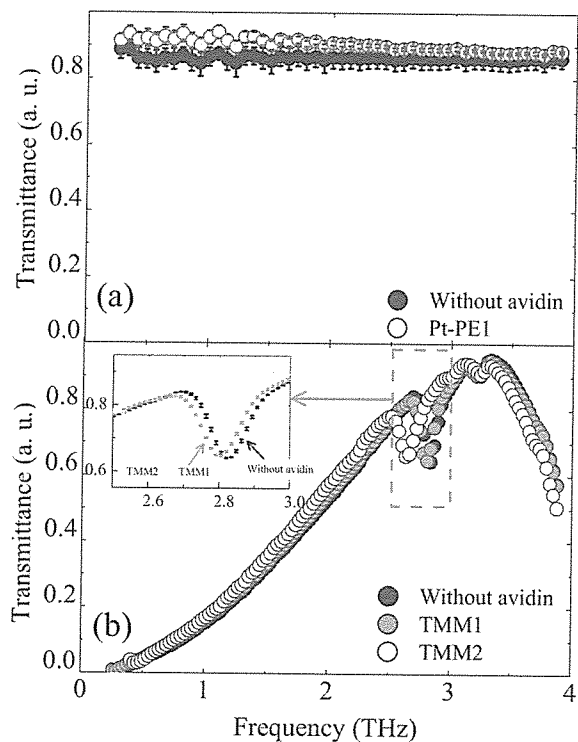


Fig. 8 Measured transmission characteristics of the samples. (a)Pt-PEI and the same substrate without avidin.(b)TMM1:200ng/mm<sup>2</sup>,TMM2:1200ng/mm<sup>2</sup> and the same substrate without avidin.

図8にFT-IRにより測定した透過特性を示す。図8(a)はPt-PEIとPt-PEIと同じ基板でアビジンを固定していないサンプルの透過特性である。どちらの透過特性も周波数に対してフラットであり、透過率も同程度で有意な差が得られないため、タンパク質が固定されていることを判別することは困難である。一方、図8(b)は、薄型金属メッシュ(TMMと表記)のみの特性と、これらに先の濃度でアビジンを塗布した場合の透過特

性である。挿入図は、透過率の変化が急峻な部分(ディップ)の測定再現性をプロットした拡大図であるが、アビジンの濃度に応じてディップの谷となる周波数が、アビジンなしでは 2.82 THz, アビジンの濃度の低い TMM1 では 2.81 THz, アビジンの濃度の高い TMM2 では 2.64 THz と低周波側にシフトしている。このことは薄型金属メッシュ近傍の局所的に電界が強い部分にアビジンを固定することより、アビジンの複素屈折率が固定量に応じてその電場に影響を及ぼし、周波数特性の変化としてテラヘルツ帯で検出されていることを示している結果であると考える。

### 3. おわりに

本報では特に農学への応用に着目した研究例を報告した。食品分析については、糖と水との関係について THz 帯の分光スペクトルによる吸収と、既存技術のカルフィッシャー法との比較を行い、分光スペクトルから糖に含まれる水分量が精度良く計測できることを示した。非破壊水分計測については、植物中の水分変化の様子を画像で計測できることを実験的に明らかにした。さらに、水が凍ることにより THz 帯もしくは電波帯の電磁波の吸収が大きく変化することを利用した水分計測法を試みた結果、水分含有量を変えたエマルジョン中の水分量を見積もれる可能性を示した。また、新しいセンシング方法として、薄型金属メッシュの透過特性がメッシュ開口近傍にサンプルが塗布されることで特性がシフトすることを利用したセンシング方法を提案した。さらにこの上に ESD 法を用いてアビジンを均一に塗布し、200ng/mm<sup>2</sup> を判別できることを示した。

これらの研究は、今後食品分析や生体モニタリングなど様々な農学に関する研究ツールとして THz 波が活躍できる可能性を秘めていることを示している。今後さらに、これらを用いることで、農学に関する新しい知見や発見につながる研究を目指す予定である。

### 謝 辞

本研究の遂行にあたり、アドバンテスト研究所の加藤英志氏、東北大学大学院農学研究科の学生の皆さん(川井泰英君、佐藤光君、Cheng Li さん、渡部公一君)に御協力いただきました。また、株式会社フューエンスの加瀬廣取締役副社長ならびに最上要主任研究員には、メッシュセンサーへのサンプル塗布に際し快くご協力いただきました。記して感謝申し上げます。

### 文 献

- [1] M. Yamaguchi, F. Miyamaru, K. Yamamoto, M. Tani, and M. Hangyo, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 053903 (2005)
- [2] M. Takahashi, Y. Ishikawa, J. Nishizawa, H. Ito,

*Chem. phys. Lett.* **401**, 475-482 (2005).

- [3] M. Walther, B. Fischer, M. Schall, H. Helm, and P. U. Jepsen, *Chem. Phys. Lett.* **332**, 389-395(2000).
- [4] B. M. Fischer, M. Walther, and P. U. Jepsen, *Phys. Med. Biol.* **47**, 3807-3814(2002)
- [5] P. C. Upadhyay, Y. C. Shen, A. G. Davies and E. H. Linfield, *J. Bio. Phys.*, **29**, 117-121(2003).
- [6] M. Brucherseifer, M. Nagel, P. Haring Bolivar, and H. Kurz, A. Bosserhoff and R. Büttner, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 24, 4049-4051(2000)
- [7] H. Hirori, K. Yamashita, M. Nagai and K. Tanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43**, 10A, L1287-L1289 (2004).
- [8] K. Kawase, Y. Ogawa, T. Watanabe and H. Inoue, *Opt. Exp.*, **11**, 2549 (2003).
- [9] M. Brucherseifer, M. Nagel, P. H. Bolivar, H. Kurz, A. Bosserhoff and R. Büttner, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4049 (2000)
- [10] M. Nagel, P. H. Bolivar, M. Brucherseifer, H. Kurz, A. Bosserhoff and R. Büttner, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 154 (2002).
- [11] S. P. Mickan, A. Menikh, H. Liu, C. A. Mannella, R. MacColl, D. Abbott, J. Munch, and X.-C. Zhang, *Phys. Med. Biol.*, **47**, 3789 (2002).
- [12] B. Ferguson and X.-C. Zhang, *Nature materials*, **1**, 26 (2002).
- [13] M. R. Querry, D. M. Wieliczka and D. J. Segelstein, *Handbook of Optical Constants of Solids II*, 1059 (1991).
- [14] 野並浩, "植物水分生理学," pp.1-70, 養賢堂 (2001).
- [15] 漆崎末夫, "農産物の鮮度保持," pp. 15-34, 筑波書房 (1997) .
- [16] K. Kawase, J. Shikata, H. Ito, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **35**, no. 3, pp. R1-R14 (2002).
- [17] S. G. Warren, *Applied Optics*, **23**, p. 1206 (1984).
- [18] C. Zhang, K.-S. Lee, X.-C. Zhang, X. Wei and Y. R. Shen, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, p. 491 (2001).
- [19] M. Mizuno, C. Otani, and K. Kawase, Y. Kurihara, K. Shindo, Y. Ogawa and H. Matsuki, *J. of Electromagn. Waves and Appl.*, **20**, 3, pp.341-349, (2006).
- [20] R. Ulrich, *Infrared Physics*, **7**, 37 (1967).
- [21] K. Sakai, T. Fukui, Y. Tsunawaki and H. Yoshigawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **8**, 1046 (1969).
- [22] Victor N. Morozov and Tamara Ya. Morozova., *Anal. Chem.*, **71**, 1415-1420, 1999.



## 29p-ZA-2 マイクロチップNd:YAGレーザー励起による光注入型テラヘルツ光パラメトリック発生器

Injection-seeded THz-wave parametric generator pumped by microchip Nd:YAG laser  
 堀崎<sup>1</sup>, 東北大<sup>1</sup>, 浜本<sup>1</sup>, 分子研<sup>1</sup>, 冬大<sup>1</sup>, 小林一郎<sup>1,2</sup>, 斎井博<sup>3</sup>, 曾根文<sup>3</sup>, 平谷拓雄<sup>4</sup>, 大谷知行<sup>1</sup>, 小川達一<sup>3</sup>, 川瀬晃道<sup>1,2,3</sup>  
 RIKEN<sup>3</sup>, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, HAMAMATSU Photonics K.K.<sup>2</sup>, IIS<sup>3</sup>, Kagaya Univ.<sup>4</sup>, Sakai Tetsuro Hayashi<sup>1,2</sup>, Hiroshi Sakai<sup>3</sup>, Hirofumi Kan<sup>1</sup>,  
 shunfumi@iken.jp

はじめに 我々は、テラヘルツ(THz)波を利用した応用研究において幅広く利用可能なTHz光パラメトリック発生器の小型化に資する研究を進めている。従来の光注入型THz光パラメトリック発生器は、長パルス幅(15-25 ns)を有する大型の励起光源を必要としたため、光源全体としての小型化は困難であった。本研究では、超小型で単一モード発振のマイクロチップNd:YAGレーザーを励起光源とし、THz光パラメトリック発生を行って結果を報告する。

実験: レンズによってコリメートされた励起光(1064 nm)は、MgO:LiNbO<sub>3</sub>結晶入射し、アイトレー光とTHz光を発生させる。このとき、位相整合条件を満たすように別の連続波レーザー光を注入し、発生THz波の高出力化および発振線幅の狭帯化を行った。発生したTHz光はSSBロモーターによって検出した。

結果: 図1に、出力THz波時間波形を示す。注入光がある場合とない場合を比べて示してある。励起光エネルギーが350 μJ/pulseのとき、THz光出力は、注入光がない場合には約1 mW(尖峰値)、注入光(20 mW)がある場合には20 mW(尖峰値)であった。これは、20倍程度の出力増強であるとともに、100倍以上の発生THz光線幅の狭帯化(1 THz以上 → 10 GHz以下)が見込まれる。詳細は当日報告する。

謝辞: この研究を進めるにあたり、理研の南川泰三研究員、松岡文孝研究員、伊藤弘昌チームリーダー、平山秀樹チームリーダー、緑川京美主任研究員に深く感謝する。

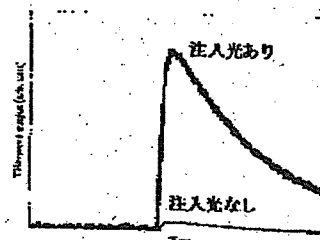


図1 出力THz波時間波形