

---

# バイオセンシングを指向した可視光対応型 ナノインプリント製二次元フォトニック結晶共振器の開発

## Development of nanoimprint lithography-based two-dimensional photonic crystal resonator for biosensing application

---

H26助自11

代表研究者 遠藤達郎 大阪府立大学 大学院工学研究科 准教授  
Tatsuro Endo Associate Professor, Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University

In this study, the nanoimprint lithography (NIL)-based two-dimensional photonic crystal (2D-PhC) resonator array that has a photonic band gap (PBG) in visible region (650 nm) was fabricated for biosensing application. The NIL-based 2D-PhC was fabricated using poly(methyl methacrylate) (PMMA). And the 2D-PhC resonator design for localization and amplification of specific wavelength of light were analyzed using finite-difference time-domain (FDTD) method. This NIL-based 2D-PhC resonator was achieved to amplify the specific wavelength of light (approximately 100 times). And for the sensing application, the layer-by-layer (LbL) method using poly(allylamine hydrochloride) (cationic layer) and poly(sodium 4-styrenesulfonate) (anionic layer) was applied for evaluation of sensing performance. As a results, the frictional refractive index change by the deposition of organic layers (under 2 nm) using LbL method could be detected as an amplification ratio change. From these results, this NIL-based 2D-PhC resonator has a great potential for high sensitive biosensor.

### 研究目的

本研究の目的は、バイオセンサー応用に特化したナノインプリント製フォトニック結晶 (Photonic crystal: PhC) ナノ共振器を開発し、可視領域の光源を用いて測定対象物質の検出を行うことにある。

PhCナノ共振器は、ナノメートルサイズの周期構造へ欠陥構造を導入した構造を有する光学デバイスである。PhCナノ結晶共振器は、共振器内へ特定波長の光を閉じ込めることが可能なデバイスであり、レーザーや光回路素子への応用研究が盛んに進められている。

一方で近年PhCナノ共振器内への光閉じ込め効率が、抗原抗体反応や有機物堆積などに

よって引き起こされる周辺屈折率変化によって顕著な閉じ込め効率変化が観察されることが見出され、センサーとして有用であることが明らかとなっている。しかし、これまでに報告されているPhCナノ共振器を用いたセンサーは、①作製が煩雑、②赤外領域の光源を測定に使用している、③センサー応用に特化したPhCナノ共振器の設計が行われていない、という点で課題があった。

前述した課題を解決するために本研究では、①ナノインプリントリソグラフィーを用いてフォトニック結晶共振器を作製する、②可視光源で測定が可能なフォトニック結晶共振器を設計する、③バイオセンサー応用に特化した構造を設計する、ことを実施した。

本研究によって開発するセンサーは、非標識かつ試料導入のみの操作で測定対象物質を検出可能であるため、現在医療現場において広く用いられている診断デバイスよりも簡便なセンサーとなる結果が予想される。これは、医療従事者自身の手で迅速に診断・治療方法を決定できるようになることを意味し、疾病の重篤化を防ぐことが可能な技術となりうるため、医療診断分野に大きく貢献できる点で意義がある。

## 概 要

本研究では、高齢化社会が進む我が国において医療費負担額を軽減させるため、癌や生活習慣病、神経変性疾患など罹患率の増加が予想される疾病を早期に診断可能にすることを目指した高感度バイオセンサーの開発を行った。

本研究で開発したバイオセンサーは、ナノメートルサイズの周期構造を有する光学デバイス「フォトリソニック結晶 (Photonic crystal: PhC)」へ点欠陥構造を導入したPhCナノ共振器を用いることとした。加えてPhCナノ共振器は、①ナノインプリントリソグラフィ (Nanoimprint lithography: NIL) を用いて、②樹脂を基材として作製し、③可視領域の光源を用いて、測定対象物質の検出・定量が可能となるように設計・作製を行った。さらにNILにて作製したPhCナノ共振器を用いてセンサー性能評価を行った。

本研究で作製したPhCナノ共振器は、波長650 nm (赤色) の光を共振器内へ閉じ込め・増幅させることが可能な構造を設計した。設計には、基材としてPoly (methyl methacrylate) (PMMA,  $n = 1.49$ ) を用いることとし、有限差分時間領域 (Finite-difference time-domain: FDTD) 法を用いたシミュレーション解析を行うことで、ホールアレイ形状を有するPhCナノ

共振器の格子定数、ホール半径を調べた。シミュレーション解析の結果、PhCナノ共振器は、格子定数 $a = 320$  nm, ホール半径 $r = 120$  nm ( $r/a = 0.36 \sim 0.37$ ) とすることで波長622.57 ~ 646.46 nmにおいてフォトリソニックバンドギャップ (Photonic band gap: PBG) が形成されることを見出した。加えて、設計した構造において点欠陥構造を導入した場合、欠陥内に入射光の閉じ込め・増幅が生じることを確認することができた。

加えて、シミュレーション解析によって得られたPhCナノ共振器構造をNILにて作製するため、金型の作製を行った。本研究では、シリコン基板へ電子線描画、反応性イオンエッチング操作を経ることで、設計した構造を反転させた形状を有する金型を作製した。PhC共振器は、PMMAを塗布・乾燥させたシリコン基板上へ金型を設置、熱ナノインプリント (90℃, 10 MPa) にて作製した。作製したナノインプリント製PhCナノ共振器は、離型後走査型電子顕微鏡観察によって目的とする形状・サイズを有するPhCナノ共振器が作製できたことを確認した。

作製したナノインプリント製PhCナノ共振器は、FDTD法を用いたシミュレーション解析結果と同様に、波長650 nmのレーザー光 (100 mW) をPhCナノ共振器へ照射すると、欠陥構造内に光を閉じ込め・増幅させることに成功した。しかし基材として使用したPMMAは、シリコンに比べて屈折率が低い。加えて作製したナノインプリント製PhCナノ共振器は、NIL時にバルク層が形成されることから、バルク層内に入射光が伝搬してしまい、観察された欠陥構造内への光閉じ込め・増幅効率は、シミュレーション解析より得られた結果よりも小さかった。ナノインプリント製PhCナノ共振器が、可視領域の光をさらに効率よく閉じ込め・増

幅させるには、①高い屈折率を有する樹脂材料を使用して作製する、②バルク層厚さを薄くするNIL条件について検討を行う、事が今後必要と考えられる。

さらに本研究では、作製したナノインプリント製PhCナノ共振器を用いてセンサー性能評価を行った。センサー性能評価には、正または負の電荷をもつポリマーを交互に溶液積層させる手法であるLayer-by-Layer (LbL) 法を用いることとした。LbL法によってポリマー層を積層させていくと、ナノインプリント製PhC表面へ異なる屈折率を有する層が形成され、PBGがシフトし、PhCナノ共振器が閉じ込め・増幅可能な波長が変化する。本研究で作製したナノインプリント製PhCは、積層数を増加させていくことで欠陥構造内に観察される光強度が鋭敏に変化し、2層積層させるだけで観察される光強度変化量は約50%減少した。LbLで堆積される層の厚さは2層につき約2 nmであることから、ナノインプリント製PhCナノ共振器は、DNAやタンパク質などの生体分子よりもはるかに小さい分子においても検出・定量可能であることが明らかとなった。

以上の結果から、本研究で開発したナノインプリント製PhCナノ共振器は、バイオセンサーとして高感度に測定対象物質の検出・定量が可能であり、安価・簡易な光学系でも高感度に検出することが可能ということも明らかとなった。

－以下割愛－