様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２７ 年　 ６ 月 １９ 日現在

機関番号：１３８０１
研究種目：挑戦的萌芽研究
研究期間：2013～2014
課題番号：２５６３０１４３

研究課題名（和文）SPアンテナ付SOIフォトダイオードを用いた光学バイオセンサーチップの開発

研究課題名（英文）Development of optical biosensor using SOI photodiode with SP antenna

研究代表者
佐藤　弘明（Satoh, Hiroaki）

静岡大学・電子工学研究所・助教

研究者番号：００３８０１１３

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,100,000円

研究成果の概要（和文）：　本研究では、シリコンベースで光の利用効率が高く、より簡素な光学系で検体検出が可能となるSP（surface plasmon）アンテナ付SOI（silicon-on-insulator）フォトダイオードを利用した光学バイオセンサーを検討してきた。
　主な成果として、(1)屈折率感度の向上、および簡素な測定を目的とした新たな評価方式の提案、および(2)水溶液対応のバイオセンサー開発を行った。他の測定手法と比べて比肩しうる屈折率感度が得られており、光源強度揺らぎ、水溶液温度揺らぎ、送液系振動の影響等を抑制すればさらに改善できるものと考えている。

研究成果の概要（英文）：In this project, a novel optical biosensor using the SOI (silicon-on-insulator) photodiode with SP (surface plasmon) antenna has been studied to realize the silicon-based integrated circuits, higher power utilization efficiency of light source, and simpler optical system.
We could obtain the major results including that (1) a new evaluation method has been proposed to increase the refractive index sensitivity, and (2) the biosensor system has been developed to treat solutions. In our proposed system, the comparable refractive index sensitivity with that of the other optical biosensor system has been obtained, and it may be further enhanced by reducing the influences of the light source intensity fluctuations, the solution temperature fluctuations, the system vibrations, and so on.

研究分野：電子デバイス・電子機器

キーワード：バイオセンサー　屈折率測定　表面プラズモンアンテナ　SOIフォトダイオード

１．研究開始当初の背景

SPR (surface plasmon resonance)センサーに代表される、検体の付着に伴う光学的な屈折率変化を計測する光学バイオセンサーは、蛍光標識なしの検体検出を可能とする。ところが光源や光検出器をセンサー外部に配置する必要があり装置全体が大型となることから、同時並列測定には困難性が残されていた。バイオセンシングにおいては多種の生体物質の中から特定のものを探索する際、非常に多くの測定数を必要とする場合がある。もし同時並列測定が容易に行えるようになれば、生体物質の探索は格段に効率化させられる。そのため本研究では、簡素な光学系で動作し、かつ集積回路で構成できるような新しい原理の光学バイオセンサーチップの開発に挑戦した。

本研究の光学バイオセンサー素子として、研究代表者らがこれまでに独自に開発してきた SP (surface plasmon)アンテナ付 SOI (silicon-on-insulator)フォトダイオードを利用している。特定波長の光を選択的に受光できるため分光光度計としての機能を有し、単体の寸法が数十 μm と小型である。さらに、SP アンテナ近傍の屈折率を、光電流の分光特性におけるピーク波長変化量によって測定できることが研究開始当初から理論的に示されていた。同一の SOI 基板上にフォトダイオードを多数集積したチップを構成でき、受光素子内蔵型であるため、光学系を含めた装置全体の寸法をコンパクト化できる。したがって、同時並列測定に対しても有望と考えられる。

２．研究の目的

本研究では上記の背景を踏まえ、SP アンテナ付 SOI フォトダイオードを利用した屈折率測定を実験的に検証し、多種の検体を同時に検出できる、コンパクトで高スループットな光学バイオセンサーチップを開発することを目指した。

３．研究の方法

本研究では SP アンテナ付 SOI フォトダイオードによる屈折率測定を実証すること、および屈折率測定の性能を向上させるための方法を検討することが不可欠となる。そこで、以下の４つの方法で検討を行った。

(1) 非導電性液体による光学バイオセンサーとしての動作実証

まず初めに SP アンテナ付 SOI フォトダイオードの SP アンテナ近傍の屈折率に対する応答変化を実験的に検証することから開始した。作製されたフォトダイオードは電極がむき出しの状態となっていたので、検討の簡略化のため、まずは非導電性液体を用いて測定した。

(2) 測定の効率化に向けた検討

本研究の提案当初は、屈折率に対する応答を光電流分光特性におけるピーク波長の変化を読み取って計測する方式を想定していた。その場合、白色光源を分光器による波長走査によって測定する必要があった。そこで、レーザー等の光強度の高い単色光源で、一度の測定で屈折率を測定できる方式を新たに検討した。

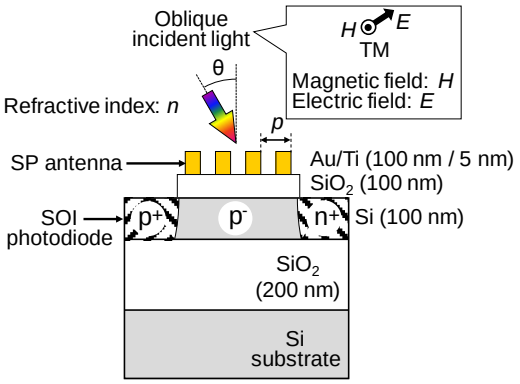


図１．SP アンテナ付 SOI フォトダイオードのデバイス断面図と入射光の条件

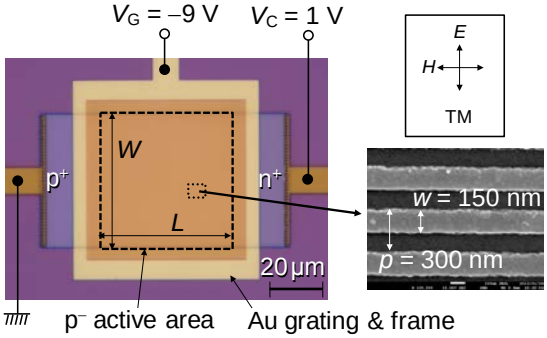


図２．作製した SP アンテナ付 SOI フォトダイオードと入射偏光

(3) 高性能化に向けた検討

実験的な検証の進展に伴い、光源強度揺らぎ等、光学バイオセンサーの性能に悪影響を及ぼす要因が顕在化してきた。そこで、これらの要因の影響を受けにくい新たな測定方式について検討した。

(4) 水溶液対応の光学バイオセンサーチップの作製

生体物質を取り扱うためには、光学バイオセンサーチップが水溶液に対応していなければならない。そこでフォトダイオードのアノードとカソードを非導電性樹脂で覆い、電流が水溶液中を流れないような光学バイオセンサーチップを製作した。

４．研究成果

研究成果は以下の通りとなった。

(1) 非導電性液体による光学バイオセンサーとしての動作実証と理論的予測との比較について

図１に SP アンテナ付 SOI フォトダイオードのデバイス断面図と入射光の条件を示し、図２に作製したデバイスの上面図と入射偏光を示す。図３に SP アンテナ近傍の屈折率

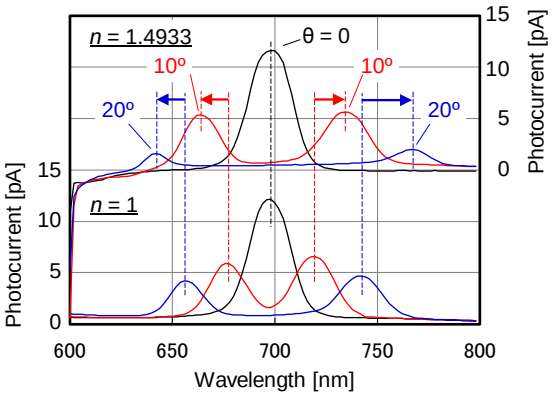


図３． SP アンテナ近傍の屈折率変化に伴う SP アンテナ付 SOI フォトダイオードの応答変化（ピーク波長シフト）の実測結果

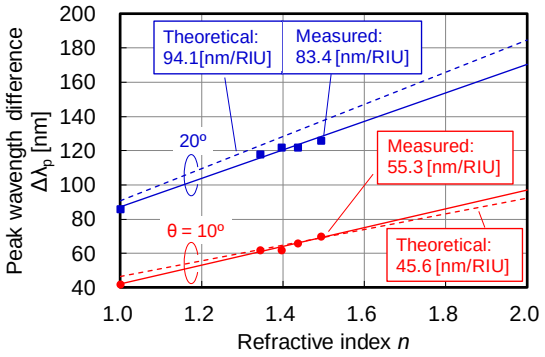


図４．図３における２つのピーク波長の差に対する屈折率依存性（理論特性と実測値）

を非導電性液体によって変化させた際のフォトダイオードの応答変化（実測）を示す。垂直入射（θ ＝ 0）の場合は屈折率の変化に対してピーク波長の変化は見られないものの、斜め入射（θ ＝ 10º, 20º）の場合はピーク波長がシフトする。これは、周期構造の SP アンテナによって回折された光と、SOI 層を横方向に伝搬する導波路モードとの位相整合条件に基づくものであることが研究代表者らによって理論的に示されている。図４には、斜め入射の際に２つ現れる光電流のピーク波長の差を取り、その屈折率依存性を実測したものである。ピークが２つ現れるのは、回折光と SOI 導波路モードとの位相整合条件が、SOI 導波路中における伝搬方向（入射光の到来方向に対して前進する波と後進する波）によって異なることに起因する。入射角 10º と 20º の両者とも、位相整合条件に基づく理論特性と実測結果がほぼ一致しており、SP アンテナ付 SOI フォトダイオードが光学バイオセンサーとして利用できることが示された。入射角度が大きくなると図４の傾きも大きくなって屈折率感度が高まるが、図３の分光特性のようにピークの光電流が小さいため、信号対雑音（S/N）比を低下させる。そのため、最適な入射角度は S/N 比も勘案した議論が必要である。

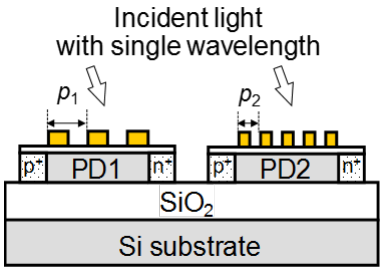


図５． １波長２ダイオード方式によって屈折率測定を行うデバイス断面図

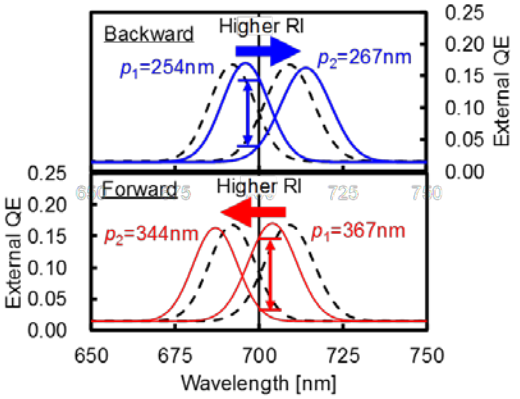


図６． １波長２ダイオード方式における屈折率変化に伴う光電流差の変化（ここでは量子効率を示しているが、入射光パワーと電子電荷を掛けて、1 光子エネルギーで割ると光電流になる）

（2）測定の効率化に向けた検討について

測定の効率化のため、波長走査不要な方式を検討した。具体的には１波長２ダイオード方式と呼ばれるもので、ピーク波長が異なるように設計された２つの SP アンテナ付 SOI フォトダイオードの電流値を比較して屈折率測定を行うものである。フォトダイオードのピーク波長は SP アンテナの周期によって調節可能である。図５にデバイス構造を示す。２つの SP アンテナ付 SOI フォトダイオードに対して斜め入射の光を同時に照射する。２つのフォトダイオードの光電流が入射波長と中心屈折率においてピークの半値となるように、SP アンテナの周期は設計される。したがって中心屈折率の場合は光電流差が 0 となる。図６は、入射波長が 700 nm、入射角 15º, 中心屈折率を 1.4 と設計された条件下において、検体屈折率が大きくなった場合の分光特性の変化を示したものである。屈折率が中心の 1.4 からずれると、ピークのシフトに伴って光電流差が生じる。この光電流差を読み取ることで、屈折率を測定する。波長走査が不要なため、測定効率が格段に向上する。なお、入射波長と中心屈折率において２つのフォトダイオードの光電流がピークの半値となるように設計するのは、屈折率変化に対する光電流差の傾きが最大となるためである。図７にパワー密度 1 mW/cm² の光が入射された場合の光電流差の屈折率依存性

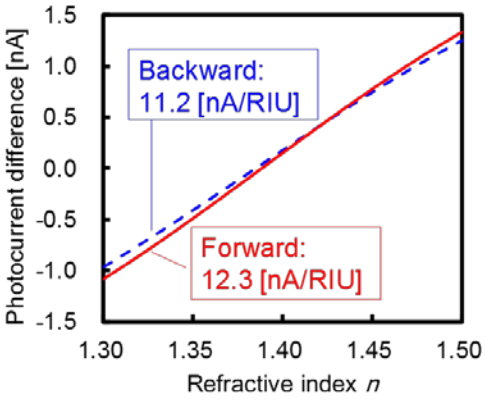


図７．入射光パワー密度を 1 mW/cm² とした際の光電流差の屈折率依存性

を示す。１波長２ダイオード方式を利用すれば、光電流差によって屈折率を測定できることが示された。ここで、フォトダイオードから出力される雑音はショット雑音が支配的であると仮定すると、図 7 の傾きから屈折率の測定限界は 1.6×10^{-6} RIU/Hz$^{1/2}$ と見込まれ、SPR センサーの測定限界（10^{-5}～10^{-8} RIU）に比肩しうる値が得られた。本研究の光学バイオセンサーはコンパクト化や同時並列測定数の増加に対して有望であることも考慮すると、得られた性能値のインパクトを極めて大きいと考えている。

（3）高性能化に向けた取り組みについて

上記の成果によって SPR センサーに比肩しうる性能が得られたものの、実験の進展に伴い、光源強度の揺らぎ、温度揺らぎ、送液系の振動による揺らぎ等が性能に悪影響を及ぼすことが顕在化した。これらの影響を抑制できれば、更なる性能の向上が見込める。まず光源強度揺らぎによる影響については、光源強度を意図的に変調し、出力電圧をロックイン検出する方式を新たに検討した。方形波による変調と正弦波による変調の２種類について実測した結果、正弦波による変調の方が１桁程度良好な検出限界の値を得た。詳細については順次公表していく予定である。その他の温度揺らぎ、送液系の振動による揺らぎ等の影響の抑制については今後の課題とする。

（4）水溶液対応の光学バイオセンサーチップの作製について

生体物質を取り扱うためには、光学バイオセンサーチップが水溶液に対応していなければならない。そこでフォトダイオードのアノードとカソードを非導電性樹脂で覆い、電流が水溶液中を流れないような光学バイオセンサーチップを開発した。光学バイオセンサーの性能評価において一般的に利用されるショ糖水溶液の濃度を変えて屈折率を調整し、SP アンテナ付 SOI フォトダイオードの応答変化を実測している。これについても詳細は順次公表していく予定である。また、例えばインフルエンザウイルスの抗体－抗原反応の測定を進めていく予定である。

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〕（計　０件）

〔学会発表〕（計１３件）

①佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「表面プラズモンアンテナ付ＳＯＩフォトダイオードを用いた集積化バイオセンサーにおける屈折率測定の性能評価」、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学（神奈川県平塚市）、2015 年 3 月 14 日.

②佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「表面プラズモンアンテナ付フォトダイオードを用いた屈折率測定の高感度化」、電子情報通信学会　電子デバイス研究会／シリコン材料・デバイス研究会、2015 年 2 月 5 日、北海道大学（北海道札幌市）.

③Hiroaki Satoh, Shohei Iwata, Atsushi Ono, and Hiroshi Inokawa, “Refractive Index Measurement by Photodiode with Surface Plasmon Antenna Intended for Biosensing,” The 2nd Int. Conf. Nano Electronics Research and Education (ICNERE), 2014 年 11 月 24 日、静岡大学（静岡県浜松市）.

④ (Invited) Hiroshi Inokawa, Hiroaki Satoh, Atsushi Ono, and Dedy Septono Catur Putranto, “Recent Progress in Photodetectors Based on Silicon-On-Insulator,” International Conference on Optoelectronics and Microelectronics Technology and Application (OMTA), 2014 年 11 月 13 日 Tianjin (China).

⑤佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「ホールアレイ型金属回折格子付ＳＯＩフォトダイオードの斜入射光に対する分光感度特性」、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日、北海道大学（北海道札幌市）.

⑥岩田将平、佐藤弘明、小野篤史、猪川 洋、「表面プラズモンアンテナ付ＳＯＩフォトダイオードを用いた１波長２ダイオード方式における屈折率感度の波長依存性」、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 19 日、北海道大学（北海道札幌市）.

⑦佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「金属回折格子による SOI フォトダイオードの感度向上」、電子情報通信学会　光エレクトロニクス研究会、2014 年 7 月 17 日、室蘭工業大学（北海道室蘭市）.

⑧岩田将平、佐藤弘明、小野篤史、猪川 洋、「集積化バイオセンサーを目指した表面プラズモンアンテナ付 SOI フォトダイオードの検討」、電子情報通信学会　電子デバイス研究会、2014 年 7 月 10 日、豊橋技術科学大学（愛知県豊橋市）.

⑨佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「ホールアレイ型金属回折格子付 SOI フォトダイオードにおける分光感度特性」、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、2014 年 3 月 19 日、青山学院大学（神奈川県相模原市）.

⑩岩田将平、佐藤弘明、小野篤史、猪川 洋、「表面プラズモンアンテナ付ＳＯＩフォトダイオードを用いた 1 波長 2 ダイオード方式による屈折率測定」、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、2014 年 3 月 17 日、青山学院大学（神奈川県相模原市）.

⑪佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「同心円状金属回折格子付 SOI フォトダイオードにおける分光感度の偏光依存性」、第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、2013 年 9 月 20 日、同志社大学（京都府京田辺市）.

⑫佐藤弘明、岩田将平、小野篤史、猪川 洋、「表面プラズモンアンテナ付 SOI フォトダイオードを用いた屈折率測定」、第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、2013 年 9 月 16 日、同志社大学（京都府京田辺市）.

⑬ Hiroaki Satoh, Shohei Iwata, Ken Kawakubo, Atsushi Ono, and Hiroshi Inokawa, “Refractive Index Measurement by SOI Photodiode with Gold Surface Plasmon Antenna,” 2013 IEEE Silicon Nanoelectronics Workshop (SNW) , 2013 年 6 月 10 日, リーガロイヤルホテル京都（京都府京都市）.

〔図書〕（計　０件）

〔産業財産権〕
○出願状況（計　３件）
①名称：屈折率測定方法
発明者：猪川　洋、佐藤弘明、小野篤史
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願 2013-187478
出願年月日：平成２５年９月１０日
国内外の別： 国内

②名称：屈折率測定装置
発明者：猪川　洋、佐藤弘明、小野篤史
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願 2015-027423
出願年月日：平成２７年２月１６日
国内外の別：国内

③名称：屈折率測定装置
発明者：猪川　洋、佐藤弘明、小野篤史
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願 2015-027772
出願年月日：平成２７年２月１６日
国内外の別：国内

○取得状況（計　０件）
なし

〔その他〕
なし

６．研究組織
(1)研究代表者
佐藤　弘明（SATOH, Hiroaki）
静岡大学・電子工学研究所・助教
研究者番号：００３８０１１３

(2)研究分担者
猪川　洋（INOKAWA, Hiroshi）
静岡大学・電子工学研究所・教授
研究者番号：　５０３９３７５７

董　金華（DONG, Jinhua）
静岡大学・グリーン科学研究所・特任助教
研究者番号：　８０５２７８３８

孫　芳芳（SUN, Fangfang）
静岡大学・グリーン科学研究所・助教
研究者番号：　４０７１４１７６

(3)連携研究者
なし