

磁氣的 Mie 共鳴効果を用いたテラヘルツ領域電子スピン 共鳴イメージング法の開発

神戸大学 大学院理学研究科 大道英二

Electron Spin Resonance Imaging in the Terahertz Region Using the Magnetic Mie
Resonance Effect

Eiji Ohmichi

Graduate School of Science, Kobe University

電子スピン共鳴(ESR)イメージング法は、物質中に存在している不対電子濃度の空間分布を画像化する実験手法である。テラヘルツ領域で ESR イメージング測定を行うと高い空間分解能を得ることが可能になるが、信号雑音比が低下してしまうという課題がある。本研究ではこのような課題を解決する方法として、局所的に振動磁場を増強できる微小なアンテナ素子に着目する。このようなアンテナには、磁氣的 Mie (ミー) 共鳴アンテナやディアボロ型アンテナが知られている。そこで本研究では、テラヘルツ領域で動作する振動磁場増強アンテナ素子の開発を行い、テラヘルツ領域 ESR イメージング法への応用を目指す。

Electron spin resonance (ESR) imaging is an experimental technique for imaging the spatial distribution of unpaired electrons in a sample of interest. Although ESR imaging measurements in the terahertz region enable higher spatial resolution, they have a disadvantage of lower signal-to-noise ratio. In this study, we focus on micro-sized antennas that can locally enhance the oscillating magnetic field components as a way to solve this problem. Magnetic Mie resonance antennas and diabolo antennas are known as such antennas. In this study, we will develop these antennas to enhance the oscillating magnetic field components in the terahertz region and apply them to ESR imaging methods in the terahertz region.

1. はじめに

電子スピン共鳴(ESR)イメージング法は、物質中に存在している不対電子濃度の空間分布を画像化する実験手法である¹⁾。主に生体内ラジカルの空間分布測定などに用いられているが、1GHz 程度の低周波数帯で測定を行っているため、空間分解能が低い(～数 mm)という欠点がある。そのため、ESR イメージング法は現状では広く普及しているとは言えない状況にある。しかし、実際には電子デバイスや機能性材料においてラジカルが重要な役割を担っていることはよく知られており、その空間的な情報に対する需要は極めて高い。例えば、リチウムイオン2次電池やフレキシブルデバイスといった電子デバイスでは劣化に伴って素子内部にラジカルが生成することが知られている。そのため、デバイスの長寿命化をはかる上で劣化原因となるラジカルの生成位置を把握することはデバイスの信頼性向上において重要である。

このような ESR イメージング法における低い空間分解能の問題を解決するためには、よりエネルギーの高い周波数帯の電磁波を用いることが有効である。例えば、マイクロ波よりも周波数が 2~3 桁大きなテラヘルツ波 (0.1~1 THz) を用いることで、従来の ESR イメージング法を超えた空間分解能を得ることが可能になる。しかし、ESR イメージングでは空間分解能を高くすると、信号検出領域に含まれるスピンの数が減少するため、一般に信号雑音比が低下する。そのため ESR イメージングをテラヘルツ領域で行うためには ESR 測定の実検出感度を向上する必要がある。

このような課題を解決する方法として、本研究では微小なアンテナ素子を用いて電磁波の振動磁場成分を局所的に増強する方法に着目した。一般に ESR 信号強度は、スピン系に印加される振動磁場成分の 2 乗に比例することから、このようなアンテナ素子を用いるとイメージング領域の ESR 検出感度を局所的に増強できる。本研究では、このような微小アンテナ素子として磁氣的 Mie 共鳴アンテナ²⁻⁴⁾とディアボロ型アンテナ⁵⁻¹⁰⁾に着目した。前者は磁氣的 Mie 共鳴効果と呼ばれる現象、後者は局所的な電流狭窄効果を利用したアンテナ素子となっている。以下では、本研究で行ったそれぞれのアンテナ素子についての開発成果について述べる。

2. ディアボロ型アンテナ

ディアボロ型アンテナとは、図 1 に示すような 2 つの三角形の頂点を細い線 (ストリップ) でつないだ形状をしているアンテナ素子を指している。このようなアンテナに対して、電磁波の偏光面をストリップに対して平行に入射すると振動電場によってストリップ内に振動電流が誘起され、ストリップの周囲に円周上の振動磁場が発生する。ディアボロ型アンテナは LC 回路と等価にみなせることから、ある特定の共鳴周波数で共鳴的に振動電流が増大し、強い振動磁場を発生させることができる。そのため、形状を最適化することで所望の周波数で振動磁場を増大させることができる。

本研究では、まず、アンテナの形状を変えることで振動磁場の増強度や共鳴周波数がどのように変わるか調べた。電磁波解析シミュレーションは CST Microwave Studio を用いて行った。アンテナに対して垂直方向から平面波を入射し、その周波数応答から振動磁場成分の増強度を求めた。図 2 には、基本となるアンテナ (横 184 μm 、縦 120 μm) と、その

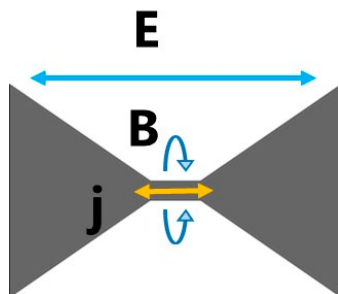


Fig. 1: Diabolo antenna.

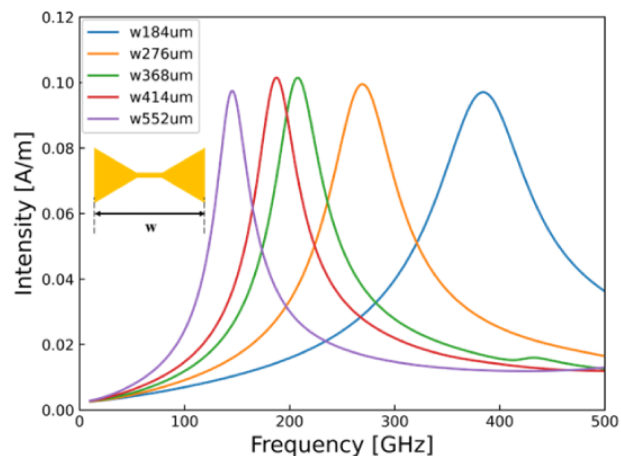


Fig. 2: Frequency response of diabolo antennas with different geometrical parameters.

大きさを相似的に変化させたアンテナの周波数応答を示す。基本サイズのアンテナでは 384 GHz 付近に共鳴ピークが観測され、共鳴ピークの線幅はおよそ 100 GHz であった。サイズを大きくしていくとアンテナ幅の逆数に比例して、共鳴周波数が減少することが分かった。また、周波数応答を共鳴周波数で規格化すると 1 つの曲線に重なることが分かった。一方、増強度についてはアンテナのサイズに依らず概ね 30 程度という値が得られた。アンテナサイズを大きくすると受光面積が増大する一方で、ストリップの幅が広くなることから、両者が相殺してサイズに依存しない増強度になっていると考えられる。このシミュレーション結果から、ディアボロ型アンテナでは単一の素子でも比較的広い周波数範囲で振動磁場の増強が可能であり、分光的な測定に適していることがわかる。

ディアボロ型アンテナは平面状の金属アンテナであり、作製が比較的容易な点も利点の 1 つに挙げられる。図 3 に、実際にシリコン基板上にフォトリソグラフィーで作製したディアボロ型アンテナの例を示す。現在、このアンテナによる振動磁場の増強度を実験的に調べるため、我々が開発してきた力検出型 ESR 測定装置^{11,12)}と組み合わせた実験を進めている。ディアボロ型アンテナでは、増強度が偏光面とストリップの角度 θ に対して $\cos\theta$ 的な依存性を示すことが期待される。

そのため、偏光面を回転させながら ESR 測定を行い、信号強度の角度依存性からディアボロ型アンテナの増強度を実験的に評価することができる。

また、本研究ではより広帯域な周波数領域における振動磁場増強を目的として、大きさの異なる 2 つの U 字型アンテナを入れ子状に重ねた変形型ディアボロ型アンテナ (Nested U-shaped antenna) を提案した(図 4)。このアンテナでは内側のストリップ上で、2 つのアンテナに起因する共鳴ピークが観測され、振動磁場増強の帯域を最大で 200 GHz まで拡張できることが分かった。このようなアンテナ素子を用いれば、分光的な ESR イメージング測定の広帯域化が可能になる。詳細な解析結果から、2 つのアンテナが入れ子状に配置されていることで両者のアンテナに静電的な結合が生じ、大きなアンテナを流れる振動電流が内側のアンテナにも周回的に流れることで広帯域化を実現していることが明らかになった。また、形状パラメータを系統的に変えることで、増強度と帯域幅をある程度制御できることがわかった。

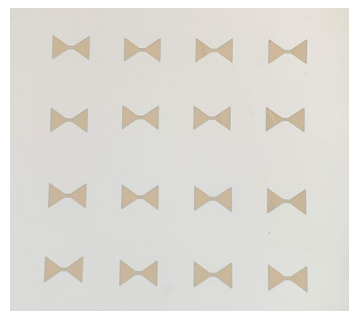


Fig.3: Planar diabolo antennas fabricated on a silicon substrate.

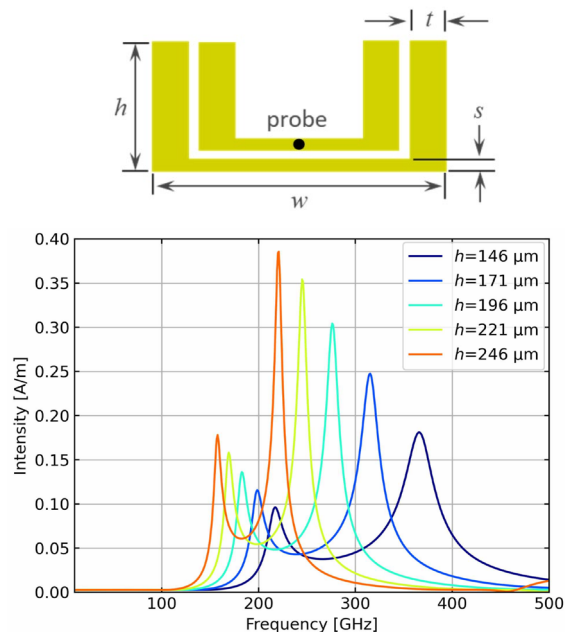


Fig.4: Geometry of nested U-shaped antenna (top). Frequency response of nested U-shaped antennas with different height parameters (bottom).

以上のことから、金属製の平面状ディアボロ型アンテナを用いることで印加電磁波の振動磁場強度を局所的に増強できることが分かった。テラヘルツ領域における増強度として数十程度という値が得られており、比較的広い周波数範囲で ESR 信号の増強効果が期待できることが分かった。

3. 磁氣的Mie共鳴アンテナ

波長と同程度のサイズからなる誘電体では、外部から照射した電磁波が特定の周波数において誘電体内部に閉じ込められ、強い増強効果を示すことが知られている。この時、電磁場の分布によって振動磁場成分が増強されるモードと振動電場成分が増強される2つのモードが存在する³⁾(図5)。ESR 測定では電子スピンと振動磁場が結合することから、ESR 信号の増強には磁氣的 Mie 共鳴モードを利用することができる。Mie 共鳴では、空洞共振器における共鳴モードと同様に双極子モード、四極子モードといった複数の共鳴モードが期待されることから、離散的な周波数において増強効果が期待される。

本研究では大きさが数百 μm 程度の誘電体に対して電磁波解析シミュレーションを行い、磁氣的な Mie 共鳴モードの周波数応答を調べた。その結果、図6に示すように複数の周波数において共鳴的な振る舞いが観測された。この計算では、誘電体としてシリコン単結晶を仮定している。それぞれのモードがどのようなモードに対応しているのかを調べるため、誘電体内部における振動磁場分布を解析した。その結果、双極子モードに対応する最も低周波数での共鳴に加え、複数の高次モードに対応する共鳴が観測された。また、四極子モードに対応する共鳴では極めて高い Q 値を示すことが分かった。この結果は比較的 Q 値が低いディアボロ型アンテナとは対照的な振る舞いである。そのため、磁氣的 Mie 共鳴アンテナは狭帯域ながら高感度な ESR 測定に応用できる可能性を示している。

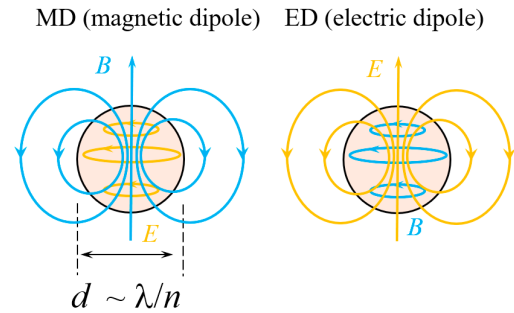


Fig.5: Magnetic and electric resonance modes expected for a dielectric sphere.

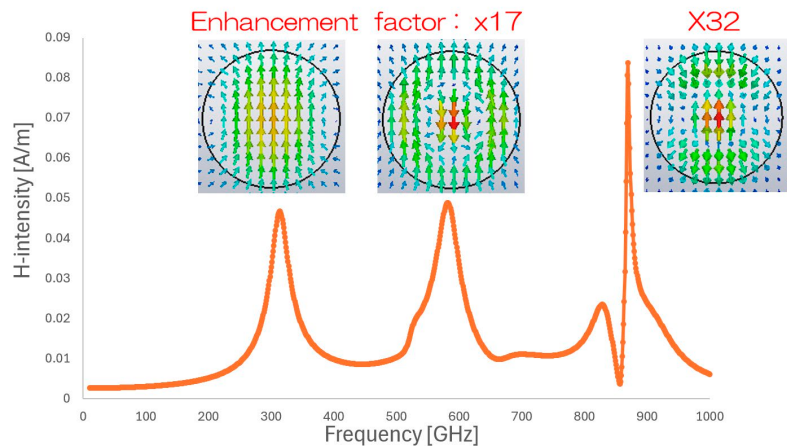


Fig.6: Magnetic resonance modes of a cylindrical dielectric antenna. The inset shows their magnetic field distribution inside and outside of the antenna.

Mie 共鳴アンテナの作製では誘電体材料を数百 μm 以下のサイズに加工する必要がある。現状では誘電体材料としてシリコン単結晶が加工性や入手性から有望であると考えている。高アスペクト比のシリコン微細加工をおこなうため、今後は DEEP RIE 装置を用いた磁氣的 Mie 共鳴アンテナの作製に着手したいと考えている。

4. まとめ

本研究では、テラヘルツ領域における電子スピン共鳴 (ESR) イメージング法の感度向上を目指してディアボロ型アンテナならびに磁氣的 Mie 共鳴アンテナの開発を行った。シミュレーションの結果から、アンテナサイズを系統的に変化させることでテラヘルツ領域における任意の周波数帯で振動磁場を増強できることが分かった。ディアボロ型アンテナでは広帯域での振動磁場増強効果が期待できるのに対し、Mie 共鳴アンテナではディアボロ型アンテナに比べて狭帯域でより大きな増強度を実現できることが分かった。このことはディアボロ型アンテナが分光的な測定に、Mie 共鳴アンテナはより高感度な測定に適していることを意味している。今後は、これらのアンテナを実際に用いてテラヘルツ領域における ESR イメージング測定に応用していきたい。

5. 謝辞

本研究は日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行いました。同助成会に感謝の意を表します。

6. 参考文献

- 1) 平田拓, 分光研究 **64**, 573 (2015).
- 2) A. B. Evlyukhin, C. Reinhardt, A. Seidel, B. S. Luk'yanchuk, and B. N. Chichkov, Phys. Rev. B **82**, 045404 (2010).
- 3) A. I. Kuznetsov, A. E. Miroshnichenko, M. L. Brongersma, Y. S. Kivshar, and B. Luk'yanchuk, Science, **354**, 846 (2016).
- 4) G. Boudarham, R. Abdeddaïm, and N. Bonod, Appl. Phys. Lett. **104**, 021117 (2014).
- 5) T. Grosjean, M. Mivelle, F. I. Baida, G. W. Burr, and U. C. Fischer, Nano Lett. **11**, 1009 (2011).
- 6) N. Yi, Z. Liu, S. Sun, Q. Song, S. Xiao, Carbon **11**, 501 (2015).
- 7) Z. Pan and J. Guo, Optics Express **21**, 32491 (2013).
- 8) M. Mivelle, T. Grosjean, G. W. Burr, U. C. Fischer, and M. F. Garcia-Parajo, ACS Photonics **2**, 1071 (2015).
- 9) M. Hrton, A. Konecná, M. Horák, T. Šíkola, and Vlastimil Křápek, Phys. Rev. Applied **13**, 054045 (2020).
- 10) B. C. Choi, Phys. Rev. Applied **11**, 044028 (2019).
- 11) H. Takahashi, K. Ishimura, T. Okamoto, E. Ohmichi, and H. Oha, J. Phys. Soc. Jpn **86**, 063002 (2017).
- 12) H. Takahashi, K. Ishimura, T. Okamoto, E. Ohmichi, and H. Ohta, Rev. Sci. Instrum. **89**, 036108 (2018).