

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 非線形ナノフォトニクス

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名

研究代表者

河田 聡 (大阪大学大学院工学研究科 教授 (兼)理化学研究所 主任研究員)

主たる共同研究者

段 宣明 (中国科学院理化技術研究所 教授)

高松 哲郎(京都府立医科大学大学院医学研究科 教授)

3. 研究内容及び成果:

本研究は近接場光学技術と、非線形分光技術を融合させ、「非線形ナノフォトニクス」分野を拓くべく、その基礎技術の開発と応用分野開拓を目指したものである。研究は分子イメージング研究グループ、機能化複合材料研究グループ、ナノマシン・ナノデバイス形成研究グループ、細胞刺激・加工研究グループの4グループで推進、得られた主要な成果を以下にグループ別に示す。

分子イメージング研究グループ

3次非線形効果であるコヒーレントアンチストークスラマン散乱(CARS)を金属探針先端の局所プラズモン増強電場で励起することに成功し、世界初の近接場CARS顕微鏡を実現した。この手法で得たDNAネットワークのCARSイメージ(アデニンの五員環伸縮モードを可視化)では、800 nmの光を用いて回折限界を大幅に超えた世界最高の15 nmの空間分解能を獲得することができた。

また当初の予想を超える成果として、観察分子と探針表面の金属原子とが機械的・物理化学的な相互作用を及ぼすことで分子振動の振動数がシフトする現象を見だし、量子化学計算に基づく理論解析により、振動数シフトは探針が分子を変形させる効果(力学的効果)と、探針先端の金属と分子が金属錯体を形成することによる電荷移動(化学的効果)の2種類の近接的相互作用によることを明らかにした。

機能化複合材料研究グループ

開発した金属ナノ粒子／ポリマーコンポジット材料からなる、新たな機能性材料を用い、2光子重合により作製したフォトニック結晶は、材料の屈折率差が大きいために光閉じこめ効果が高く、同じ構造で金属ナノ粒子を含まないものと比較して20 %程度の光閉じこめ効率の向上を確認した。また、同様の手法を応用して作製した半導体ナノ粒子／ポリマーコンポジット材料では、ポリマー中にドーブしたCdSナノ粒子の粒径を高精度に制御することで、発光波長が制御可能であるフォトニック結晶の作製にも成功した。

ナノマシン・ナノデバイス形成研究グループ

フェムト秒レーザーを用いて励起する多光子過程を用いた三次元ナノファブリケーション法を確立した。波長780 nmのチタンサファイアレーザーを用いて、体長わずか5 μmの牛の彫刻を造形するなど、他の方法では作製不可能な複雑な三次元造形物の作製に成功した。この方法の最小加工分解能は100 nm程度であるが、さらに、光硬化性樹脂の組成や温度、収縮率の検討を行い、現状では直径65 nmの細線の三次元的造形にまで発展させている。この方法は従来の積層型造形法では不可能であった複雑な三次元構造を自由に形成できる点に特徴があり、本手法を用いて作製した三次元ログパイル型フォトニック結晶では実際にフォトニックバンドギャップも観測している。また本手法を、多焦点光学系を用いたマルチスポット同時加工法にまで発展させ、メタマテリアル等で重要な周期構造の高精度な作製に威力を発揮する手法に拡張し、実用研究としても成果を残した。その他、作製した三次元構造をメタルコートしたプラズモニックナノスト

ラクチャーの作製や、プラズモニックバンドギャップレーザー、金属ナノレンズ、プラズモニック・メタマテリアルを提案するなど、三次元的な金属ナノ構造の有する特性を積極的に利用したナノデバイスの提案につながった。

細胞刺激・加工研究グループ

空間選択性を備えた細胞内機能分子制御法として、独自に多光子励起による発色団援用レーザー分子不活性化(Chromophore-assisted laser inactivation; 多光子CALI)を考案した。従来の方法では、主としてDNAやRNAなどのターゲットに作用するため空間分解能がなく、細胞の局所で目的分子の機能を選択的に活性化・不活性化させることができなかった。本研究の非線形過程である多光子励起を用いることで、高い三次元分解能と空間選択性を有した手法を実現した。

4. 事後評価結果

4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

本研究の成果は論文発表 157 件(和文 50、英文 107)、著書、解説 38 件、招待講演 293 件(国内 141/国際 152)、口頭(ポスター含)発表 303 件(国内 120/国際 183)に凝集され、適宜広く公開されている。特許は国内 23 件、海外 2 件が出願された。「非線形ナノフォトニクス」分野を拓くという目標を掲げて遂行された本研究がインパクトを持つことは国内外の招待講演や著書の実績にも如実に現れている。

非線形光学と近接場光学を融合した非線形ナノフォトニクスを確立することを目的とし、光子を用いてナノスケールで“観て”、“操って”、“創る”技術開発を推進し得られた成果は目を見張るものがある。非線形ラマン散乱分光であるCARS分光を光学的ナノメートル計測法である近接場顕微鏡と組み合わせ、世界最高峰の空間分解能で分子の振動を“観る”技術を開発した。細胞内の特定の場所に遺伝子導入によって発現させた蛍光タンパク質のみを多光子過程により励起することで、その蛍光タンパク質の周辺数ナノメートルの機能性タンパク質の機能を阻害する(“操る”)ことにも成功した。また、多光子過程を用いて100 nm分解能で同時に複数の3次元構造体や光ナノデバイスを“創る”技術や、このナノ加工技術に得たい機能を獲得するのに最適なナノ微粒子(TiO_2 やCdS)を高濃度に含む機能性複合材料を“創る”技術も確立した。近接場光学技術と非線形分光技術の融合と、従来の光技術や従来のプローブ顕微鏡では実現不可能なナノサイエンス、ナノテクノロジーの開拓という本プロジェクトの当初の目的は、基礎科学の観点からも応用的な観点からも、達成できたと言える。

さらに、プローブ/試料間の化学的効果によるラマンスペクトルの変化、物理的効果としての力印加にもなうラマンバンド振動数のシフト検出と分子レベルの超高分解能化、生きたままの細胞の3次元ラマン顕微分光、金属3次元ナノ構造による負屈折率構造の探求、プラズモニックバンドギャップレーザー、金属ナノレンズなど、当初の目標を遙かに超える新たな研究成果も生まれた。

またグループ間の連携では、分子イメージンググループと細胞刺激・加工研究グループの連携から多光子CALIによる細胞分裂の中期に現れるたんぱく質であるaurora Bの不活性化と細胞分裂のコントロールを実現したほか、細胞刺激・加工研究グループとナノマシン・ナノデバイス研究グループの連携から微細構造による細胞の成長ダイナミクスのコントロールを可能にし、機能化複合材料研究グループからは数々の機能性材料をナノマシン・ナノデバイス研究グループに提供し、ナノデバイス研究を加速してきた。いずれの成果も、非線形光学と近接場光学の技術の融合を追求する中で到達した成果であり、本プロジェクトの研究課題と戦略が極めて独創的であり、また本プロジェクトで組織したサブグループがお互いに機能的に寄与しあいながら研究を推進しえたことで結実したものと高く評価できる。

本研究は計画を超えて更なる高みを目指して進展している。空間分解能の向上目標を、1分子を分解して観察することができる近接場光学顕微分光法におき、そこに向かって進めていく武器となる方向性も見えてきてい

る。

また、負の屈折率を持つ材料や、光波領域の電磁波に対して負の磁気応答を示す材料など、自然界に存在しない光学特性を示す材料、いわゆる”メタマテリアル”は、金属ナノ構造とフォトンの相互作用を原理とするナノ材料であり、本研究を推進する中で到達した新しいナノフォトニクス研究テーマのひとつである。実現にはナノサイズの3次元金属構造の精密加工という大きなハードルがあるが、研究チームの有するポテンシャルの高さはそれを乗り越える期待を十分抱かせるものがある。

近接場光学と非線形光学の融合により光を用いてナノスケールを観て、操って、創る、ナノフォトニクス技術の新しいコンセプトを提案し、世界に先駆けて実現した功績はきわめて大きく、いずれの研究成果も先駆的で他の追随を許していない。

4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

これまで近接場光学は非伝搬性の光の特長を活かした展開に主眼があった。本研究はチップ先端で誘起されるプラズモン増強の応用により、チップと観察対象分子の相互作用をラマン分光スペクトルの変化として捕らえ、光の回折限界などの壁を突破する極めて高い空間分解能で、生体分子の観察を可能にし、顕微鏡として具体化したことが科学技術への幅広い貢献の土台となっている。そこから発展し、光でナノを観る、操作する、創るナノワールドの魅力をさまざまな側面で見せてきた。

本研究は、IP ネットワークの通信トラフィック量の拡大に対応できる次世代通信機構の求める光デバイス、光集積回路のプラットフォームの有力候補であるフォトニック結晶の三次元同期構造の形成や、非侵襲性医療システム実現のための生物系ナノ構造体や材料に係わる基礎的解析に資する生物細胞のナノイメージングが行われ、細胞培養などの実験技術に加えて、投薬に対する細胞の反応追跡などにおいて、今後の応用展開が期待されるなど貢献は多岐にわたる。

4-3. その他の特記事項(受賞歴など)

本研究で得た予想を超えた成果をベースにして、フォトンとエレクトロンとフォースを組み合わせたナノ顕微鏡といったコンセプトの実現をめざした研究が CREST の「物質現象の解明と応用に資する新しい計測・分析基盤技術」研究領域において「プラズモニック走査分析顕微鏡」として平成 18 年度から発展的に展開されている。当初大阪大学と京都府立医科大学の二拠点で開始して以降、理化学研究所、中国科学院と拠点拡大に際しても研究代表者のリーダーシップは遺憾なく発揮されダイナミックに研究が展開されたことも分野開拓に大きく貢献した。

それらの研究活動の一環として、プラズモニクスの応用に関する新たな学会を立ち上げ、ナノフォトニクスやナノオプティクスなどの書籍を統一した思想で出版するなど積極的に日本発の技術を幅広く社会貢献につなげていく姿勢は高く評価できる。

受賞については、河田聡、平成 17 年度文部科学大臣表彰「科学技術賞」、「近接場ラマン散乱顕微分光によるナノイメージングの研究」、平成 15 年度島津賞「近接場ラマン分光法の研究」が挙げられる。