

研究報告書

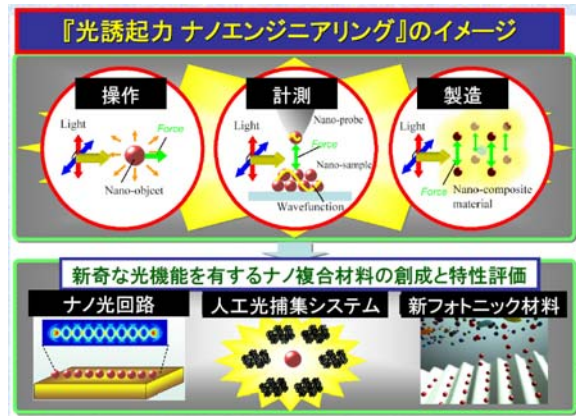
「デザインされた光場によるナノ複合体の力学制御」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：飯田 琢也

1. 研究のねらい

光は波長(周波数)・偏光・強度分布・角運動量など多彩な特性を持ち、ナノ物質はサイズ・形状・内部構造等の幾何学的自由度や相対的空間配置に依存して多彩な量子力学的・光学的特性を発現する。光電磁場を介して多数のナノ物質に渡る集団励起状態はこれら光-物質双方の性質を反映するため、光励起した場合に個々のナノ物質間に生じる力は多彩な性質を示す。本研究ではこの点に着目し、特性をデザインされた光場でナノ物質間の力学的相互作用と揺らぎのバランスを変化させて、ナノ複合体の集団運動制御の自由度を拡大することを狙い、理論的手法に基づいてナノダイナミクス制御のための新しい指導原理開拓を目的とした。また、基礎理論に留まらず、ナノ複合材料の『製造』・『計測』・『操作』のための技術群である「光誘起力ナノエンジニアリング」の原理開拓を目指した。



2. 研究成果

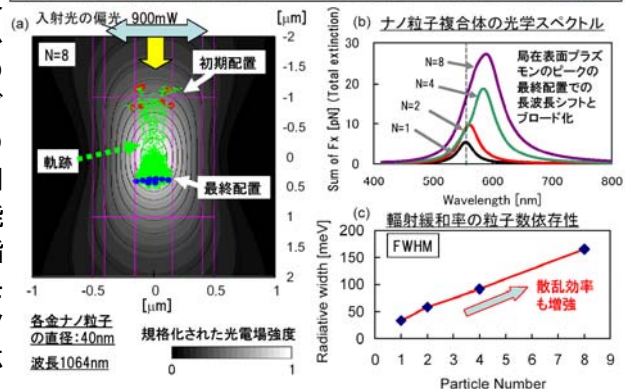
【(A)光誘起力の素過程解明: 光の特性と光誘起力の性質の相関、新現象の解明】

ナノ複合体のダイナミクス評価に先立ち光誘起力の素過程解明を行った。特に、複数の光周波数にも対応できる光誘起力の一般的表式を導出し、光電磁場を介した多粒子間相互作用に起因する「負の散逸力」や「超物質間光誘起力」といった光誘起力に関する極めて特異な現象を見出した(この成果は米国物理学会のWeb広報誌であるPhysical Review Focusで紹介された他、国内外の多数のメディアに取り上げられた)。また、光の軌道角運動量や円偏光がナノ物質や分子に及ぼす力の特性も解明し、光の各特性と光誘起力の関係がほぼ全て明らかとなった。さらに、さきがけ研究開始以前より対象としていた半導体ナノ粒子だけでなく、金属ナノ粒子やキラル有機分子、およびカーボンナノチューブの常温での光操作可能性も示した。この成果により光誘起力による制御の対象となるナノ物質の範囲が飛躍的に広がった。

【(B)製造技術: 光誘起力によるナノ粒子集合体の配列制御と光機能のデザイン】

本項目では、自己無撞着に決定された物質間光誘起力と自発的な物質間力、および熱揺らぎによるランダム力によるナノ物質集団の動的過程の数値計算手法である「光誘起力ナノダイナミクス法(LND法)」のプロトタイプの開発に成功した。また、この手法を用いて、ナノ粒子配列制御による光機能性材料の製造技術の原理構築を目指した。適用例として、局在表面プラズモンに起因する強い光応答を示し、ナノ光デバイス、バイオセンサー、医療応

図1: 金ナノ粒子の配列とプラズモニック超放射の同時制御(製造技術)



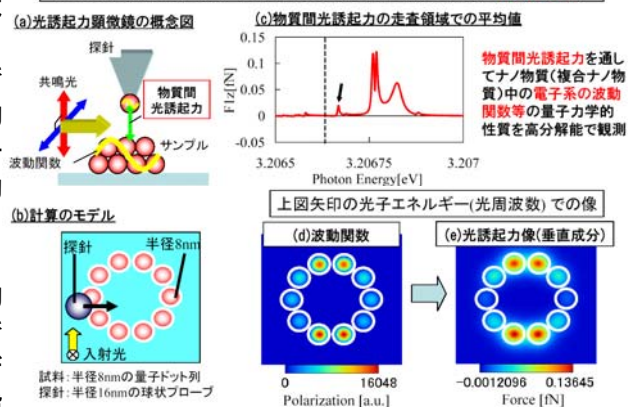
用などにおいて重要な役割を果たす金ナノ粒子を対象とした。図1はLND法を用いた複数金ナノ粒子の動的過程の数値計算結果の一例である。光強度が高い焦点付近にナノ粒子を引き寄せるトラップ力と光照射により変調された物質間力のバランスによりナノ粒子複合体が偏光方向に平行に配列する条件を示した。また、複数の金ナノ粒子中の局在表面プラズモンが協力的に振舞うことにより輻射緩和率(光散乱効率)が劇的に増強するプラズモニック超放射の制御可能性を見出した。

【(C)計測技術: 光誘起力による新奇計測技術とその揺らぎ制御の検討】

微小なサンプルと探針の間に働く力を検出して、サンプルの表面形状を観測する原子間力顕微鏡は様々な分野で活用されている。本項目では、近接するナノ物質間に生じる物質間光誘起力を計測してナノスケールのサンプル中の励起状態の波動関数を観測する「光誘起力顕微鏡」の原理開拓を行った(図2)。

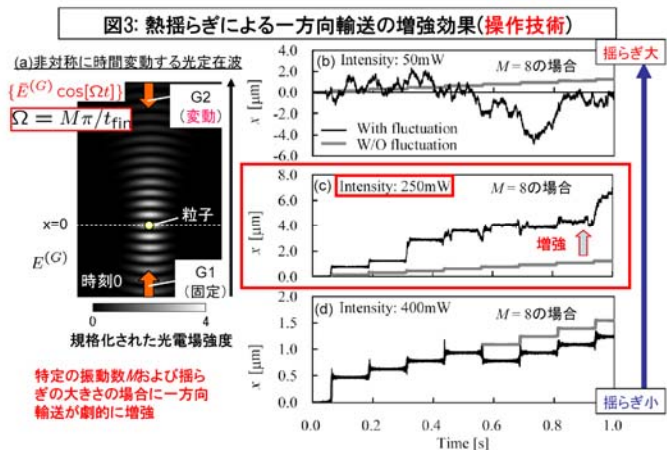
さらに、原子よりもずっと大きな物体の熱揺らぎを光誘起力で極限まで抑制する、いわゆるマクロなレーザー冷却の計測技術への応用を目指した研究にも着手した。これらの実験の解釈には主に光バネのモデルに基づく、定常状態線形解析が主流であった。本項目では、プローブを固定化するカンチレバーで微小光共振器を構成し、その内部で増強された光誘起力を駆動力として含む非線形運動方程式を実時間領域で数値的に解いた。これにより、レーザー光の条件を適切に設定すれば、周期的外力や熱揺らぎによる共振器自体の機械的振幅を劇的に減少でき、カンチレバーのパラメータによっては有効温度数十 mK まで冷却できる可能性があることも示唆した。

図2: 光誘起力を用いた力学的顕微分光の原理開拓(計測技術)



【(D)操作技術: 時空間変動をデザインされた光場と揺らぎによるナノ粒子操作の原理開拓】

ナノサイズの生体分子モーターは、空間的に非対称なポテンシャルと熱揺らぎによる確率過程を利用して効率良く物質輸送を行っているという報告がある。本項目では、光の時空間プロファイルに非対称性を付与することにより非生物のナノ物質でも同様の機構を実現できるのではと着想して理論研究を行った。図3のように対向して伝播する2本のガウスビームを干渉させ、一方の振幅は固定し(G1)他方の振幅は $\cos[\Omega t]$ に比例して変化するとした(G2)。このような場



に置かれたナノ粒子は、 $\cos[\Omega t]=0$ の時はG1による+x方向の散逸力を受け、 $\cos[\Omega t] \neq 0$ の時は定在波による周期的光トラップに捕捉される。この過程を繰り返しながら階段状の時間プロファイルに従って+x方向にナノ粒子が輸送される。特に、光強度を変化させて相対的に揺らぎの大きさを変化させると、特定の光強度で一方輸送が増強されることが明らかとなり、光による物質輸送に揺らぎの効果を有効利用できることを示した。

3. 今後の展開

まず、製造技術に関しては、「2. 研究成果」で述べた、金属ナノ粒子複合体の空間パターンと光機能の同時制御に関する研究に基づいた発展研究が考えられる。図1の成果の他、偏光方向が光軸に関して回転対称性を持つ軸対称ベクトルビームによる金ナノ粒子の配列制御の可能性や、強い非共鳴光でトラップされたナノ複合体の形態を共鳴光と熱揺らぎで動的に制御できる可能性を示唆する結果も得られ始めている。これらの成果を基に、より多彩な光源の条件を想定した研究が発展すれば、光の特性をパラメータとして多様なナノ粒子複合体を作製するための原理構築に繋がることも期待される。特に、作成されたナノ粒子複合体の光応答特性に関する研究も重要課題であり、環境との相互作用も含めた光学応答の評価に関する発展研究も望まれる。これらの研究が進めば、光エネルギーの高効率変換に関する新しい知見が得られる可能性も期待される。

次に、計測技術に関して、光誘起力を用いた揺らぎ制御に関する研究が発展すれば、本研究で基本原理を明らかとした光誘起力顕微鏡などの走査型顕微鏡や、様々な極微計測技術の精度向上などに役立つ可能性がある。重力波計測などの超微弱な信号を検出する測定において干渉計を構成する鏡の揺らぎ制御は必須の要素技術であるため、本研究で得られた原理に基づく揺らぎ制御の技術開発が進めば、基礎科学の発展においても重要な役割を果たすと期待される。

さらに、操作技術に関しては、時空間的非対称性を有する光場による、揺らぎの効果の有効利用に関する発展研究が期待できる。解明した原理を利用すれば、例えば、生体分子モーターと類似した高効率の光駆動型ナノモーターへの応用も期待できる。また、揺らぎの効果適切に利用して、高効率にナノ粒子を所望の場所へ輸送できれば、上述のボトムアップ的製造技術へのフィードバックも期待できる。

4. 自己評価

研究期間の前半はラゲルガウスビーム、平面波の重ね合わせによる光場、円偏光などの組み合わせによるデザインされた光場の下での共鳴光誘起力の素過程に着目した研究が中心であった。一連の作業により光の種々の特性(周波数、偏光、軌道角運動量、スピン)や、ナノ物質自体の幾何学的特性(サイズ、形状、キラリティー)が光誘起力にどのように反映されるかが明らかとなった。また、光誘起力の一般的表式を導出し、多粒子系での負の散逸力や超物質間光誘起力などの新現象を見出すことができ、目標を達成することができた。

また、光誘起力により物質間力を制御されたナノ物質集団の力学的運動を熱揺らぎの存在下で評価するための手法開発が提案の要であったが、上述の光誘起力の一般的表式とブラウン動力学法を組み合わせることでこの目的を達成した。この手法により、常温環境下で金属ナノ粒子の複合体の構造と光機能の同時制御が可能であることを示唆する結果を獲得し、研究開始当初より思い描いていた光による光機能性ナノ複合体のボトムアップ的製造法への道を拓くことができた。さらに、光誘起力により作製されたナノ複合体の形態が、複数の異なる特性の励起光の組み合わせと熱揺らぎを有効利用して可逆的に変化することが明らかとなり、揺らぎを利用したナノ複合体の構造転移に関する予想外の成果も得られた。

さらに、計測技術に関しては、光誘起力のマップから励起状態の空間分布を観測できる可能性を示唆しただけでなく、マクロなレーザー冷却に基づくプローブのノイズ制御に関する研究から、様々な顕微鏡の高精度測定にも応用可能な指導原理が得られた。このような、マクロなレーザー冷却によって揺らぎを制御されたプローブを用いた新たな計測技術の提案は、領域間交流により「光の創成・操作と展開」領域の重力波計測の分野の若手研究者との議論により発展した当初予期しなかった成果である。

操作技術に関しては、非平衡物理の概念に基づく予想外の成果が得られた。特に、生体分子モーターとのアナロジーから、光場の時空間変動を適切に制御することで、熱揺らぎによる一方向輸送の劇的増強が起こることが明らかとなり、非生物系のナノモーターにおける新しい知見が得られたことも強調したい。

これらの例が示すように、計画で掲げていた「光誘起力の素過程解明」および、「製造技

術」「計測技術」「操作技術」の原理構築の全ての項目において当初の目的達成を行い計画は妥当であったと考える。また、単に当初掲げていた成果を達成したのみならず、常温の非平衡な系において当初予想しなかった多くの興味深い成果を得ることができたことも強調したい。これらの成果は、光物性物理をバックグラウンドとして主に極低温での光学現象を対象として来た研究者が領域内外の化学系の研究者や異分野の研究者たちとの交流を深めたために得られたものである。得られた理論の検証に関してはこれからであるが、領域内外の実験家との共同研究や研究交流も期間内に開始できたため、期間終了後もこれらの関係を大事にして次のステップに進むための成果を積み重ねていきたい。

5. 研究総括の見解

飯田研究者は、特性をデザインされた光場により誘起される力を利用してナノ物質間相互作用と揺らぎのバランスを変化させることにより、ナノ粒子間に作用する力を制御し、ナノ複合体の集合状態を制御するための指導原理を理論的手法により開拓することを目標として研究を進めた。まず、ナノ粒子間に誘起される光誘起力の素過程の解明を行い、多粒子間相互作用に起因する負の散逸力や超物質間光誘起力などの特異な光誘起力の存在を理論的に明確にし、半導体ナノ粒子、金属ナノ粒子、有機分子などのナノ粒子の常温での光操作の可能性を指摘した。これにより光誘起力によるナノ物質の光操作の対象が飛躍的に拡大した。この成果は、光誘起力によりナノ粒子集合体の配列制御と光機能のデザインを行うより具体的な実験系の提案へと結びついた。更にナノ粒子に働く熱揺らぎによる確率過程と光場により形成した空間的に非対称なポテンシャルを利用して一方向輸送が可能であるという新しい原理を提示した。従来、極低温での光学現象を対象とした理論研究は常温における実験研究との接点は少なかったが、さきがけ研究領域内外の実験系の研究者との交流を深めることにより、敢えて常温における理論構築を行い、具体的な実験研究者との共同研究が生み出されたことは大きな成果であった。

今後、本研究で見出されたナノ物質の光場による操作の原理を更に発展させるとともに、見出された原理が実験的に検証され、新規なナノ粒子集合体の製造技術が生まれることを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. <u>Takuya Iida</u> , Yuta Aiba, and Hajime Ishihara, “Anomalous optical selection rule of an organic molecule controlled by extremely localized light field”, Applied Physics Letters; Vol. 98, 053108 (1-3) (2011). ◆ Selected by “Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology” Vol. 23, Issue 7 (2011).
2. Hiroshi Ajiki, <u>Takuya Iida</u> , Takahiro Ishikawa, Seiji Uryu, and Hajime Ishihara, “Size- and orientation-selective optical manipulation of single-walled carbon nanotubes: A theoretical study”, Physical Review B; Vol. 80, 115437(1-11) (2009). ◆ Selected by “Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology” Vol. 20, Issue 15 (2009).
3. <u>Takuya Iida</u> , Hajime Ishihara, “Theory of Light-Induced Force Microscopy to Observe Collective Excited States in Quantum-Dot-Array”, Physica Status Solidi (c); Vol. 6, No. 4, 898-901 (2009).
4. <u>Takuya Iida</u> , Takashi Yoshimizu, and Hajime Ishihara, “Theory of nano optical manipulation by designed light fields under excitonic resonance conditions”, Physica Status Solidi (c); Vol. 6, No. 1, 69-72 (2009).
5. <u>Takuya Iida</u> , Hajime Ishihara, “Theory of resonant radiation force exerted on nanostructures by optical excitation of their quantum states: From microscopic to macroscopic descriptions”, Physical Review B; Vol. 77, 245319(1-16) (2008).

- ◆ Selected for the article of “Physical Review Focus”, Vol. 21, Story 21 (June 25, 2008) “A Nanoscale Tractor Beam”.
- ◆ Selected by “Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology”, Vol. 17, Issue 26 (June 30, 2008).
- ◆ Selected by “Virtual Journal of Biological Physics Research”, Vol. 16, Issue 1 (July 1, 2008).

(2)特許出願

研究期間累積件数: 10件 (うち4件非公開)

1. 発明者: 石原一、飯田琢也、江口弘樹
発明の名称:キラル物質の異性体分離方法及びその装置
出願人: 大阪府立大学、科学技術振興機構
出願日: 2010/4/16(欧州 PCT 出願)
2. 発明者: 石原一、飯田琢也、江口弘樹
発明の名称:キラル物質の異性体分離方法及びその装置
出願人: 大阪府立大学、科学技術振興機構
出願日: 2010/4/12(中国 PCT 出願)
3. 発明者: 石原一、飯田琢也、江口弘樹
発明の名称:キラル物質の異性体分離方法及びその装置
出願人: 大阪府立大学、科学技術振興機構
出願日: 2010/2/5(日本 PCT 出願)
4. 発明者: 石原一、飯田琢也、合田健太、東海林篤
発明の名称:光伝播制御方法及び光伝播制御装置
出願人: 大阪府立大学
出願日: 2007/12/13
5. 発明者: 石原一、飯田琢也、江口弘樹
発明の名称:キラル物質の異性体分離方法及びその装置
出願人: 大阪府立大学、科学技術振興機構
出願日: 2007/12/13
6. 発明者: 東海林篤、石原一、飯田琢也
発明の名称:光の偏向方法及び装置
出願人: 情報通信研究機構、大阪府立大学
出願日: 2007/12/5

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

<学会発表>[下記その他、招待講演 7 件、国際会議 17 件、国内学会 38 件]

1. 飯田琢也、「光誘起力と揺らぎによるナノダイナミクス・光機能制御」(招待)、2011年(平成23年)春季第58回応用物理学関係連合講演会、(於: 神奈川工科大学、2011/3/24-27)
2. Takuya Iida, “Theory of Dynamical Processes of Nanostructures Created by Light and Fluctuations”<Invited>, Seminar at MaxPlanck Institute for Solid State Research,

(Stuttgart, Germany 20/August/2010)

<受賞>

1. 平成 22 年度文部科学大臣表彰若手科学者賞、(2010 年 4 月 13 日、於:京王プラザホテル新宿)、受賞研究「ナノ領域における光誘起力の理論と力学制御技術の研究」、研究者:飯田琢也、[受賞者:飯田琢也]
2. 第 3 回(2009 年)日本物理学会若手奨励賞、(2009 3 月 27 日、於:立教大学)、受賞研究「光誘起力によるナノ構造物質の力学制御の理論」、研究者:飯田琢也、[受賞者:飯田琢也]

<書籍>

1. Takuya Iida, Hajime Ishihara, “Nano-Optical Manipulation Using Resonant Radiation Force”, in Progress in Nano-Electro-Optics VI: Nano Optical Probing, Manipulation, Analysis, and Their Theoretical Bases, edited by Motoichi Ohtsu (Springer-Verlag, Berlin 2008), pp.115-168