

令和元年6月10日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13857

研究課題名(和文)真空中でのレーザー捕捉を利用したナノ粒子の組成選別

研究課題名(英文)Material analysis of nanoparticles based on their laser trapping in vacuum

研究代表者

相川 清隆(Aikawa, Kiyotaka)

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：10759450

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、真空中において光格子中に少数個のナノ粒子を捕捉し、その運動を精密に観測する実験装置を製作した。様々な材質のナノ粒子を大気圧で捕捉できることを示すと共に、従来研究で扱われてきたシリカ以外のいくつかの材質についても真空へと移行できることを見出した。また、真空中での振動周波数が材質によって異なることを示し、ナノ粒子の非破壊組成分析の原理を実証した。想定外の成果として、2個のナノ粒子が同一光格子内に捕捉されると、大気圧下であっても互いの周りを軌道運動する現象を発見し、この現象が既知の放射圧に基づく発振現象とは大きく異なる性質を持つことを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、真空中におけるナノ粒子の運動の観測を通じてその材質を非破壊に推定する、という非破壊組成分析の原理が実証できたため、環境中を漂うナノ粒子に対する新たな角度からの分析が可能となると期待される。また、2個のナノ粒子による軌道運動の周波数は粒子の質量に非常に敏感であることから、粒子に気体分子が吸着される過程についての研究を進めることで、将来的には新しいタイプの気体検出センサーとしての応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：We built an experimental apparatus that can trap a few nanoparticles in an optical lattice in vacuum and observe their motion precisely. We showed that nanoparticles made of various materials can be trapped at atmospheric pressure and those made of a few materials, apart from silica used in previous studies, can even be stably trapped in vacuum. Furthermore, we showed that the oscillation frequency in vacuum depends on materials and demonstrated the principle of the non-destructive constitution analysis of nanoparticles. As an unexpected result, we discovered that two nanoparticles in a single optical lattice continuously orbit around each other even at atmospheric pressure and found that this phenomenon has properties significantly differing from known oscillation phenomena based on the radiation pressure.

研究分野：量子光学

キーワード：ナノ粒子 オプトメカニクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、環境問題への関心の高まりと共に、環境中に様々な材質・サイズのナノ粒子が浮遊していることが問題となっている。これらのナノ粒子の存在を検知し、多数の粒子に対して、およそのサイズを測定する技術は、すでに製品として実用化された段階である。一方、漂うナノ粒子の材質を知ることは、今なお容易なことではない。

単一ナノ粒子を捕捉・観測するツールとして、1980年代から光ピンセットの技術が発達してきたが、この技術は主に生物学的な応用を視野に入れており、液中において用いられる場合がほとんどであった。近年になり、ナノ粒子を光捕捉し、これを真空中へと移行することで、周囲の環境から極めてよく隔離された系として扱う研究が急速に進展し、その重心運動を絶対零度数 mK 程度まで冷却できることが示されていた。

ナノ粒子を真空中で扱う研究では、光吸収の少ないシリカのナノ粒子を使うものがほとんどであった。また、ナノ粒子の重心運動を極限的に冷却し、その量子的振る舞いを観測することを目的とした研究が主であり、このような系を環境中の種々のナノ粒子の計測に利用しようとする研究はほとんど行われてこなかった。

2. 研究の目的

本研究では、環境中のナノ粒子の様態を探る技術の一環として、近年発達した真空中でナノ粒子を扱う技術を応用し、ナノ粒子の組成を非破壊で計測する技術を創出することを目的とする。具体的には、真空中における光捕捉されたナノ粒子の振動周波数が、材質に固有の値を示すことに着目し、捕捉したナノ粒子の組成を非破壊で分析すると共に、これらを組成毎に分級する技術も視野に入れている。全く新しい視点での研究であることから、まず非破壊で組成を知ることができるかどうか、基礎的な原理を探ることを重要な目標とした。

3. 研究の方法

本研究では、まず新しい実験装置を製作し、これを用いてナノ粒子を捕捉・観測・冷却する技術を確立した。その上で、従来研究で使われてきたシリカのみならず、様々な材質からなるナノ粒子を捕捉し、真空へと移行できるか調べた。また、捕捉した単一ナノ粒子からのフォトルミネッセンスを分光することで組成を推定できるかどうかについても調べた。各過程の詳細は次の通りである。

(1) 新たな実験装置の製作

真空槽、粒子の捕捉・観測のための光学系、観測に関わる電子回路系、および実験系制御・データ取得・データ解析のためのコンピュータからなる新たな実験装置を製作した(図1)。他グループにない特長として、直径2ミクロン程度に絞られたビームを打ち返すことで光格子を形成し、複数のナノ粒子を同時に捕捉・観測できる実験系とした。複数のナノ粒子が捕捉された様子を図2に示す。また、捕捉光として材質による光吸収が少なく、元々低ノイズの光源が市販されている1550nm付近の光を用いた実験系であることも、重要な特長である。ナノ粒子による散乱光をホモダイン検出し、レーザー光の強度ノイズを取り除くためにバランス検出を利用することで、室温付近で運動する粒子の運動を50dB程度の信号/ノイズ比で観測できる観測系を構築した。粒子の典型的な運動スペクトルを図3に示す。なお、光学系を工夫することで、粒子の3方向の運動が全て異なる周波数となるようにした。これにより、1つの光検出器で3方向の運動を別々に観測することが可能となった。

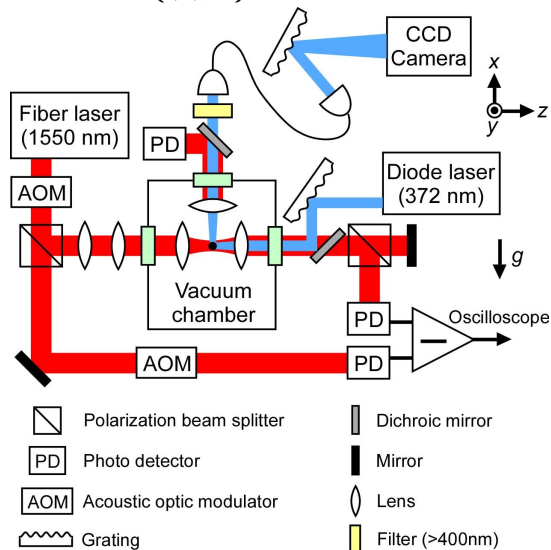


図1: 実験系の概要

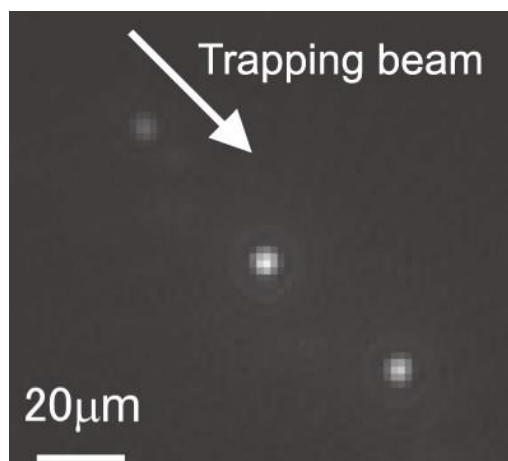


図2: 光格子中の複数のナノ粒子

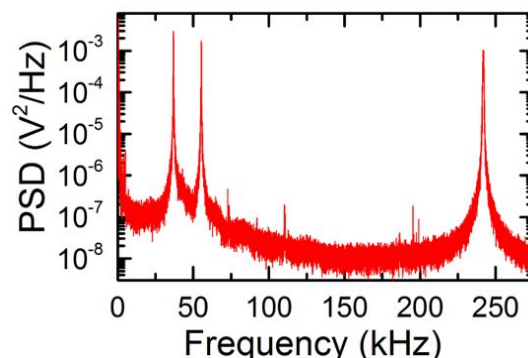


図3: ナノ粒子のパワースペクトル

各過程の詳細は次の通りである。

(2) 種々の材質からなる粒子の捕捉・真空への移行

従来の実験はシリカを対象としており、市販のシリカナノ粒子を含む溶液をネブライザによって噴霧する形で真空槽内に導入していた。一方、本研究で対象とするその他多くの材質に対しては、溶液中にナノ粒子を分散させた形で市販されているものは多くないことから、本研究では粉末状の試薬を溶液に懸濁させ、真空槽内に霧状のナノ粒子を導入する方法をとった。計 15 種類の材質からなるナノ粒子について、大気圧下で光捕捉できるかどうか、および光捕捉した状態で真空に移行できるかどうかを調べた。

また、真空へ移行できる材質のナノ粒子に対し、真空下での振動周波数を測定できるかどうか調べた。また、粒子の振動周波数が材質のバルク物性から予想される値となるかどうかについても、主にシリカと比較する形で調べた。

(4) 単一ナノ粒子への紫外光照射

バンドギャップが真空紫外域にあるシリカと異なり、多くの物質は可視～紫外域での分光、フォトルミネッセンスの観測が可能である。フォトルミネッセンスのスペクトルは材質固有であることから、粒子の振動周波数の測定とは全く異なる角度からの非破壊組成分析を可能とする。そこで、光捕捉された単一ナノ粒子からの散乱光を分光器に入射し、フォトルミネッセンスの観測を試みた。

4. 研究成果

(1) 2 粒子による軌道運動の発見

本研究を進める中で、当初想定していなかった振る舞いが観測されたことから、その詳細な観測・解析を行い、論文として発表した。その概要を以下に記す。

従来シリカのナノ粒子が使われてきたが、本研究では内部状態の観測も重要な目標であることから、内部状態の観測が可能な様々な材質のナノ粒子を捕捉・観測する実験を行った。その中で、酸化第 1 銅を初めとするいくつかの材質のナノ粒子において、大気圧で非常に大きな振幅の安定した発振現象が起きることを見出した。

通常、空気中ではナノ粒子は周囲の空気の影響でランダムなブラウン運動を行うため、大気圧下で周期的な振動が生じるということは驚きである。粒子の運動について、4 分割フォトダイオードや紫外線を用いた高分解能イメージングによる観測を行った結果、この発振は 2 個のナノ粒子が同じ光格子内にあるときに自発的に互いの周囲を巡る軌道運動を行う現象であることを突き止めた(図 4)。また、この発振現象の背景圧力による変化を調べたところ、0.6 気圧付近で最も発振周波数が高く、それより低い気圧では徐々に周波数が下がり、0.1 気圧以下ではほぼ発振が見られなくなるという振る舞いが見られた(図 5)。通常、捕捉されたナノ粒子の周囲の気体分子は粒子に激しいブラウン運動を引き起こすことを考えると、観測された背景圧力に対する依存性は非常に特異である。また、発振周波数がレーザー強度に比例する点も(図 6)、放射圧によって引き起こされる発振現象としてこれまでに知られるパラメトリック不安定性などの現象とは大きく異なる。こうした振る舞いを説明できる発振のメカニズムについてはまだ分かっておらず、今後の研究課題の一つであるといえる。この発振現象は粒子の質量に敏感であることから、たとえば粒子に吸着される気体の高感度なセンサーとしての応用が考えられる。

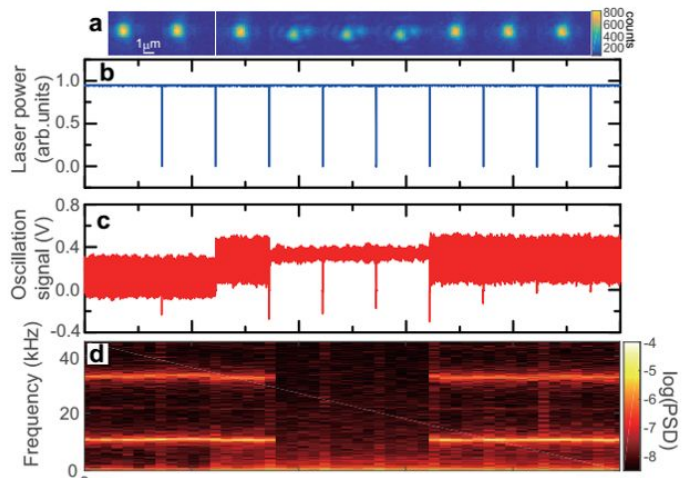


図 4 : 光格子中の 2 個のナノ粒子による発振現象

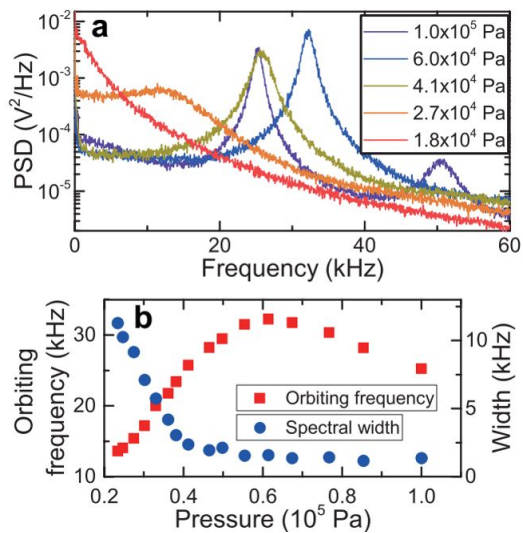


図 5 : 発振周波数の圧力依存性

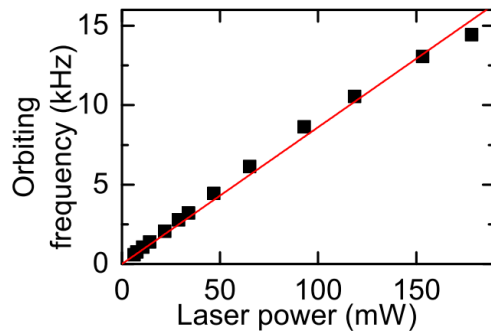


図 6 : 発振周波数のパワー依存性

(2) シリカ以外のナノ粒子の捕捉

調べた 15 種類の材質のナノ粒子のうち、10 種類の材質については、大気圧下で安定に捕捉できるものの、真空へと移行する際に消失すること、また残りの 5 種類の材質については大気圧下での捕捉後に安定に真空へ移行できることがわかった。このうち、特に低い圧力まで移行できる酸化チタンに対し、粒子の振動周波数の観点からシリカとの詳細な比較を行った。その結果、酸化チタンのバルク物性から予想される振動周波数はシリカより 20%程度大きいはずであるのに対し、観測された周波数は 6%程度大きい値であった。このことは、ナノ粒子の状態での物性がバルクの状態のものとは異なる可能性を示唆している。観測値と予想値とのずれについては今後のさらなる研究が必要であるが、非破壊組成分析の根幹をなす、振動周波数の材質による違いについては、実証できたといえる。

本研究により明らかとなったのは、真空中では捕捉レーザー光によるわずかな光吸収に伴う加熱の効果が非常に顕著で、粒子が容易に蒸発・消失してしまうことである。そのため、非破壊組成分析の技術を、捕捉したナノ粒子の分級にまで拡張するためには、より様々なナノ粒子に対して真空引きできる技術が不可欠であると言える。たとえば、ナノ粒子をイオン化してイオントラップする手法と、弱い光による捕捉を組み合わせる、といった方法により、多くの材質のナノ粒子に対して適用可能であると期待される。

(3) 酸化物ナノ粒子からの散乱光の分光

ナノ粒子からの散乱光を光ファイバーに結合させ、これを分光器で分光する光学系を新たに作製した。この実験系において、光捕捉された単一酸化チタンナノ粒子に対し、波長 372nm の紫外光を照射し、散乱光のスペクトルを得た。その結果、紫外～可視領域において、レイリー散乱された照射光のピークに対して 5 桁程度弱い光まで測定できることがわかったが、粒子からの蛍光と考えられる光を観測することはできなかった。過去のバルク試料に対する研究によれば、酸化チタンのフォトルミネッセンスは酸素欠陥の存在に依存すると考えられていることから、今回観測できなかったのは、用いたナノ粒子の材質によるものと考えられる。今後、バルクの状態でフォトルミネッセンスが観測できる材質を選ぶことで、ナノ粒子の材質に固有なスペクトルを得られると期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- [1] M. Iwasaki, T. Yotsuya, T. Naruki, Y. Matsuda, M. Yoneda, **K. Aikawa**, “Electric feedback cooling of single charged nanoparticles in an optical trap”, Phys. Rev. A **99**, 051401(R) (2019). (査読あり)
- [2] Mitsuyoshi Yoneda, Makoto Iwasaki, **Kiyotaka Aikawa**, “Spontaneous continuous orbital motion of nanoparticles levitated in air”, Phys. Rev. A **98**, 053838 (2018). (査読あり)
- [3] M. Yoneda, **K. Aikawa**, “Thermal broadening of the power spectra of laser-trapped particles in vacuum”, J. Phys. B **50**, 245501 (2017). (査読あり)

〔学会発表〕(計 8 件)

- [1] **Kiyotaka Aikawa**, Cold nanoparticles in an optical lattice: towards investigating multi-particle dynamics (招待講演), the 13th Japan-US Joint Seminar on Quantum Electronics and Laser Spectroscopy, Kanazawa, Japan, 26 September 2018
- [2] 米田光慶, **相川清隆**, レーザー捕捉された粒子におけるパワースペクトルの熱的広がり, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 千葉, 2018 年 3 月 25 日
- [3] 岩崎睦, 米田光慶, **相川清隆**, 光格子中におけるナノ粒子の重心運動の 1K 以下への冷却, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 千葉, 2018 年 3 月 25 日
- [4] 竹添慎司, 成木翼, **相川清隆**, リング型ポテンシャルへのナノ粒子の捕捉, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 千葉, 2018 年 3 月 25 日
- [5] **相川清隆**, レーザー捕捉された粒子におけるパワースペクトルの熱的広がり (招待講演), 応用物理学会・量子エレクトロニクス研究会「光操作の最前線」, 軽井沢, 2017 年 12 月 14 日
- [6] 米田光慶, **相川清隆**, 真空中のナノ粒子のフィードバック冷却, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 大阪, 2017 年 3 月 17 日
- [7] **Kiyotaka Aikawa**, Towards understanding the collisional dynamics of cold nanoparticles (招待講演), CEMS Topical Meeting on Cold Atoms, Saitama, Japan, 10 June 2016.
- [8] **Kiyotaka Aikawa**, Towards understanding the collisional dynamics of cold nanoparticles (招待講演), Coherent Control of Complex Quantum Systems, Okinawa, Japan, 20 April 2016.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計1件)

名称：微小粒子を用いる加速度計

発明者：相川清隆

権利者：東京工業大学

種類：特許

番号：特願 2017-028232

出願年：2017

国内外の別：国内

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

www.aikawa.phys.titech.ac.jp

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者なし

(2)研究協力者

研究協力者なし