

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 05 月 23 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656039

研究課題名（和文） プラズモン局在場による放射圧クーリング

研究課題名（英文） Radiation Pressure Cooling With Localized Surface Plasmon

研究代表者

笹木 敬司（SASAKI KEIJI）

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：00183822

研究成果の概要（和文）：金属ナノギャップ構造のプラズモン局在場において、熱運動するナノ粒子や分子に発生する放射圧の振る舞いを、世界に先駆けて理論的・実験的に解明した。金属ナノギャップにおける電場分布を高精度に解析する手法を開発し、これまで単一のスポットと考えられていたプラズモン局在場が、高次の多重極モードの重ね合わせとして、複雑な形状を持つことを明らかにした。また、ナノ粒子に作用する放射圧を定量的に解析する計測システムを開発し、金属ナノダイマー構造において、従来の集光ビームに比べて3桁以上強い放射圧が発生することを解明すると共に、2次元ポテンシャルを観測して、超解像トラッピングの実証に初めて成功した。

研究成果の概要（英文）：We have theoretically and experimentally investigated radiation pressure induced by localized surface plasmon (LSP) of metal nano-gap structures, and analyzed the strength and spatial distribution of the optical force exerted on nanometer-sized particles and molecules under thermal motions. We showed that the nanoscale spatial profiles of the LSP fields within the nano-gap exhibit complicated fine structures, rather than single peaks. The nanopatterns are formed by interferences of dipolar, quadrupolar, and higher-order multipolar plasmonic modes. In addition, we developed the measurement system for quantitatively analyzing the radiation pressure exerted on nanoparticles. The experimental results demonstrated that the force strength is enhanced by 3 orders of magnitude compared to that with conventional far-field trapping. We also succeeded in observation of two-dimensional trapping potentials, which is the first demonstration of super-resolution optical trapping.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|-------|-----------|---------|-----------|
| 交付決定額 | 3,100,000 | 930,000 | 4,030,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：放射圧, プラズモン局在場, クーリング, 金属ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

金属ナノ構造に光を照射するとナノ空間に局在したプラズモン場が生成し、電場が極めて増強される。この局在プラズモン場が発生する放射圧を利用して、ナノ粒子や分子をナノ空間に捕捉する研究が最近注目を集め

ている。しかしながら、これまでの研究は、ナノ構造体の集団系において、多数のナノ粒子が捕集される様子を定性的に観測した実験に留まっており、局在プラズモン場が単一の微粒子に作用する放射圧を定量的に観測し解析する研究はなかった。また、金属ナノ

構造、特にギャップ構造における電場分布について詳細に理論解析した研究はこれまでなく、局在プラズモン場とナノ粒子の力学的相互作用をナノスケールで解析した研究はなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、金属ナノギャップ構造のプラズモン局在場において、熱運動するナノ粒子や分子に発生する放射圧の振る舞いを、世界に先駆けて理論的・実験的に解明することにある。金属ナノギャップにおける電場分布を高精度に解析する手法を開発し、これまで単一のスポットと考えられていたプラズモン局在場が、高次の多重極モードの重ね合わせとして、複雑な形状を持つことを明らかにする。また、ナノ粒子に作用する放射圧を定量的に解析する計測システムを開発し、金属ナノダイマー構造において、従来の集光ビームに比べてどの程度強い放射圧が発生することかを解明すると共に、2次元ポテンシャルを観測し、超解像トラッピングを初めて実証する。

3. 研究の方法

まず、電磁場の時空間展開を高精度で数値計算する新しいシミュレーション解析手法を開発した。微粒子・分子のサイズや分極率・複素屈折率、金属ナノ構造の形状や大きさ・ギャップ距離、照射する光の波長や強度分布等をパラメータとして数理シミュレーション解析を行った。

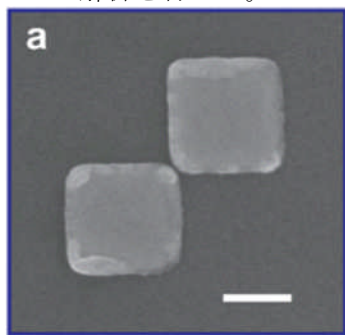


図1 金ナノギャップ構造の電子顕微鏡写真。白線は100 nmのスケール。一辺140 nm厚さ30 nmの金ナノブロック2個を10 nmのギャップで配置している。

実験としては、電子線描画装置を用いたリソグラフィ技術により、金ナノギャップ構造体を設計に基づいて作製した。電子科学研究所附属ナノテクノロジー研究センターの設備および技術職員の支援により、国内でも有数の高分解能微細加工技術の実績が既にあり、図1に示すような構造体を作製することが可能となっている。作製した金ナノギャップ構造に高分子ナノ粒子を分散した水溶

液を滴下し、光学顕微鏡下で、近赤外レーザー光を照射した。ナノ粒子には蛍光色素がドーブされており、ストロボ型励起レーザーで発光させて、CCDカメラで熱運動を観測した。ボルツマン分布に基づいて運動状態を解析することにより、ナノ粒子に作用する放射圧を2次元空間座標の関数として求めることができる。

4. 研究成果

金ナノギャップ構造で100 nmのポリスチレン微粒子をトラッピングした様子を図2に示す。ブラウン運動する微粒子の位置のヒストグラムを2次元プロットした図である。ギャップ付近でナノ粒子が捕捉されている様子が分かる。

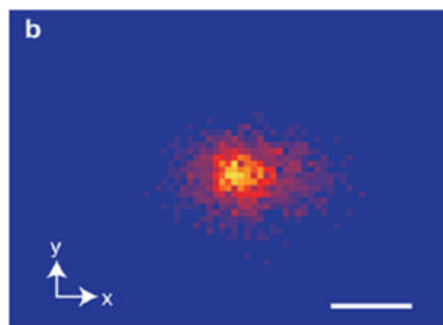


図2 金ナノギャップ構造で捕捉したナノ粒子の位置揺らぎヒストグラム。白線は100 nmのスケール。

図3は、図2のヒストグラムのx軸上の分布から熱統計解析により、ナノ粒子に働く放射圧のポテンシャルを求めた結果である。調和振動子ポテンシャルでフィッティングすると、放射圧のバネ定数は2.3 fN/nmとなり、この値は、集光レーザービームによって発生する放射圧のバネ定数 2.1×10^{-3} fN/nmと比べて3桁以上大きくなっており、局在プラズモン場の顕著な放射圧増強効果が明らかになった。

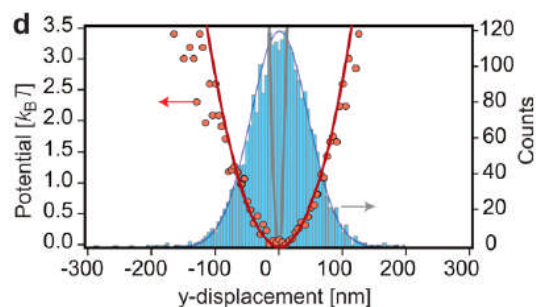


図3 ナノ粒子に作用する放射圧ポテンシャル。

金ナノギャップ構造に照射するレーザー光の偏光方向を垂直に変えると、局在プラズ

モン場が大きく変化し、トラッピングポテンシャルが顕著に変わる様子を観測した結果が図4である。金ナノブロックの4つの角で電場が増強され、4つのトラップサイトが形成されているのが分かる。トラップサイト間の距離は 230 nm であり、これは照射レーザー光の波長の半分以下となっている。すなわち、回折限界を超えた分解能での捕捉（超解像トラッピング）が実現できたことを、世界に先駆けて実証した。

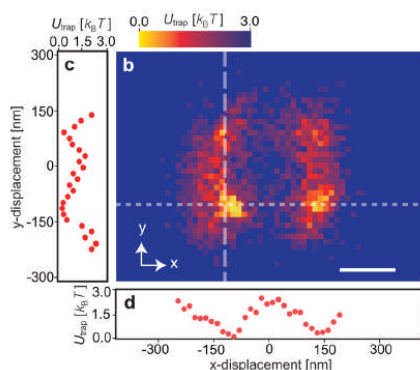


図4 偏光方向を変えたときのトラッピングポテンシャル。白線は 100 nm のスケール。

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 12 件)

(1) H. Fujiwara, R. Niyuki, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, K. Sasaki

Quasi-single-mode random lasing within a ZnO nanoparticle film Proceedings SPIE-The International Society for Optical Engineering 査読あり, 8599, 885912/1-885912/6 (2013)

(2) T. Chiba, J. Qi, H. Fujiwara and K. Sasaki

Analysis of Trap State Dynamics of Single CdSe/ZnS Quantum Dots

The Journal of Physical Chemistry C 査読あり, 117(6), 2507-2510 (2013)

(3) H. Fujiwara, R. Niyuki, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji and K. Sasaki

Low-threshold and quasi-single-mode random laser within a submicrometer-sized ZnO spherical particle film

Applied Physics Letters 査読あり, 102, 061110/1-061110/4 (2013)

(4) Y. Tanaka, S. Akio and K. Sasaki

Nanoscale interference patterns of gap-mode multipolar plasmonic fields

Scientific Reports, 査読あり, 2, 764/1-764/5 (2012)

(5) F. Ren, K. Kitajima, H. Takashima, H.

Fujiwara, K. Sasaki

Second harmonic generation from the top of an Au-coated tip via a tapered fiber coupled microsphere resonator

Proceedings SPIE-The International Society for Optical Engineering 査読あり, 8463, 846305/1-846305/5 (2012)

(6) N. Shimamoto, Y. Tanaka, H. Mitomo, R. Kawamura, K. Ijio, K. Sasaki and Y. Osada Nanopattern Fabrication of Gold on Hydrogels and Application to Tunable Photonic Crystal

Advanced Materials 査読あり, 24(38), 5243-5248 (2012)

(7) T. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi, K. Sasaki

Experimental evaluation of diffusion constant in a thin polymer film by triplet lifetime analysis of single molecules

Journal of Photochemistry & Photobiology, A: Chemistry 査読あり, 238, 24-28 (2012)

(8) Y. Tanaka and K. Sasaki

Efficient optical trapping using small arrays of plasmonic nanoblock pairs

Applied Physics Letters, 査読あり 100, 021102/1-021102/3 (2012)

(9) Y. Tanaka and K. Sasaki

Optical trapping through the localized surface plasmon resonance of engineered gold nanoblock pairs

Optics Express 査読あり, 19(18), 17462-17468 (2011)

(10) H. Fujiwara, H. Ohta, T. Chiba, K. Sasaki

Temporal response analysis of trap states of single CdSe/ZnS quantum dots on a thin metal substrate

Journal of Photochemistry & Photobiology, A: Chemistry 査読あり, 221(2-3), 160-168 (2011)

(11) Y. Miyamoto, D. Kawase, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi

Detection of superposition in orbital angular momentum of photons without excess components and its application to

verification of non-classical correlation

Journal of Optics 査読あり, 13(6), 064027/1 - 064027/6 (2011)

(12) Y. Tanaka, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y.

Yokota, K. Ueno, H. Misawa, and K. Sasaki

Direct imaging of nanogap-mode plasmon-resonant fields

Optics Express 査読あり, 19(8), 7726-7733 (2011)

〔学会発表〕（計 1 件）

(1) Keiji Sasaki

Nanoscale Interference Patterns of
Gap-Mode Multipolar Plasmonic Fields
1st Forum on Environmental Nanotechnology
2012/8/1
Harbin Institute of Technology (China)

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://optsys.es.hokudai.ac.jp/~optosys/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笹木 敬司 (SASAKI KEIJI)
北海道大学・電子科学研究所・教授
研究者番号：00183822

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

藤原 英樹 (FUJIWARA HIDEKI)
北海道大学・電子科学研究所・准教授
研究者番号：10374670

田中 嘉人 (TANAKA YOSHITO)

北海道大学・電子科学研究所・博士研究員
研究者番号：50533733