

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05603

研究課題名(和文)誘電体微粒子の単色熱放射

研究課題名(英文) Monochromatic thermal radiation from a dielectric microparticle

研究代表者

立川 真樹 (Tachikawa, Maki)

明治大学・理工学部・専任教授

研究者番号：60201612

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：我々は、光トラップで捕捉した単一の誘電体微粒子の熱放射スペクトルを計測し、ミクロンサイズの微粒子の熱放射特性を解明してきた。

本研究では、微粒子がさらにサブミクロンまで縮小したときに、熱放射が赤外域の表面フォノンポラリトンの周波数に単色化することを確認した。光トラップされた単一粒子からの赤外スペクトルを観測することはできなかったが、分散した微粒子集団からのFTIR分光から、微粒子ではバルクの熱放射が抑制される帯域で放射が起きることがわかり、表面モードの存在が支持された。一方、光トラップされたルビー微小球の可視域のスペクトルから、熱放射においてもPurcell効果が発生することが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱放射のサイズ効果は、物質と電磁場の相互作用の基礎的な現象であるとともに、微小物体の熱計測にも関連するため応用上も重要である。しかし、大きさと形を指定した微小体からの信号を感度良く検出する実験の難しさから、これまでほとんど検証されてこなかった。

我々は、光トラップを利用した独自の実験系により、ミクロンサイズの誘電体の熱放射に放射体の共振モードの影響が現れることを明らかにした。さらに今回の成果は、サブミクロン領域において、熱放射が格子振動に起因する周波数に単色化することを明らかにしており、放射体が縮小するにつれて、熱放射スペクトルに放射体の個性が現れる過程とその機構を明確にすることができた。

研究成果の概要(英文)：This research project aims to clarify the size effects of thermal radiation from a dielectric microparticle.

Mie scattering theory predicts that thermal radiation becomes monochromatic on the surface phonon-polariton resonance when the emitting body shrinks into the submicron range. We first tried to observe IR spectrum of an optically trapped single particle, but our spectrometer was not sensitive enough to detect its weak signal. Switching to FTIR spectroscopy of particle ensembles, we have confirmed that submicron particles of silica and alumina thermally emit in the frequency range where thermal radiation from bulk materials is strongly restricted. Since surface phonon polaritons generally appear in the forbidden band, these FTIR spectra support the Mie theory. We also observed the Purcell effect, an enhancement of spontaneous emission of atoms inside a cavity, in thermal radiation spectrum of an optically trapped ruby microparticle.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：熱放射 微粒子 光トラップ 共振器QED

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

1900年にPlanckが導出した熱放射則は、エネルギー量子の概念を導入することにより量子物理学への道を切り開いた。今日、一般的な熱計測法がPlanckの放射則を礎に成立しており、基礎科学から工学にわたる広範囲で応用されている。マクロな物体からの熱放射のスペクトルは、黒体もしくは灰色体のそれで近似できる。一方、ミクロの極限である原子の発光は線スペクトルである。それでは、放射体を次第に小さくした場合、熱放射はどのようなプロセスを経て、温度のみで決まる黒体放射から逸脱し、最後に物質固有のエネルギー準位を反映するようになるのだろうか？熱放射のサイズ効果は、物質と電磁場の相互作用の基本的な問題であるにもかかわらず、大きさと形を指定した微小体からの信号を感度良く検出する実験の難しさに遮られ、Planckの発見から1世紀がたつ今日まで、それを明確にした実験は皆無であった。

我々は、炭酸ガスレーザーを用いた光トラップでミクロンサイズの高温誘電体微粒子を空中に捕捉することにより、単一の微粒子からの熱放射スペクトルを観測するユニークな実験系を構築し、この問題に取り組んできた。捕捉されたアルミナや酸化チタンの微粒子は、同時に赤外レーザー光を吸収して高温になり白熱する(図1)。微粒子は高温の液滴もしくは液滴から凝結した固体となっており、球形をなしている。高温微粒子の可視スペクトルは規則的な鋭いピークをもち、これらはwhispering gallery mode (WGM)と呼ばれる球形光共振器モードに共鳴した構造であることが明らかになった。量子電磁気学によると、物質が自然放出を起こす確率は、その空間の電磁波のモード密度に比例する。観測されたピーク構造は、WGMに同調した周波数で熱放射が増強されたもので、誘電体粒子自身が光共振器として働くことにより、熱放射に放射体の形状や大きさの個性が現れることが初めて明らかになった。

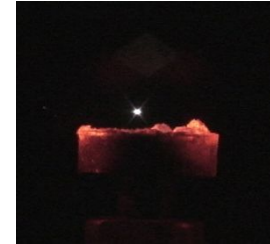


図1 捕捉されたアルミナ微粒子

さらに我々は、Mieの散乱理論に則って、実験で観測されていない赤外域の熱放射スペクトルを計算した。図2は酸化チタンを想定した計算結果(横軸フルスケール12 $\mu\text{m}$ )である。粒子の大きさより波長が長い赤外域ではWGMが消失し放射が抑制されると考えていたが、予測に反して物質に固有の鋭い共鳴が現れ、しかも粒径が1 $\mu\text{m}$ 以下のナノレベルに縮小するにつれて可視域の放射強度を大きく凌駕することが明らかになった。この赤外共鳴は、有限サイズの媒質内の電磁波と格子振動の連成振動である表面フォノンポラリトンモードに一致する。ナノレベルまで縮小した微小結晶は、表面モードで振動する巨大分子として振る舞い、熱放射が表面フォノンポラリトンの周波数に単色化することを示唆している。

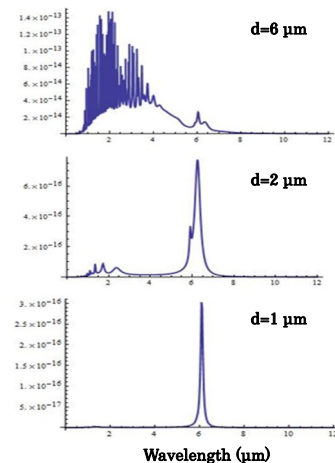


図2 赤外スペクトル(計算)

### 2. 研究の目的

本研究では、アルミナやジルコニア等のイオン結晶、およびシリカを対象として、光トラップ中の高温微粒子からの赤外域のスペクトルを観測し、粒径がミクロンレベルから縮小するにつれて、表面モードによる共鳴ピークが顕在化する過程を実験的に検証する。マクロからミクロにわたる熱放射のシナリオにおいて、物質固有のスペクトルが顕在化する最終段階を実験で検証することにより、熱放射のサイズ効果の統一的理解を達成することが目的である。

従来の光トラップによる分光計測は、単一の微粒子の特性を把握できる点で非常に優れている。半面、ミクロンサイズの微粒子からの熱放射信号は微弱であり、とくに赤外域ではスペクトル計測の感度を格段に向上する必要がある。光トラップ法に対する相補的な手段として、微粒子集団を対象とする赤外フーリエ分光法(FIR)を試みる。図2からもわかるように、粒径の縮小とともに現れる表面フォノンポラリトン共鳴の周波数は、粒径にほとんど依存しない。1ミクロン以下の複数の微粒子を分散して配置することができれば、信号強度を上げてスペクトルを観測することができるかもしれない。

一方、線スペクトルをもつ原子が誘電体微小球にドーブされた場合、原子と共振器内電磁場の相互作用によって自由空間とは異なる振舞が予測される。高いQ値をもつ微小共振器によって自然放出確率が増強される現象は、Purcell効果として知られている。熱放射におけるPurcell

効果は、共振器 QED の基礎問題として重要であるばかりでなく、ミクロな系での熱流の制御につながる可能性もあり非常に興味深い。そこで本研究では、 $\text{Cr}^{3+}$  がアルミナにドーパされたルビーの微小球を光トラップによって空中に捕捉・加熱し、WGM との整合・不整合によって  $\text{Cr}^{3+}$  の発光線の強度がどのような影響を受けるかを観測する。熱放射における Purcell 効果の存在を検証することが目的である。

### 3. 研究の方法

#### (1) 光トラップの概要

誘電体微粒子の空間捕捉に用いる光トラップ装置の概要を図3に示す。トラップ光源には波長  $10\ \mu\text{m}$  帯の炭酸ガスレーザーを使用する。対向するレーザー光を、焦点が重なるように集光して定在波を形成すると、焦点付近では電場の腹に向けて強い勾配力が働き、粒子は3次元的にトラップされる。トラップは数 kPa の希薄ガスを封入した真空槽内に設置されている。トラップの下方から試料粉末 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ) を打ち上げると、炭酸ガスレーザー光によるレーザーアブレーションによって粗い粒子が粉碎されてミクロン程度の微粒子となる。分解した微粒子のうち、粘性抵抗によって減速されレーザー光内にとどまったものが捕捉される。この光トラップ系では、炭酸ガスレーザー光の吸収によるレンズの発熱により、トラップ領域に一樣な上昇気流が発生する。気流による粘性抵抗が重力を相殺することでトラップの安定度が格段に向上することがわかっており、我々はこれを flow-assisted optical trap と呼んでいる。

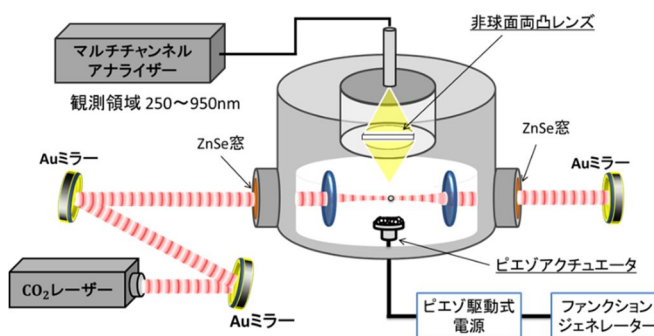


図3 光トラップ装置

捕捉された誘電体微粒子は、炭酸ガスレーザー光を吸収して高温になり発光する(図1)。微粒子は液滴、もしくは一旦液滴になってから凝固した球形粒子だが、その真球度は図4のSEM画像からわかるように非常に高い。可視域から近赤外域をカバーするマルチチャンネル分光器を用いて、単一微粒子からの熱放射スペクトルを測定する。高温微粒子が蒸発もしくは昇華によって縮小し数  $\mu\text{m}$  程度になると、スペクトルに規則的なピーク構造が伴うようになる。これらは球状微小共振器の WGM の共鳴であり、ピーク間隔から粒径を正確に知ることができる。このように、可視域スペクトルで粒径を指定したうえで赤外スペクトルを観測することによって、系統的なサイズ効果の検証が可能になる。

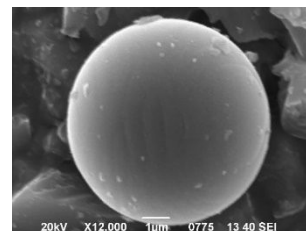


図4 捕捉粒子のSEM画像

#### (2) CVF による単一微粒子からの熱放射の赤外分光

単一微粒子からの赤外熱放射の分光観測には、連続波長可変回転フィルター (Circular Variable Filter, CVF) を用いる。CVF は、扇形の基板の上に干渉フィルターが製膜されており、フィルターの位置 (回転角度) に応じて透過波長が連続的に変化する。微粒子からの赤外放射を ZnSe レンズで集光し、像点に CVF を設置する。サーモカメラにより微粒子の実像を撮影しながら CVF を回転させることで、像点のスペクトルを測定することができる。

#### (3) 微粒子集団からの熱放射の FTIR 分光

表面フォノンポラリトンの共鳴波長は粒子の形状と誘電率に強く依存し、大きさにはほとんど依存しないことに注目し、多数の微粒子からの熱放射スペクトルを FTIR を用いて観測することにした。本実験では、放射率が小さいアルミ板上に微粒子試料 ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) を分散させ、ヒーターで 450 K まで加熱する。試料からの熱放射を凹面金ミラーによってコレレートし、FTIR 分光光度計 (日本分光, FTIR-6100) に入射しスペクトルを観測する。測定されたスペクトルは、分光計の感度特性を反映する。これを較正するために黒体塗料からのスペクトルを測定し、比をとることで放射率に換算する。



微粒子は、デンカ製の溶融シリカ（平均粒径  $0.4\ \mu\text{m}$ ，平均粒径  $4.7\ \mu\text{m}$ ）と球状アルミナ（平均粒径  $0.3\ \mu\text{m}$ ，平均粒径  $4.0\ \mu\text{m}$ ）であり、いずれも球状粒子を謳った製品である。以下、それぞれの材質について粒径の小さい方ををナノ粒子、大きい方をマイクロ粒子と呼ぶ。

#### 4. 研究成果

##### (1) 誘電体微粒子の赤外熱放射

光トラップで捕捉した  $\text{ZrO}_2$  微粒子を CVF を通して観測したサーモカメラ画像を図 5 に示す。CVF の透過帯域は  $7.7\sim 14.3\ \mu\text{m}$  であり、サーモカメラの感度帯域も  $8\sim 14\ \mu\text{m}$  である。中央の赤い輝点が微粒子の像だが、このときの CVF の角度はちょうどトラップ用の炭酸ガスレーザーの 10P(20)線の波長に対応している。CVF のそのほかの角度において微粒子の像が観測されなかったことから、図 5 の像はトラップレーザー光の Mie 散乱によるものである。熱放射スペクトルを有意な S/N で計測するにはサーモカメラを検出器として用いた分光計の感度は不十分であることが判明した。

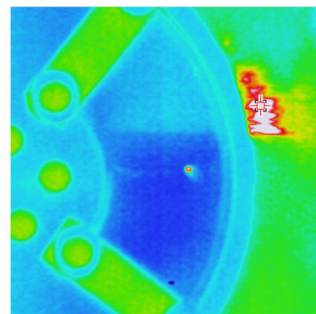


図 5  $\text{ZrO}_2$  粒子のサーモカメラ画像

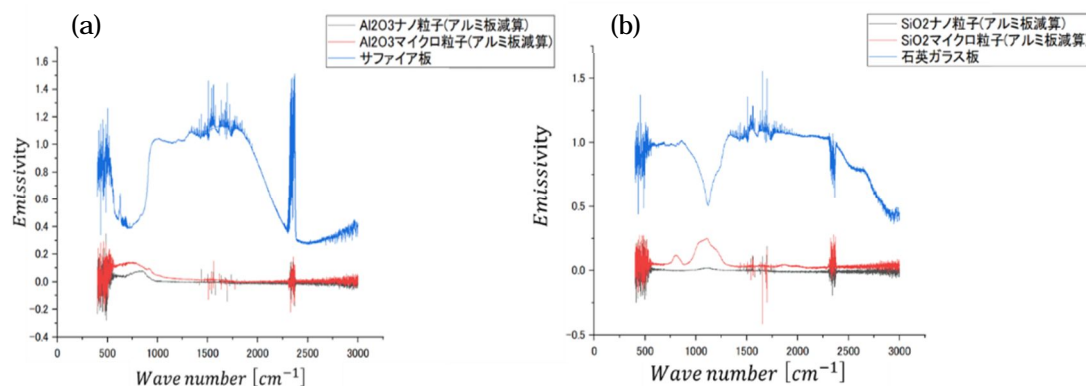


図 6 微粒子からの熱放射の FTIR スペクトル (a)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , (b)  $\text{SiO}_2$

次に、微粒子集団からの熱放射を FTIR 分光計によって測定した結果を図 6 に示す。アルミナ、シリカいずれの場合にも黒体塗料のスペクトルで除して放射率に換算してある。試料の温度は  $450\ \text{K}$  である。微粒子との比較のため、バルクのサファイア板と石英ガラス板からの熱放射スペクトルも測定した（図中青線）。本来、放射率は 1 以下になるはずだが、黒体塗料が完全な黒体ではないため各スペクトルに 1 を超える領域がある。また、ノイズ様の細かい振動は空気中の  $\text{H}_2\text{O}$  分子と  $\text{CO}_2$  分子の吸収によるものである。

サファイア板の放射率は  $550\sim 900\ \text{cm}^{-1}$  の帯域で大幅に下がっている。これはフォノンポラリトンの禁制帯である Reststrahlen バンド（R 帯）に対応している。このバンド内の電磁波は境界での反射率が高くなりバルク内に進入できない。そのため吸収率が低下する。Kirchhoff の法則により吸収率と放射率は等しいため放射率も減少する。ガラス板の放射率はサファイア板ほど広範囲で低下しないものの、 $1100\ \text{cm}^{-1}$  の周りで急峻な落ち込みを見せており、これも同様の理由による。これに対して、マイクロ粒子（図中赤線）、ナノ粒子（図中黒線）の放射率は、アルミナもシリカもバルクの放射率が抑制されている周波数域で幅広いピークを持っている。

##### (2) Mie 理論による解析

Mie 理論では、球状物体に入射する平面波に対する吸収率が、媒質の光学定数と粒径をパラメータとして計算される。Kirchhoff の法則に従いこれをプランクの式の放射率に置き換えることにより、微小球体からの熱放射スペクトルを計算することができる。媒質の光学定数は、常温における文献値を再現するように複数の横光学モードの影響を考慮して決定する。

図 7 は球状アルミナ粒子からの熱放射スペクトルの計算結果である。半径  $20\ \mu\text{m}$  の粒子はバルク結晶に近い振舞をすると考えられる。R 帯に対応する  $11\sim 18\ \mu\text{m}$  の波長帯で放射強度が著しく下がっており、サファイア板からの熱放射スペクトルと類似の傾向を示している。これに対して半径  $0.25\ \mu\text{m}$  の粒子からの熱放射スペクトルには、バルクでは禁制帯となる R 帯内の波長  $12.8\ \mu\text{m}$  に幅の狭いピークが存在している。これは前述のように、表面フォノンポラリトンのス

ペクトルである。実験で観測されたナノ粒子のスペクトルは、対応する  $800 \text{ cm}^{-1}$  付近でピークを持つものの、スペクトルはかなり広がっており、ピーク位置も明確ではない。表面モードの周波数は粒子の形に強く依存する。今回用いた微粒子の試料は真球度があまり高くないこと、特にナノ粒子の場合には凝集して不定形になっているものもあることから、観測されたスペクトルには不均一な幅が生じたと考えられる。

### (3) 熱放射における Purcell 効果

本研究課題は、波長よりはるかに小さい微粒子からの単色熱放射を検証することを当初の目的としていたが、研究の過程でそもそも線スペクトルをもつ原子が誘電体球中に閉じ込められたとき、微小共振器の影響で原子の熱放射過程に共振器 QED 効果が現れるのではないかとという着想に至った。そこで、アルミナの母体結晶中に  $\text{Cr}^{3+}$  イオンがドープされたルビーの結晶を用いて光トラップ実験を行い、クロムイオンの波長  $694 \text{ nm}$  付近の発光線（R 線）が WGM との整合、不整合でどのように変化するかを観測した。

図 8 は、観測された可視域の熱放射スペクトル（黒線）と Mie 理論による理論曲線（赤線）である。R 線の位置を青矢印で示した。スペクトル全体に重畳するピークは、WGM の共鳴である。WGM の 1 つと整合した R 線の発光強度は不整合時に比べて約 2 倍に増強されており、自然放出確率の増強因子である Purcell 因子は 3 程度と見積もられる。高い Q 値を持つ WGM の閉じ込め効果によって、熱放射に Purcell 効果が現れた可能性がある。現在、より分解能の高い分光器でデータの再現性を確認しているところである。

### (4) 総括と課題

本研究では、誘電体微粒子からの熱放射のサイズ効果の最終段階として、微粒子がサブミクロンまで縮小したときに赤外域の表面フォノンポラリトン共鳴が支配的になることを実験的に検証してきた。我々が独自で開発した光トラップ法は、単一微粒子の熱放射スペクトルを観測するのに適しているが、いまのところ赤外域の観測は不調に終わっている。微粒子からの微弱な信号に対して背景ノイズとなる、炭酸ガスレーザーの散乱光や真空チェンバー壁からの熱放射を極力抑える対策が必要である。これまでは、光路調整が容易なサーモカメラを検出器に用いていたが、より高感度な MCT 半導体検出器への換装も検討中である。

光トラップ法の相補的な手段として、微粒子集団を基板上に分散させた試料からの熱放射を FTIR 分光計で計測した。バルクの熱放射が抑制される Reststrahlen バンドにおいて微粒子の熱放射が強くなる傾向をとらえることができた。これは、我々が Mie 理論で予測したように、ナノ粒子において表面フォノンポラリトンによる放射が支配的になっていることの傍証と考えられる。しかしながら現時点では、観測されたスペクトルはブロードで、マイクロ粒子とナノ粒子の差異もはっきりしない。また、一部に同定できないピークもあり理論との整合も完全ではない。やはり、集団を対象とした場合、個々の微粒子の形状の不均一性が問題となる。現在、均一なシリカ球が凝集した宝石であるオパールを対象とした実験を計画している。

一方、単一ルビー微粒子の熱放射の観測から、熱放射において Purcell 効果が起きていることが示唆された。今回報告したデータは preliminary なものであるが、より分解能の高い分光器で原子の共鳴線付近を詳細に分析し、理論モデルとの比較を通して Purcell 効果の確証をつかみたい。将来的には、微小な物体からの熱の出入りを共振器のチューニングによって制御することができるかもしれない。

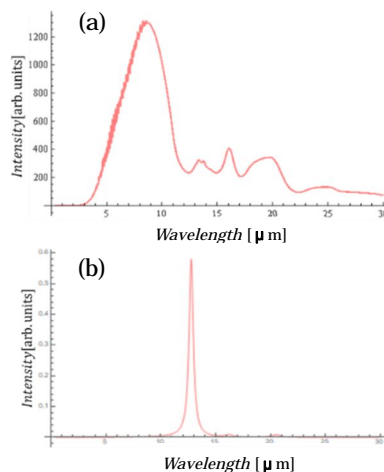


図 7 アルミナ粒子の熱放射スペクトル（計算）

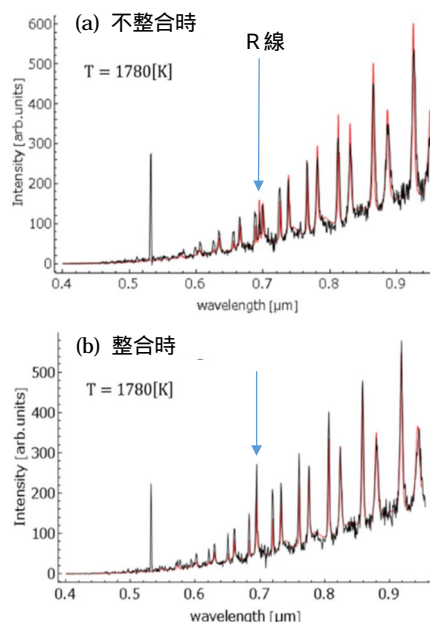


図 8 ルビー微粒子の熱放射スペクトル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 R. Morino, H. Tajima, H. Sonoda, H. Kobayashi, R. Kanamoto, H. Odashima, M. Tachikawa	4. 巻 95
2. 論文標題 Mode-selective thermal radiation from a microsphere as a probe of optical properties of high-temperature materials	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 063814-1, 7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.95.063814	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 立川真樹, 小田島仁司
2. 発表標題 光トラップが解き明かす微小な物体からの熱放射
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Tachikawa, H. Odashima, R. Kanamoto, H. Tajima, and R. Morino
2. 発表標題 Morphology-dependent thermal radiation from micron- and submicron-sized dielectric particles
3. 学会等名 The 26th International Conference on Atomic Physics（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Yamaguchi, R. Kanamoto, and D. Akamatsu
2. 発表標題 Quantum reflection of ultracold atoms by a spherical surface
3. 学会等名 The 26th International Conference on Atomic Physics（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Tachikawa and K. Nakao
2. 発表標題 Optical trapping of ice crystals and its application in cloud physics
3. 学会等名 The 45th Annual European Meeting on Atmospheric Studies by Optical Methods (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋和裕, 竹井敦史, 井上和宏, 竹澤隼, 小田島仁司, 立川真樹
2. 発表標題 ルビー微粒子からの熱放射におけるPurcell効果
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石橋健太, 金本理奈
2. 発表標題 低励起領域に於ける自律振動子集団の振幅ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中尾晃太郎, 原尾俊行, 立川真樹
2. 発表標題 雷雲の発生機構解明のための氷晶の光トラッピング
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	金本 理奈  (Kanamoto Rina)  (00382028)	明治大学・理工学部・専任准教授   (32682)	
研究 分担者	小田島 仁司  (Odashima Hitoshi)  (50233557)	明治大学・理工学部・専任教授   (32682)	