

令和 5 年 5 月 21 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02533

研究課題名(和文) 表面分子吸着に応じてパッシブ制御可能なプラズモニックナノモーターの創出

研究課題名(英文) Autonomous plasmonic nanomotors responding to surface molecular adsorption

研究代表者

田中 嘉人 (Tanaka, Yoshito)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：50533733

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：金属表面への分子吸着に伴う局在プラズモン共鳴の高感度な応答に着目し、自律型ナノモーターの駆動力となるプラズモン誘起光圧を研究した。周辺屈折率に応じて高感度に光圧の大きさを変化させるだけでなく、力の符号(方向)も変化させることが可能なプラズモニックナノ構造を見出した。また、今回のように異方性が高く複雑なナノ構造に働く光圧を定量的に測定する新奇方法を提案・開発し、世界最高精度で光圧及び光トルクを計測できることを実証した。さらに、光圧応答の高感度化に向けた非線形光散乱の放射制御に取り組み、高い指向性の第二高調波(SHG)を生み出すナノ構造や、ラジアル偏光のSHGを生み出せるナノ構造を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

局在プラズモン共鳴の優れた局所センサー機能によってパッシブ制御可能な光圧駆動ナノモーターは、ナノマシンの研究に新しい道を拓くものであり、Lab on a chipや化学ナノイメージング、ライフサイエンスなどへの応用だけでなく、ナノ医療、高機能光反応・光触媒、高効率光エネルギー変換等にむけてブレークスルーとなりうる新しい展開が期待できる。また本研究は、局在プラズモンと分子の相互作用を光運動量変化という新しい視点から研究するものであり、光運動量変化を決めている局在プラズモンの位相空間分布に顕れる新奇相互作用や新しい物理の発見につながると期待される。

研究成果の概要(英文)：Based on the highly sensitive response of localized plasmon resonance associated with molecular adsorption on metal surfaces, we have studied the plasmon-induced optical force as the driving force of autonomous nanomotors. We found plasmonic nanostructures that can not only change the magnitude of the optical force with high sensitivity according to the environmental refractive index, but also change the sign (direction) of the force. In addition, we proposed and developed a novel method to quantitatively measure optical force on highly anisotropic and complex nanostructures, and demonstrated that optical force and torque can be measured with the highest accuracy in the world. Furthermore, we worked on radiation control of nonlinear light scattering to improve the sensitivity of the optical force response, and found nanostructures that produce unidirectional second harmonic waves (SHG) or radially polarized SHG.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：プラズモニックセンサー 光圧 プラズモニックナノ構造 金ナノ構造 ナノ光圧計測

### 1. 研究開始当初の背景

光の運動量変化に基づく放射圧(光圧)を利用した光ピンセットは、微小マシンの駆動方法として応用範囲を拡大してきた。音響光学素子や空間光位相変調器などを用いてレーザー光の時空間パターンを変調することで微小マシンがアクティブ制御されてきたが、応用範囲を拡大させるには、外部環境の変化に応じたパッシブ制御が期待される。私はこれまで、金属ナノ構造体の局在プラズモン共鳴より光運動量を制御し、その反跳としてナノ構造体に働く光圧より微小マシンを駆動する、プラズモニックナノモーターを創出してきた。また、局在プラズモン共鳴は金属ナノ構造表面近傍の誘電率(屈折率)変化に敏感に応答することから、局所センサーとして数多く研究開発されてきた。そこで本研究では、「光圧駆動マシンを外部環境の変化に応じてパッシブ制御できるか」という「問い」を設定し、局在プラズモンと分子の相互作用を光運動量変化の観点から研究し、プラズモニックナノモーターに対して、この問題に取り組む。

### 2. 研究の目的

表面近傍の分子の状態や化学反応等に応じてパッシブ制御可能な光駆動ナノモーター(図1)の創出を目指し、分子との相互作用に伴う局在プラズモン共鳴変化により面内光圧が高感度に応答する金属ナノ構造体を研究する。具体的には、次の各項目研究を行う。

- (1) 表面誘電率変化により光圧が鋭敏に応答するナノ構造の設計
- (2) ナノ構造に働く光圧応答の定量計測法の開発
- (3) 光圧応答の高感度化に向けた非線形光散乱の放射制御

### 3. 研究の方法

- (1) 表面誘電率変化により光圧が鋭敏に応答するナノ構造の設計

SiO<sub>2</sub>基盤上に長さの異なる2つの金ナノロッドを配置し、片方のロッドをSiO<sub>2</sub>( $n_{SiO_2} = 1.45$ )で囲んだ構造を設計した。これにより、周辺屈折率変化に対して、長い方のナノロッドのプラズモン共鳴のみが応答する。ロッドの長軸方向に偏光した平面波を+z方向から一様照射し(5 mW/μm<sup>2</sup>)、ナノ構造を囲む球面上のポインテ

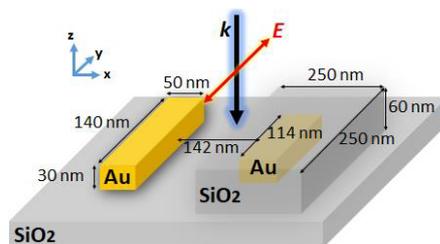


Fig. 2 The designed nanostructure

ィングベクトルの法線成分から、散乱光パターンの周辺屈折率  $n$  依存性を調べた。また、Maxwell 応力テンソルに基づく計算よりナノ構造体に働く面内光圧を求め、パッシブ制御ナノモーターに向けた最適設計を行った。

- (2) ナノ構造に働く光圧応答の定量計測法の開発

図3(a)で示すように、光ピンセットで捕捉する4か所に円柱形の金ナノ粒子、中心部に10個の金ナノロッドペアを埋め込んだSiO<sub>2</sub>のMPFを作製した。SiO<sub>2</sub>と屈折率が近いDMSO液中に分散させ、集光レーザービームを4個の金ナノ粒子に照射してMPFを捕捉した(図3(b))。また同時に、白色LEDをMPF全体に照明し、捕捉部の4つの金ナノ粒子からの散乱光をCMOSカメラで測定・解析することで、MPFの中心位置情報を取得し(図4)、捕捉ポテンシャルを得た。光圧作用レーザーを金ナノロッドペアのあるMPFの中心部に照射し、捕捉ポテンシャルの変化を解析することで、ナノロッドペアに働く面内光圧を解析した。

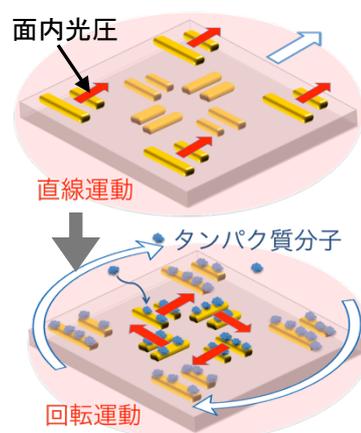


Fig. 1 Autonomous plasmonic nanomotor

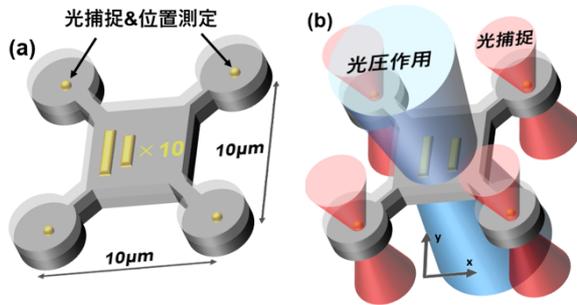


Fig. 3 Schematic of (a) fabricated MPF (a) and (b) experiment.

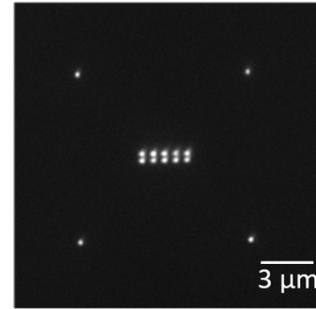


Fig. 4 Trapped MPF with index-matching

### (3) 光圧応答の高感度化に向けた非線形光散乱の放射制御

有限要素法を用いて金属ナノ構造からの第二高調波の放射パターンを計算するプログラムを構築した。1) 金属ナノ構造に周波数  $\omega$  の光を入

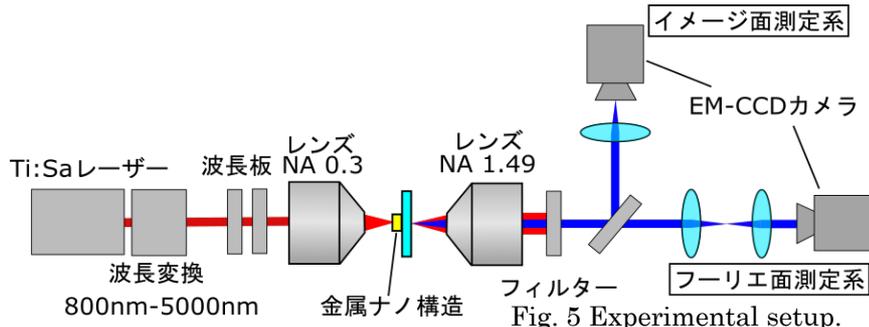


Fig. 5 Experimental setup.

射すると、ナノ構造表面にプラズモン増強局在場が生じる。2) 増強電場の大きさの二乗に比例して、金属の表面のみに周波数  $2\omega$  の分極（2次の非線形分極）が立つ。3) 金属表面に存在する薄い分極シートから周波数  $2\omega$  の光の放射が生じる。この放射はマクスウェル方程式を用いて計算することが可能である。金属ナノ構造は、電子線ビームリソグラフィ/リフトオフ法を用いて、シングルナノメートルの加工分解能で作製した。光学顕微鏡のフーリエ面を測定可能なシステムを開発し、ナノ構造からの第二高調波の放射パターンを評価した（図5）。

## 4. 研究成果

### (1) 表面誘電率変化により光圧が鋭敏に応答するナノ構造の設計

ナノロッドペア周辺の屈折率  $n$  の変化に対して、プラズモン共鳴特性が図6で示すように変化した。この際、波長 865 nm (図6の緑線) の光照射に対して、xy 面内の散乱パターンは図7で示す通り、急峻に変化した。 $n = 1.00$  では+x 方向に強く散乱されていたが、 $n = 1.09$  では+x と-x 方向への散乱がほぼ同程度であった。さらに  $n = 1.17$  では、 $n = 1.00$  とは逆向きである-x 方向に強い散乱が見られた。これは  $\text{SiO}_2$  で囲まれたロッドのプラズモン共鳴ピークは固定されているのに対して、長い方のロッドの共鳴ピークがレッドシフトを起こし、二つの共鳴ピーク的位置関係が変化したことによる結果であると考えられる。また、この結果は、光の運動量変化の反跳としてロッドペアに働く面内光圧が  $n = 1.00$  では-x 方向、 $n = 1.17$  では+x 方向に 0.4 pN の大きさで働き、 $n = 1.09$  ではほぼ

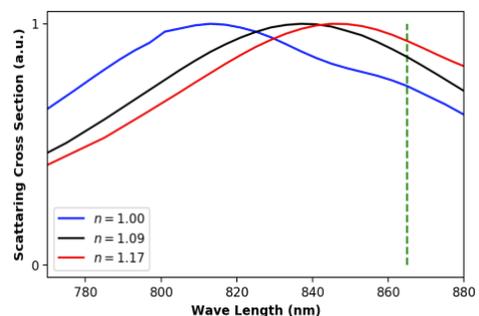


Fig. 6 Plasmon resonance spectra.

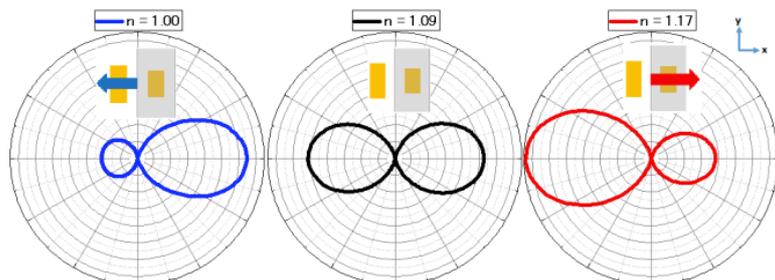


Fig. 7 Scattering patterns at different refractive indices.

働かないことを意味する。従って、今回設計したナノ構造を用いると、周辺環境に応じて運動方向を変化させるプラズモニックナノモーターが期待できる。

### (2) ナノ構造に働く光圧応答の定量計測法の開発

図 8 は、MPF の位置揺らぎヒストグラムから求めた捕捉ポテンシャルである。光圧作用レーザーを照射した場合(赤)のポテンシャルが照射していない場合(青)に比べてx方向にシフトしていることが分かる。MPF 中心位置測定誤差が最小になる時間(20s程度)内で測定を20回繰り返した結果、x方向のシフト量  $81(\pm 5)\text{nm}$ 、y方向のシフト量  $3(\pm 4)\text{nm}$ 、シフト前のx方向ポテンシャルのバネ定数  $1.59(\pm 0.04)\text{fN/nm}$  が得られた。従って、ナノロッドペアに働く面内光圧はx方向のみに  $130(\pm 3)\text{fN}$ 程度であると見積もることができる。この結果より、数百  $\text{fN}@10\text{mW}/\mu\text{m}^2$  という計算結果を示す単一ナノロッドに働く面内光圧の測定も可能であると期待される。

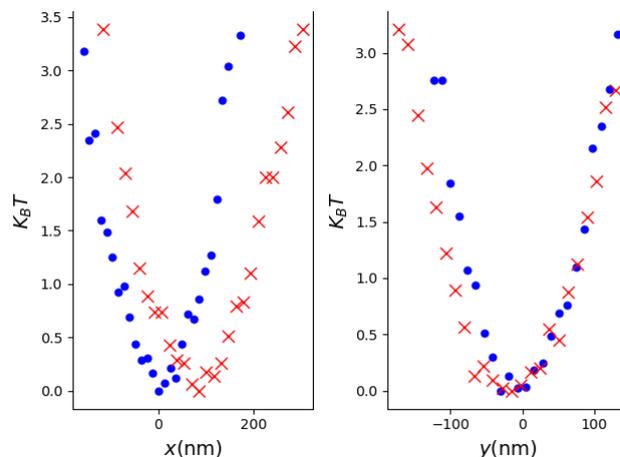


Fig. 8 Trapping potentials of MPF.

この結果より、数百  $\text{fN}@10\text{mW}/\mu\text{m}^2$  という計算結果を示す単一ナノロッドに働く面内光圧の測定も可能であると期待される。

### (3) 光圧応答の高感度化に向けた非線形光散乱の放射制御

金属は中心対称性があるために2次の非線形分極は生じないが、金属表面では中心対称性の破れからこの制限が回避され第二高調波が発生する。しかし、表面で生じる2次の非線形分極分布は複雑なため、その放射パターンやモードの制御は難しいとされてきた。そこで私は、ナノ構造体の形状を工夫して、2次の非線形分極を局在プラズモン固有モードに結合させるという独自のアイデアによって、第二高調波(SHG)の放射モード制御を研究した。1次の分極と2次の分極が結合する2つのプラズモンモードを同時に制御することで、レイリー散乱を対称な双極子放射、SHGの放射方向を側方一方向に制限するVYナノ構造(図9)を実験・シミュレーションで見出した。これにより、線形な光圧から分離して、SHGの反跳による非線形な面内放射圧が有効に働くので、非線形リニアナノモーターへの展開が期待できる。また、ナノ構造から生じるSHGの放射パターン、位相、偏光を測定・解析することで、線形プロセスでは禁制な局在プラズモンモードの遷移が非線形プロセスによって許容になるということを見出した。この特性を活かしてナノ構造をデザインすることで、直線偏光した光照射によって十字ナノ構造体(図10)がラジアル偏光のSHGを生み出すことを実験・シミュレーションにより明らかにした。つまり、波長と偏光を同時に変換するナノサイズ光学素子が可能になるので、例えば、直線偏光の光照射により円偏光のSHGが生み出せれば、光の角運動量保存則から非線形トルクモーターの創出も期待される。

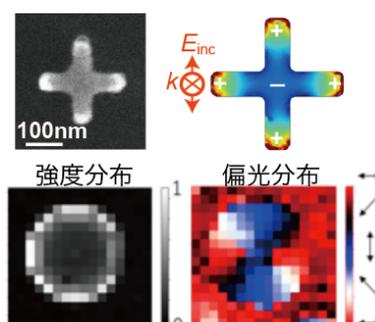
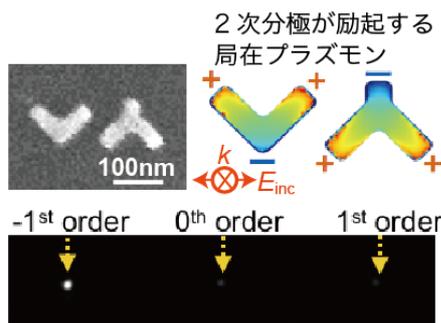


Fig. 9 Unidirectional SHG radiation. Fig. 10 Radially polarized SHG radiation.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Wu An'an, Tanaka Yoshito Y., Shimura Tsutomu   | 4. 巻<br>28                |
| 2. 論文標題<br>Plasmon-hybridization-induced optical torque between twisted metal nanorods   | 5. 発行年<br>2020年           |
| 3. 雑誌名<br>Optics Express   | 6. 最初と最後の頁<br>2398 ~ 2398 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1364/oe.382671  | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)   | 国際共著<br>-                 |
| 1. 著者名<br>Liu Jinpeng, Zhang Le, Wu Anan, Tanaka Yoshito, Shigaki Masanobu, Shimura Tsutomu, Lin Xiao, Tan Xiaodi  | 4. 巻<br>28                |
| 2. 論文標題<br>High noise margin decoding of holographic data page based on compressed sensing   | 5. 発行年<br>2020年           |
| 3. 雑誌名<br>Optics Express   | 6. 最初と最後の頁<br>7139 ~ 7139 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1364/oe.386953  | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)   | 国際共著<br>-                 |
| 1. 著者名<br>Uemura Shohei, Vantasin Sanpon, Kitahama Yasutaka, Tanaka Yoshito Yannick, Suzuki Toshiaki, Doujima Daichi, Kaneko Tadaaki, Ozaki Yukihiro         | 4. 巻<br>74                |
| 2. 論文標題<br>Interactions Between Epitaxial Graphene Grown on the Si- and C-Faces of 4H-SiC Investigated Using Raman Imaging and Tip-Enhanced Raman Scattering | 5. 発行年<br>2020年           |
| 3. 雑誌名<br>Applied Spectroscopy   | 6. 最初と最後の頁<br>1384 ~ 1390 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1177/0003702820944247   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>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<br>-                 |
| 1. 著者名<br>Tanabe Ichiro, Tanaka Yoshito Y., Watari Koji, Inami Wataru, Kawata Yoshimasa, Ozaki Yukihiro  | 4. 巻<br>10                |
| 2. 論文標題<br>Enhanced Surface Plasmon Resonance Wavelength Shifts by Molecular Electronic Absorption in Far- and Deep-Ultraviolet Regions                      | 5. 発行年<br>2020年           |
| 3. 雑誌名<br>Scientific Reports   | 6. 最初と最後の頁<br>9938        |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1038/s41598-020-66949-z   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)   | 国際共著<br>-                 |

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>Fukuhara Ryoma, Tanaka Yoshito Y., Shimura Tsutomu               | 4. 巻<br>100         |
| 2. 論文標題<br>Transverse optical torque induced by localized surface plasmons | 5. 発行年<br>2019年     |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A  | 6. 最初と最後の頁<br>23827 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/physreva.100.023827                    | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>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<br>-           |

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 2件)

|                                     |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>田中嘉人                     |
| 2. 発表標題<br>プラズモニック光波制御デバイスとナノモーター応用 |
| 3. 学会等名<br>レーザー学会第40回年次大会 (招待講演)    |
| 4. 発表年<br>2019年                     |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yoshito Y. Tanaka   |
| 2. 発表標題<br>Plasmonic linear nanomotor by directional control of scattered light                                  |
| 3. 学会等名<br>8th International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology (PHOTOPTICS2020) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|                                      |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>田中嘉人                      |
| 2. 発表標題<br>局在プラズモン制御による超解像光マニピュレーション |
| 3. 学会等名<br>第153回微小光学研究会 (招待講演)       |
| 4. 発表年<br>2019年                      |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yoshito Y. Tanaka   |
| 2. 発表標題<br>Plasmonic linear nanomotor with directional control of scattered light                |
| 3. 学会等名<br>The International Symposium on Plasmonics and Nano-photonics (iSPN2019) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>木村友哉、田中 嘉人、志村 努              |
| 2. 発表標題<br>単一プラズモニクナノ構造体によるベクトルビームSHG発生 |
| 3. 学会等名<br>第80回応用物理学会秋季学術講演会            |
| 4. 発表年<br>2019年                         |

|                                    |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>坂間 俊亮、田中 嘉人、杉浦 忠男、志村 努  |
| 2. 発表標題<br>単一ナノ粒子に働く捕捉ポテンシャル制御法の開発 |
| 3. 学会等名<br>第80回応用物理学会秋季学術講演会       |
| 4. 発表年<br>2019年                    |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>福原 竜馬、田中 嘉人、Sanpon Vantasin、志村 努 |
| 2. 発表標題<br>マイクロマシンを用いた金ナノロッドに働く光トルクの計測      |
| 3. 学会等名<br>第80回応用物理学会秋季学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2019年                             |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>元 志喜、田中 嘉人、塚田 智樹、志村 努           |
| 2. 発表標題<br>局所環境変化に応じて光圧特性が変化するプラズモニクナノ構造設計 |
| 3. 学会等名<br>第80回応用物理学会秋季学術講演会               |
| 4. 発表年<br>2019年                            |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|