

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400420

研究課題名(和文) 微小な物体の熱放射に現れるサイズ効果

研究課題名(英文) Size effects in thermal radiation from a 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) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、光トラップを用いて高温微粒子を空中に静止させ、その熱放射スペクトルを観測することにより、熱放射のサイズ効果を明らかにした。

ミクロンサイズの誘電体球の場合、微粒子自体が光共振器として作用し、共振器QED効果により特定の whispering gallery modeの周波数で熱放射の増強が起こる。熱放射スペクトルは、放射体の形・大きさ・光学定数に敏感に依存することが実験・理論両面から明らかになり、スペクトル形状から高温媒質の光学定数を測定できることが示された。さらに粒子がサブミクロンまで縮小すると、表面フォノンポラリトン共鳴が支配的になり、熱放射が単色化することが予想された。

研究成果の概要(英文)： Our original method of laser trapping has enabled emission spectroscopy of a high-temperature microparticle to clarify the size effects of thermal radiation.

The thermal emission spectrum of a micron-sized particle critically depends on the size and shape of the emitter via the cavity QED effect. In the case of a sphere, spontaneous emission is enhanced at frequencies resonant with specific whispering gallery modes of the spherical resonator. The observed spectral profiles are reproduced by calculations based on the Mie scattering theory and a semi-classical rate-equation model, which leads to a precise determination of optical constants of extremely hot materials. The Mie theory predicts that thermal radiation becomes monochromatic at the surface phonon-polariton resonance as the emitting body shrinks to submicron regime. Search for the mid-infrared spectrum is in progress.

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

1. 研究開始当初の背景

マクロな物体からの熱放射のスペクトルは、Planck の放射則でよく記述できる。このとき電磁波は、連続的に分布した自由空間モードに分配され、スペクトルは広帯域なものになる。特に黒体放射のスペクトルは温度のみで決まり、その他の放射体の個性を一切反映しない。一方、ミクロの極限である原子の発光スペクトル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、黒体放射から逸脱し、最後に原子のエネルギー準位を反映するようになるのであろうか？

意外なことに、Planck の放射則の導出から 100 年を経た現在に至るまで、熱放射のサイズ効果に関する研究はそう多くない。物体が分子レベルまで微細化し、物質固有のスペクトルが現れるまでは、特異な現象は観測されないという先入観があったのかもしれない。実際、数十 nm のカーボンや鉄微粒子からの熱放射は黒体放射で近似できることを示す一連の実験が行われており、ナノレベルに至っても Planck の放射法則は有効であるかに見える。しかし近年、粒子自体が光共振器として作用する誘電体の場合には、サブミクロンからミクロン領域でこそ、電磁場のモードに影響されて原子の自然放出が変化する共振器 QED 効果によってサイズ・形状に依存した熱放射スペクトルが現れることを予見した理論解析が発表され、一躍注目を集めた。

このようなサイズ効果を実験で検証するためには、高温の微粒子を熱的に孤立した状態で空間に保持しなければならない。何らかの支持を用いなければ熱的接触が不可避で、支持体自身からの熱放射が微粒子の微弱な信号を覆い隠してしまう。こうした状況が微粒子の熱スペクトル計測を難しくしており、本研究計画が発足する当初、我々の予備報告 (Phys. Rev. A **80**, 041806(R) (2009)) を除けば、熱放射のサイズ効果を明確に示した検証実験は皆無であった。

2. 研究の目的

本研究では、光の力学効果により微粒子を空間捕捉するレーザートラップ技術を用いて高温発光体を空中に静止させ、その熱放射スペクトルを観測する。放射体のサイズ・形状や物性が電磁波の放射過程にどのように関わってくるのか、これまで未踏であったミクロンおよびサブミクロン領域での熱放射のシナリオを解明することが、本研究の目的である。主として誘電体微粒子のサイズ効果を精査するとともに、対象を金属微粒子にも拡張し、微小物体の熱放射の統一的理解を目指す。

電磁波の侵入を許す誘電体の場合、粒子自身が光共振器として機能するため、原子はもっぱら固有モードの電磁波と相互作用する

ことになり、共振器 QED 効果を通じてモード構造を反映したスペクトルが現れると予測される。誘電体球の固有モードは詳細に解析されており、境界面で全反射しながら円周に沿って周回する whispering gallery mode (WGM) が支配的になることがわかっている。そこで、光トラップに捕捉されたアルミナやシリカなどの球状液滴のスペクトルを観測し、粒径の減少とともに WGM が顕在化する過程、さらに粒径の変化とともに、特定の WGM が選択的に放射する過程を追跡する。また、粒径がサブミクロンまで縮小したときに、赤外域の WGM の遮断波長より長波長側の放射が抑制されるか否かを理論・実験両面から検証する。

一方、金属ナノ粒子が分散したステンドグラスをサンプルとすることにより、同じ光トラップ装置を用いて、金属ナノ粒子からの熱放射スペクトルを観測できると期待される。金属ナノ粒子の吸収スペクトルには、表面プラズモン共鳴によって緩やかなサイズ効果と形状依存性が現れる。金属ナノ粒子の固有スペクトルを通して熱放射にサイズ効果が現れることを確認する。

3. 研究の方法

実験装置の概要を図 1 に示す。誘電体微粒子の空間捕捉には炭酸ガスレーザーによる光トラップを利用する。対向する 10 μm の赤外レーザー光を、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

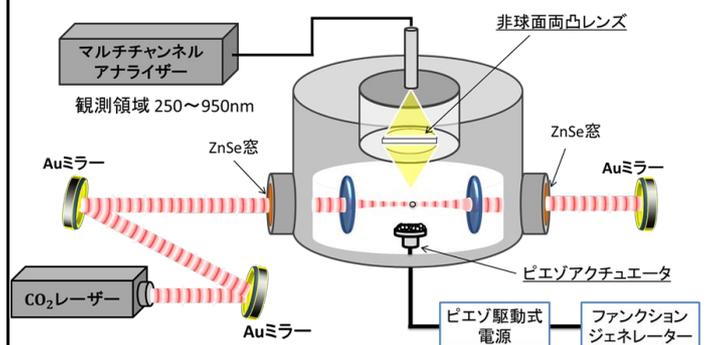


図 1 実験装置の概要

っており、我々はこれを flow-assisted optical trap と呼んでいる。

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2）。紫外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。粒径が $10\ \mu\text{m}$ 程度と比較的大きいとき、微粒子からの熱放射スペクトルは、黒体様のブロードなものになる。ピーク波長から微粒子の温度は融点をはるかに超えた高温であることがわかる。すなわち誘電体粉末は融解して液滴になっており、表面張力で球形をなしている。時間の経過につれて、高温液滴は発光しながら蒸発によって次第に縮小していく。その途中で凝固する場合もあるが、球形は保っており、微小球から発せられる熱放射スペクトルのサイズ依存性を系統的に観測することができる。



図2 捕捉されたアルミナ微粒子

4. 研究成果

(1) WGM に共鳴した選択的熱放射

図3に酸化チタン(TiO_2)微粒子からの可視から近赤外域の熱放射スペクトルを示す(黒線)。微粒子の粒径 d は $2.05\ \mu\text{m}$ 、温度 T は $1860\ \text{K}$ と見積もられる。粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下になると、熱放射スペクトルには規則的なピークが観測される。これらのピークは、whispering gallery mode (WGM) と呼ばれる、球形共振器のモードの固有周波数に一致している。WGMは、境界で全反射を繰り返しながら球の内側を周回する電磁波によるモードで、非常に高いQ値を持つことで知られている。物質が自然放出を起こす確率は、そ

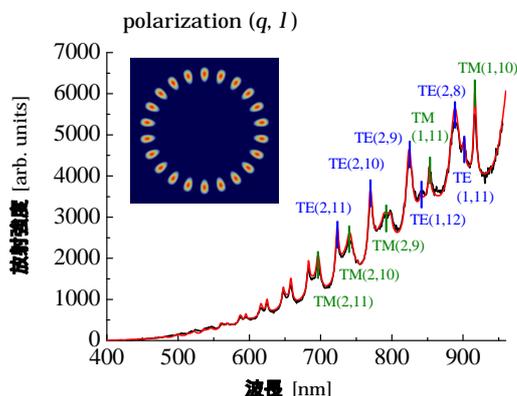


図3 熱放射スペクトル (TiO_2)

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、共振器QED効果を通して微粒子の熱放射スペクトルに、放射体の形や大きさの個性が現れることを示している。

尚、ガラス基板を用いた Fabry-Perot 共振器からの熱放射を観測する予備実験からも、共振器効果が熱放射スペクトルに現れる傍証を得た。

誘電体球の固有モードは3つの指数 (q, l, m) によって指定される。 q は動径方向の電場の極大の数、 l は1周に入る波長の数を示しており、真球の場合には固有周波数は m について縮退している。WGMは、このうち大きな l と小さな q のモードである。例として、 $(q, l) = (1, 11)$ の WGM の電場強度分布を図3にのせておく。さらに、同じ指数のモードには、磁場が動径成分を持たない TM 波と電場が動径成分を持たない TE 波がある。一連の解析によって同定されたスペクトルピークのモード指数を図中に示した。

熱放射スペクトルは、特定の WGM で選択的に増強されており、粒径が縮小するにつれて、選ばれる WGM も移り変わっていくことが明らかになった。粒径が比較的大きいときには高次 ($q=3$) のモードが支配的なものに対し、粒径が小さくなるにつれて、より低次の $q=2$ や $q=1$ のモードが支配的になる。図3のスペクトルでは、全域に $q=2$ のモードが現れているが、近赤外領域に非常に鋭い $q=1$ モードが顕在化しつつある。こうしたモードの変遷は、サイズパラメーター $x = \pi d / \lambda$ で整理される。すなわち、 x が小さくなるにつれて、支配的な WGM は高次のモードから、 $q=1$ の基本モードへ移り変わっていく。同じ粒径でも、長波長側にはより低次のモードが現れる。この傾向は、 Al_2O_3 、 TiO_2 、 ZrO_2 のいずれの誘電体微粒子でも観測される一般的な現象である。

(2) Mie 散乱理論とレート方程式による解析

物体からの熱放射スペクトルは、黒体放射スペクトルと分光放射率の積として表現される。Kirchhoff の法則によると、熱平衡状態における分光放射率はその波長の電磁波の吸収率に等しい。したがって、放射体の吸収率を求めることにより、熱放射スペクトルを計算することができる。波長程度の球体の吸収率は、Mie の散乱理論で詳細に検討されており、Mie 散乱係数を用いて解析的に求められている。この式を用いて導出したのが、図3の赤線のスペクトルである。観測された WGM の共鳴構造の細部に至るまで忠実に再

現されており、Mie 理論が有効であることがわかる。

Mie 理論に基づく計算は、サイズパラメータに依存した WGM の選択性も再現するが、各モードの放射強度が陽に表現されていないため、モード選択の定性的な機構を理解するには適しない。そこで、半古典論に基づくレート方程式によって微小共振器の各モードの発光パワーを直接導出し、それらの重ね合わせによって直接熱放射スペクトルを表現した。

$$p(\nu) = \sum_i \frac{c' \alpha(\nu_{ci}) \gamma_i}{c' \alpha(\nu_{ci}) + \gamma_i} \frac{h \nu_{ci}}{\exp(h \nu_{ci} / k_B T) - 1} m_i(\nu)$$

ここで、 ν_{ci} は i 番目のモードの中心周波数、 γ_i は共振器の減衰レート、 $c' \alpha(\nu_{ci})$ は媒質の吸収レート、 $m_i(\nu)$ はモード密度を表す。各モードのピークパワーは

$$P_{\max,i} = \frac{4c' \alpha(\nu_{ci}) \gamma_i}{(c' \alpha(\nu_{ci}) + \gamma_i)^2} \frac{h \nu_{ci}}{\exp(h \nu_{ci} / k_B T) - 1}$$

となる。この式からわかるように、最もピークパワーが高くなるモードは、 $c' \alpha(\nu_{ci}) = \gamma_i$ を満足するモードである。すなわち、電磁波が共振器外に漏えいすることによる減衰レートと内部吸収による減衰レートが整合したモードが、もっとも効率よく自然放射することになる。これは、電気回路におけるインピーダンス整合とのアナロジーで捉えることもできる。

以上の解析で得られた理論式を観測されたスペクトルにフィットすることにより、誘電体の光学定数を求めることができる。通常、2000 K もの高温媒質の光学定数を測定することは非常に難しい。本研究では、微粒子の熱放射を利用した新しい方法を提案したい。

図 4 は TiO_2 微粒子の熱放射スペクトルから得られた屈折率の波長依存性を示している。屈折率は、同じ指数の TE と TM モードの相対的な周波数から、他のパラメータの影響をほとんど受けることなくユニークに決まる。スペクトルの各ピーク位置から求めた屈折率は、波長に対して正常分散を示している。常温の TiO_2 結晶の屈折率は 2.7~2.5 で、今回求めた値は、これより系統的に小さくなっている。1800 K もの高温では、結晶性や組成そのものが常温とは異なり、屈折率の違いを生じている可能性がある。

一方、消衰係数は主として WGM の共鳴ピークの幅に影響する。屈折率と同様にしてスペクトルの fitting から得られた TiO_2 の消衰係数の温度依存性を図 5 に示す。消衰係数は

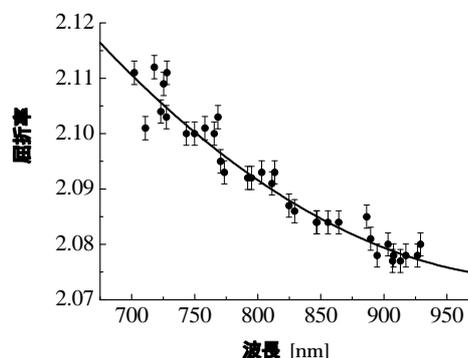


図 4 屈折率の波長依存性

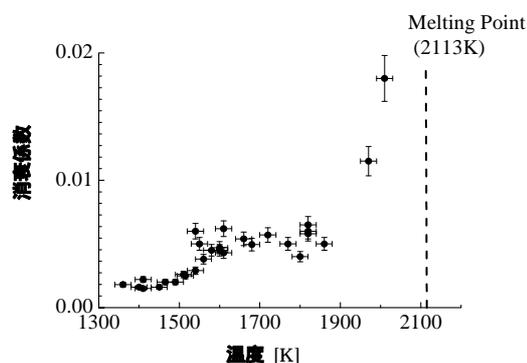


図 5 消衰係数の温度依存性

融点が近づくにつれて、急激に増加する。アルミナでも同様の現象が観測されており、イオン結晶の相転移付近の特徴的な傾向かもしれない。

このように、光学定数は誘電体の結晶性を反映する物性定数であり、微粒子の熱放射スペクトルは、高温における相転移や結晶構造間の転移をプローブする有力な手段となることが示された。

(3) 表面フォノンポラリトンによる熱放射

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。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。図 6 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。粒径の縮小とともに波長 $6 \mu\text{m}$ 付近に共鳴ピークが現れ、これまで観測していた WGM が重畳した可視域から近赤外域のスペクトル強度を相対的に大きく凌駕していく。粒径がサブミクロンになるとほぼ完全に狭線幅の単色スペクトルとなる。この赤外共鳴は、有限サイズのイオン結晶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共鳴の周波数に単色化することを示唆している。

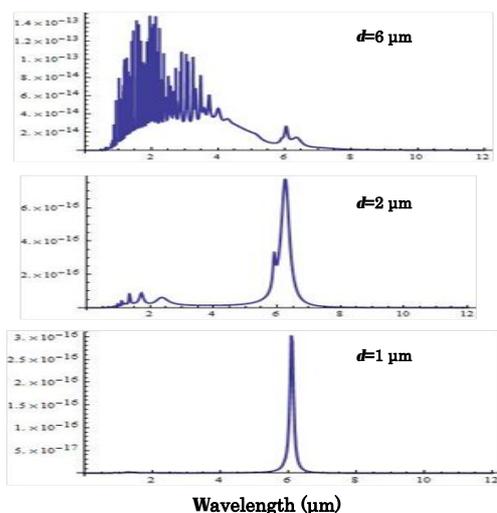


図6 赤外域の熱放射スペクトル（計算）

我々は、4~8 μm を帯域に持つ波長可変フィルターとMCT半導体検出器による独自の分光計を製作し、赤外域の熱放射スペクトルの測定を試みたが、感度が不十分で現在までに成功していない。一方で、赤外線サーモカメラによって、初めて単一微粒子からの中赤外熱放射画像を記録することができた（図7）。

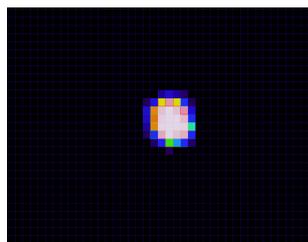


図7 サーモカメラによる ZrO_2 微粒子の画像

(4) 金属ナノ粒子の熱放射スペクトル

誘電体微粒子の熱放射が、粒子自体が光共振器となることによる共振器 QED 効果を通して、放射体の形や大きさに依存するのに対し、電磁波の侵入を許さない金属微粒子の熱放射スペクトルはどのような特徴を持つのだろうか。我々は当初、イオントラップによる金属微粒子の空中捕捉を計画していたが、金属ナノ粒子が分散したステンドグラスを試料とすることにより、誘電体微粒子と同様の光トラップ装置が利用できることに思い至った。

ステンドグラスに使われる金赤ガラスは、ガラス内に金ナノ粒子を分散させることによって着色している。金ナノ粒子は表面プラズモン共鳴により 400 nm から 600 nm 付近の光を吸収し、赤く呈色する。この吸収帯によ

って熱放射スペクトルにも特徴的な構造が現れると期待される。今回、金赤ガラスの単一微粒子をトラップすることはできなかったが、レーザーアブレーションの過程で、微粒子集団からの熱放射スペクトルを測定することができた。金ナノ粒子を含まないソーダ石灰ガラスの粉末と、金赤ガラスの粉末を炭酸ガスレーザーによるアブレーションで 2000 K 程度に加熱して、熱放射スペクトルを比較した。ソーダ石灰ガラスからの熱放射は Planck の放射式によくフィットするため、両者の比をとると金赤ガラスの放射率スペクトルが求められる。図8は観測された金赤ガラスの放射率スペクトルである。580 nm 付近にピークが存在しており、これは金赤ガラスの吸収スペクトルに類似している。媒質内に金属ナノ粒子が存在することによって、Kirchhoff の法則に従い表面プラズモン共鳴が熱放射に現れた可能性があるが、高温のガラス媒質中で金ナノ粒子がどのような形態をとっているかがわからないため、さらなる検証が必要である。

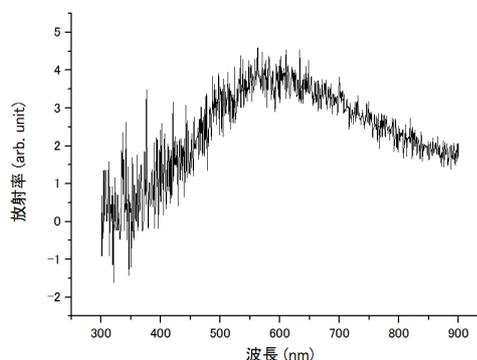


図8 金赤ガラスの分光放射率

(5) 総括と今後の展望

本研究では、誘電体微粒子を中心に熱放射のサイズ効果を探ってきた。ミクロンサイズの誘電体球は、可視光に対して光共振器として作用する。自然放出確率は球内の電磁場のモード密度に比例した変調を受け、共振モードの周波数で熱放射の増強が起こる。この段階で、熱放射スペクトルには、放射体の形・大きさ・光学定数の個性が現れる。さらにサブミクロンになると、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が予想された。これは、熱放射が放射体の内部自由度に固有の共鳴線に単色化していく最終段階と捉えることができる。

単色化した熱放射を実験で検証することが次の課題である。サブミクロンの微結晶は、表面モードで振動する巨大分子であり、共鳴的な熱交換や熱放射圧による力学作用など、興味深い現象が観測されると期待される。

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(査読あり)](計2件)

(1) 立川真樹, 小田島仁司: 「微粒子の熱放射における共振器量子電磁気学的効果」, 日本物理学会誌 70 巻 pp. 269-274 (2015).

(2) R. Morino, H. Tajima, H. Sonoda, H. Kobayashi, R. Kanamoto, H. Odashima, and M. Tachikawa, Phys. Rev. A **95**, 063814 (2017).

[学会発表](計7件)

(3) M. Tachikawa, H. Odashima, K. Nagase, T. Ehara, and H. Sonoda, Size-dependence of radiation power thermally emitted from a microparticle, The 24th International Conference on Atomic Physics, August 3-8, 2014, Washington, D. C..

(4) M. Tachikawa, Optical levitation of a single microparticle for its emission spectroscopy, OMC 2015, Optics and Photonics International Congress 2015, April 24, 2015, Pacifico Yokohama (invited).

(5) H. Odashima and M. Tachikawa, Cavity-QED effect in thermal radiation from a microparticle, The 6th International Workshop on Electrostatic Storage Devices 2015, June 10, 2015, RIKEN, Saitama (invited).

(6) R. Kanamoto, Nonlinear optomechanics in the quantum regime, Physical Sciences Symposia 2015 (Quantum Science Symposium), September 21, 2015, Boston (invited).

(7) M. Tachikawa and H. Odashima, Size-effect of thermal radiation from a dielectric microparticle, The 8th International Workshop on Fundamental Physics Using Atoms, December 1, 2015, RIKEN, Saitama (invited).

(8) 森野遼, 小林遥, 園田宙志, 井上和宏, 鶴丸俊郎, 立川真樹, 小田島仁司, 「誘電体微粒子の熱放射におけるモード選択性」, 日本物理学会第71回年次大会 2016年3月21日, 東北学院大学.

(9) 田島英樹, 森野遼, 井上和宏, 金本理奈, 小田島仁司, 立川真樹, 「Mie理論を用いた微粒子の熱放射スペクトルの解析」, 日本物理学会第72回年次大会 2017年3月17日, 大阪大学.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

立川真樹 (TACHIKAWA, Maki)

明治大学・理工学部・教授

研究者番号: 60201612

(2) 研究分担者

小田島仁司 (ODASHIMA, Hitoshi)

明治大学・理工学部・教授

研究者番号: 50233557

金本理奈 (KANAMOTO, Rina)

明治大学・理工学部・准教授

研究者番号: 00382028