

第15回 徳島大学研究者との集い
2012/11/26 @大阪大学中之島センター

単一ナノ粒子検出に向けた 非接触捕捉・検出法の開発



大学院ソシオテクノサイエンス研究部
(工学部 機械工学科 知能機械学講座)

水谷 康弘

APPLIED OPTICS LAB.



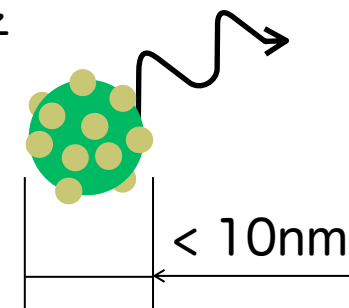
目次

- はじめに
- マクロな(集団的)視点でのナノ粒子観察システム
 - ・ ナノ粒子捕捉および検出方法
 - ・ サブ波長周期構造素子の設計
 - ・ ナノ粒子トラップシステム
 - ・ ナノ粒子捕捉結果
- ミクロな(粒子的)視点でのナノ粒子観察システム
 - ・ 光熱変換効果
 - ・ 共通光路型干渉計
 - ・ 粒子像拡大結果 (ただし, ナノ粒子ではありません)
- まとめ

ナノ粒子の特徴

- ・ 回折限界以下の大きさ
- ・ ブラウン運動(液中)

ナノ粒子



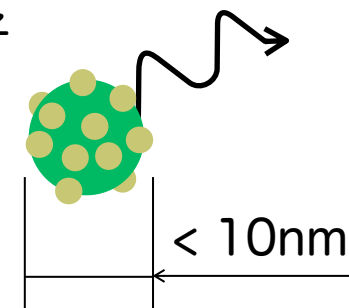
観察する視点

- ・ 集団としての観察 (マクロな観察)
マस्पロダクション的な視点から
- ・ 粒子としての観察 (ミクロな観察)
反応や挙動の解析

ナノ粒子の特徴

- ・ 回折限界以下の大きさ
- ・ ブラウン運動(液中)

ナノ粒子



観察する視点

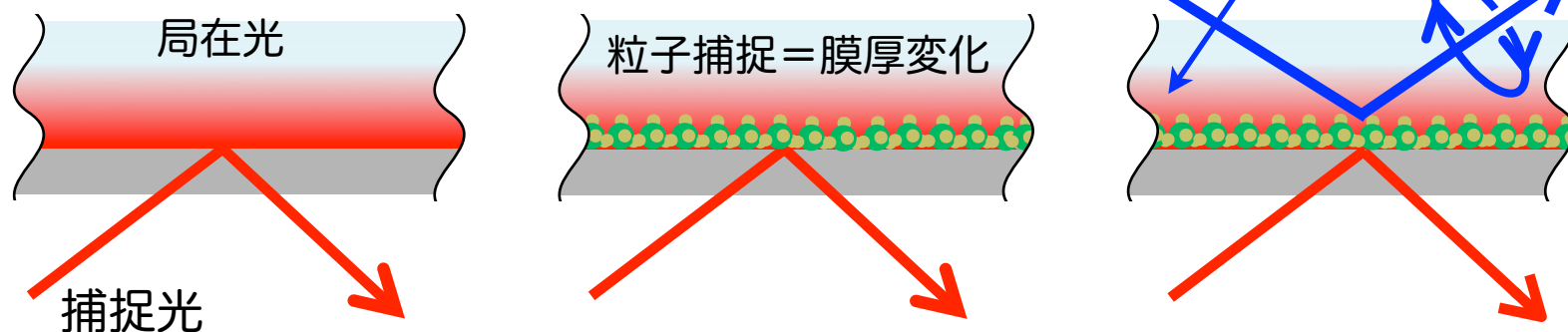
- ・ 集団としての観察 (マクロな観察)
マस्पロダクション的な視点から
- ・ 粒子としての観察 (ミクロな観察)
反応や挙動の解析

局在光によるナノ粒子の集団的捕捉

- 光ピンセットの集光スポットより広範囲に発生
- ナノ粒子を多量に捕捉

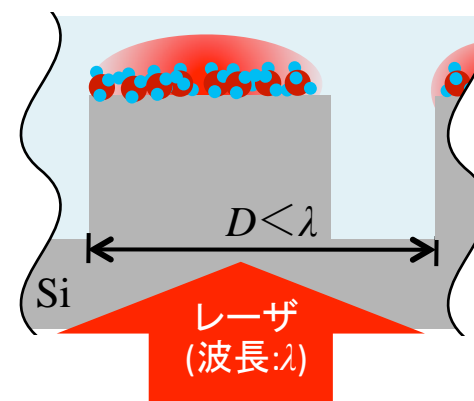
捕捉後のナノ粒子

- 薄膜の膜厚変化
- 偏光特性変化



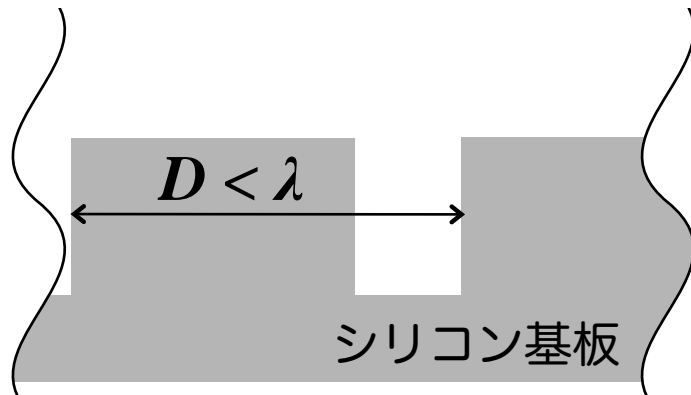
サブ波長周期構造の導入による不均一性の解消と高感度化

- 回折による周期局在光発生
- 多量のナノ粒子を周期的に捕捉
- 偏光特性の変化量の向上

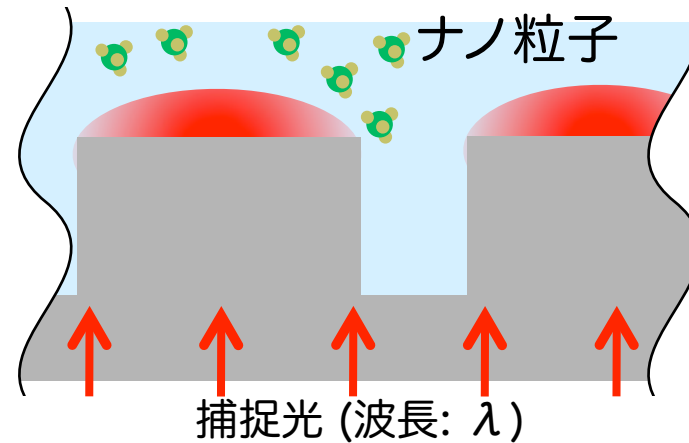


周期局在光を用いたナノ粒子補足システムの作製

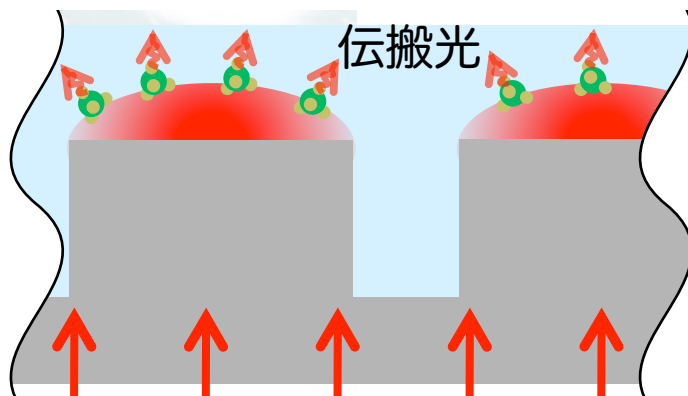
周期局在光を用いたナノ粒子の集団捕捉法



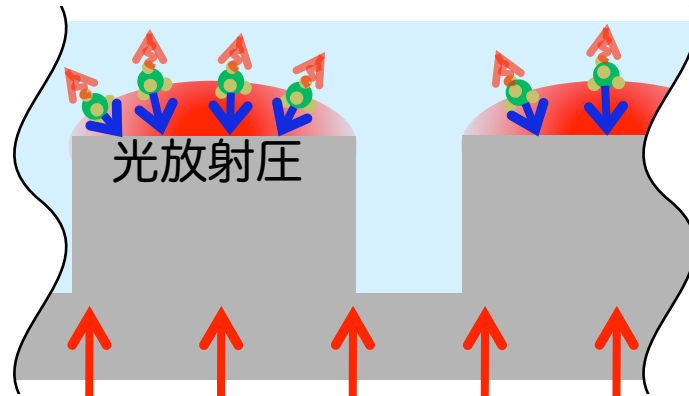
(1)サブ波長構造



(2)周期局在光発生



(3)周期局在光散乱

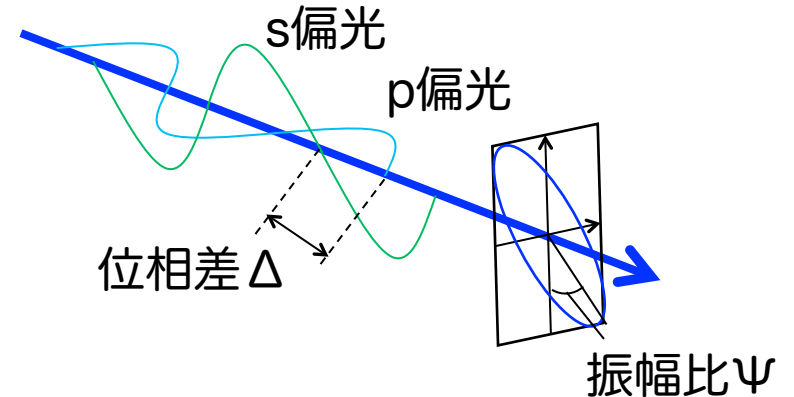


(4)光放射圧発生

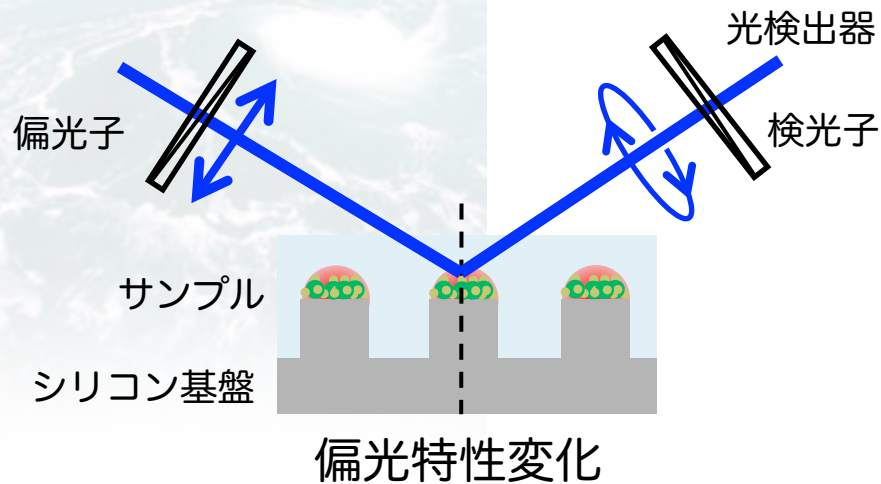
偏光解析法を用いたナノ粒子集団の検出

エリプソメトリ
反射光の偏光状態の解析
膜厚を計測

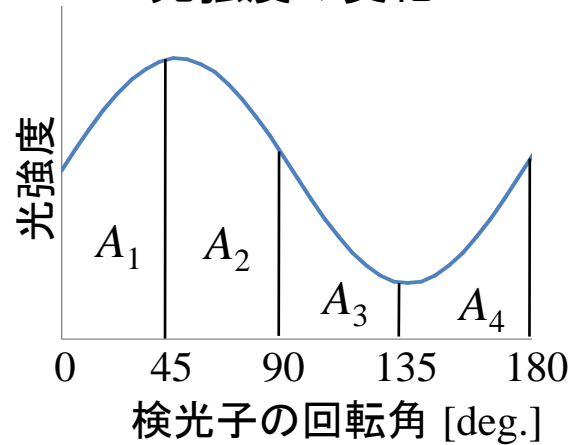
サンプルからの反射光



回転検光子法



光強度の変化



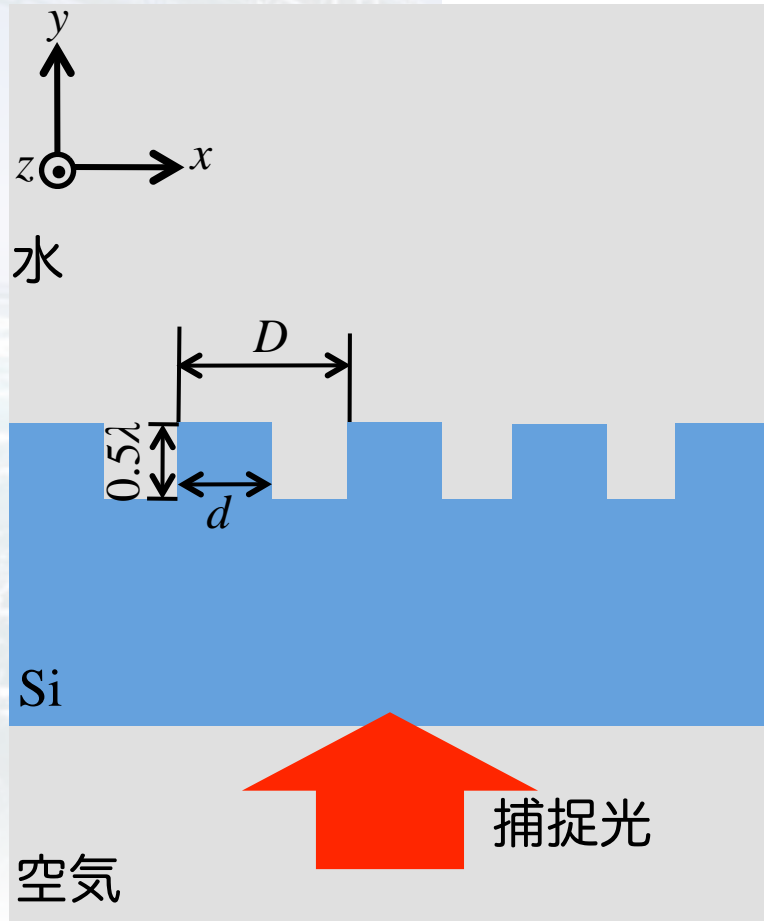
$$\Delta = \tan^{-1} \sqrt{\frac{1+\alpha}{1-\alpha}} |\tan P|$$

$$\psi = \cos^{-1} \frac{\beta}{\sqrt{1-\alpha^2}}$$

$$\alpha = \left(\frac{\pi}{2} \right) \frac{A_1 - A_2 - A_3 + A_4}{A_1 + A_2 + A_3 + A_4}$$

$$\beta = \left(\frac{\pi}{2} \right) \frac{A_1 + A_2 - A_3 - A_4}{A_1 + A_2 + A_3 + A_4}$$

時間領域差分法によるサブ波長周期構造の設計

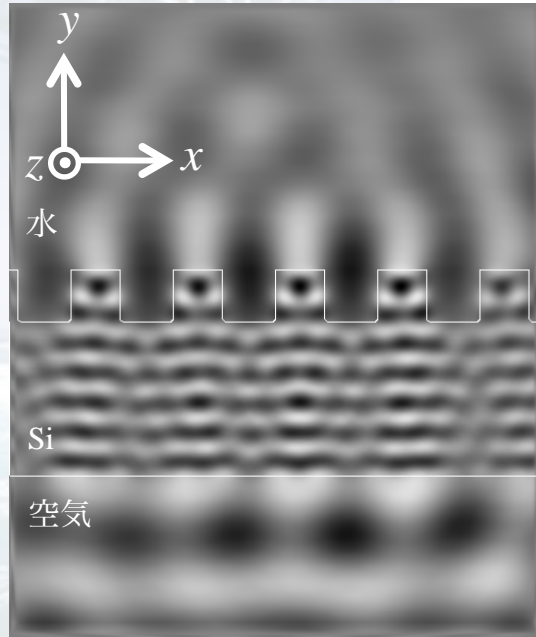


解析モデル

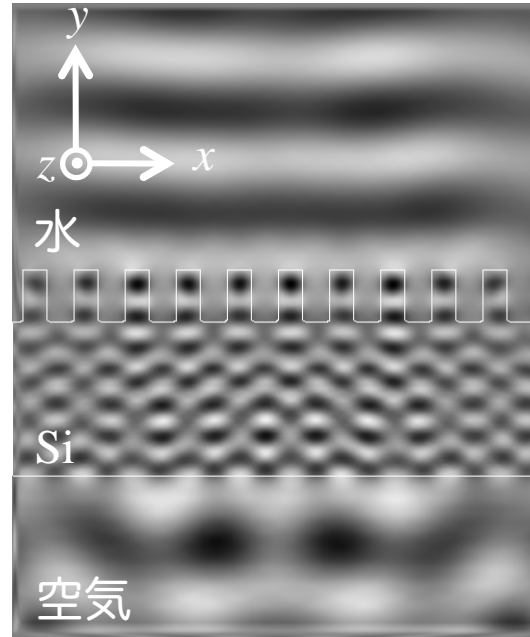
解析パラメータ

捕捉光の波長	λ	
周期幅: D	$1.0\lambda, 0.5\lambda, 0.2\lambda$	
Duty比: d/D	0.5	
深さ	0.5λ	
比誘電率	水	1.77
	シリコン	12
	空気	1.0
解析領域 [μm]	6×5	
解析時間 [ps]	0.7	

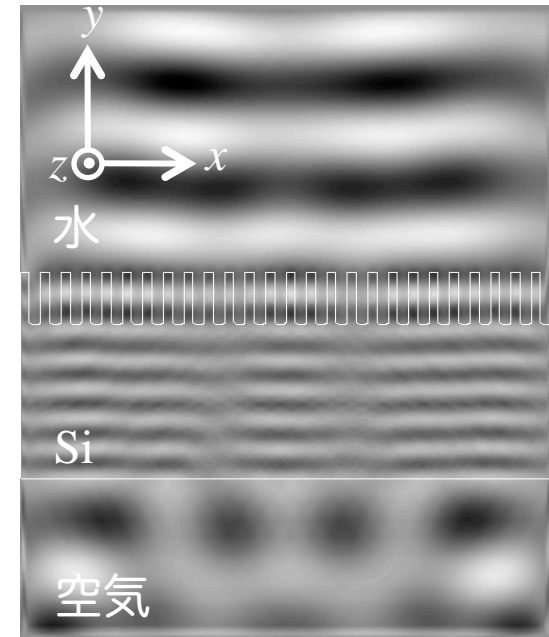
サブ波長周期構造の電磁場分布



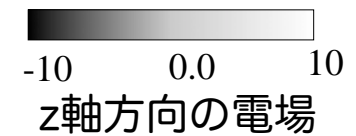
周期幅: λ



周期幅: 0.5λ



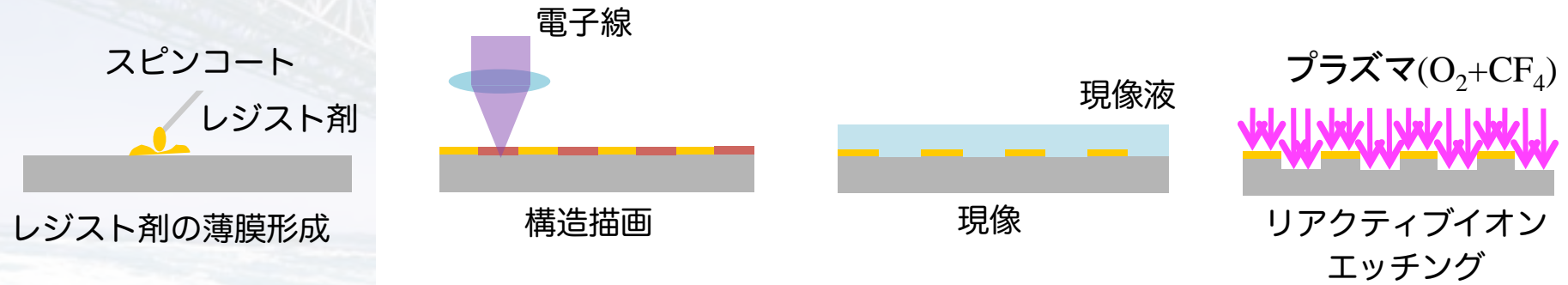
周期幅: 0.2λ



周期幅により周期局在光および一様な局在光発生

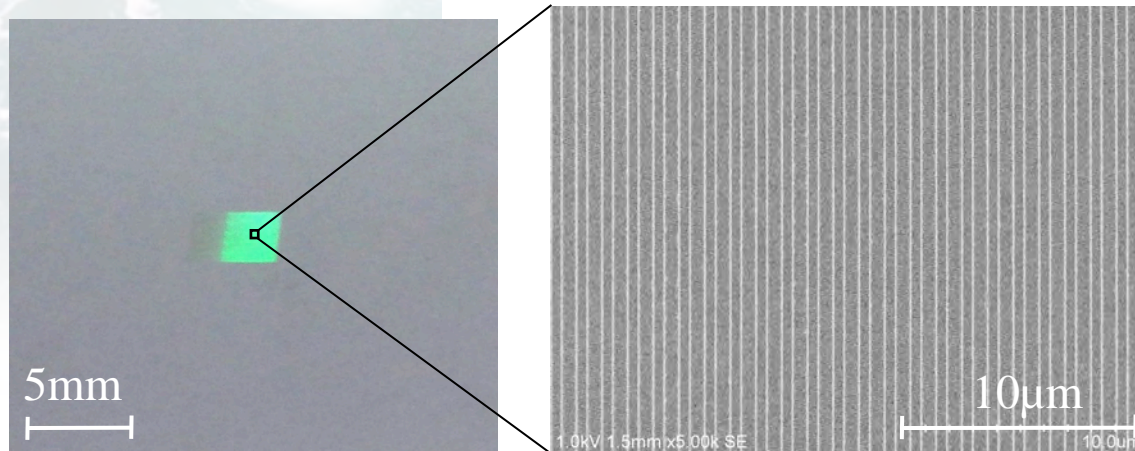
サブ波長周期構造の作製

サブ波長周期構造の作製法



作製したサブ波長周期構造

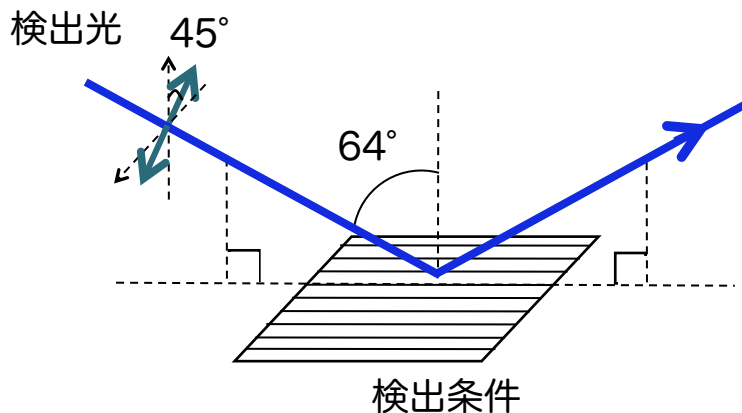
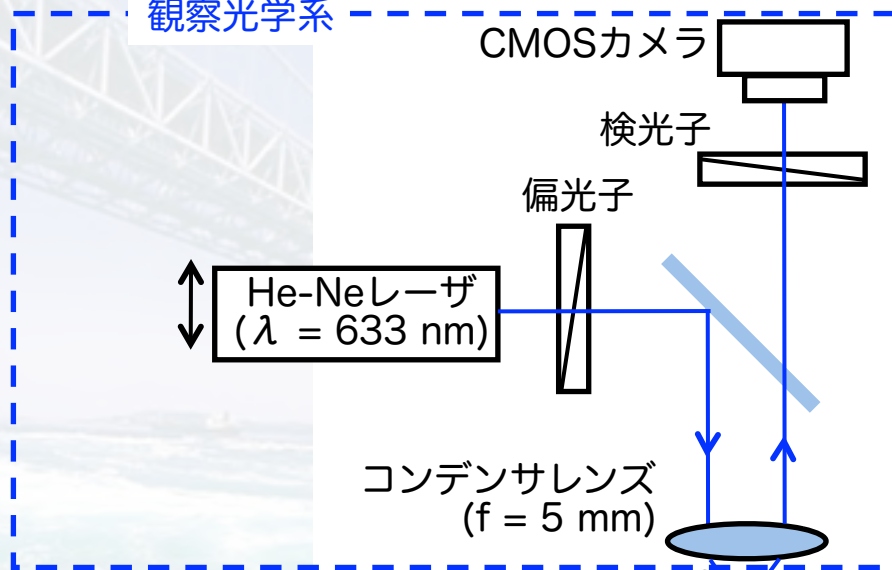
電子顕微鏡画像



作製したサブ波長周期構造
周期幅： 1.1λ , 0.51λ

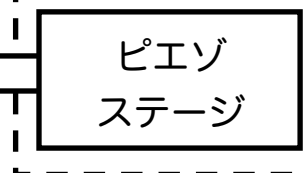
ナノ粒子捕捉検出システム

観察光学系

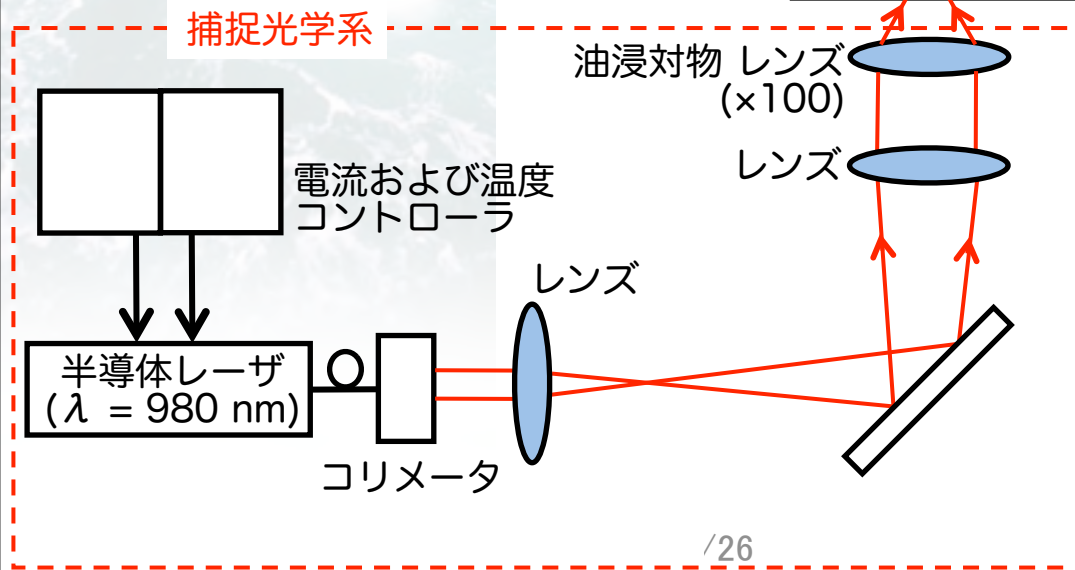


サンプルおよびシリコン基板

制御系



捕捉光学系



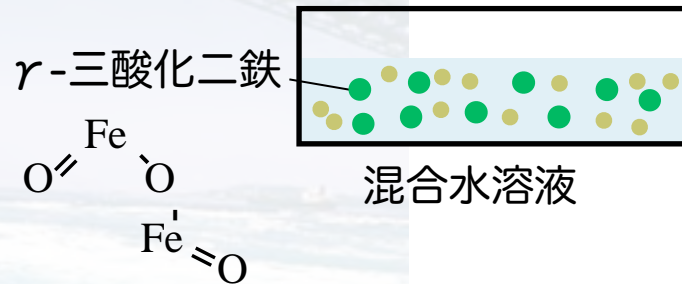
捕捉条件

サンプル： 金γ-三酸化二鉄合成粒子
(粒径：21 nm)

捕捉光量： 27 mW

ナノ粒子の作製

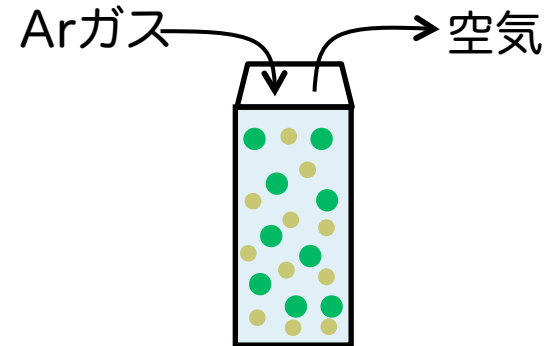
PVA水溶液+塩化金酸+2-プロパノール



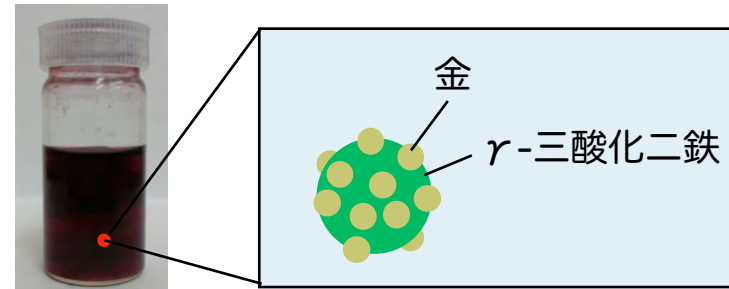
(1) γ -三酸化二鉄を分散



(3) Co_{60} による γ 線照射



(2) Arガスで置換し密閉

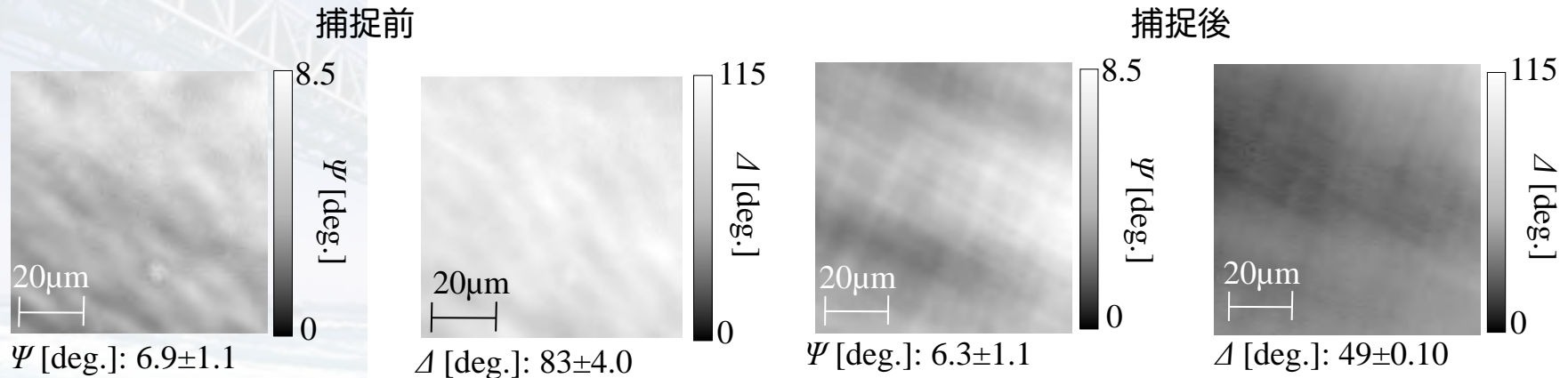


合成粒子水溶液 金 γ -三酸化二鉄合成粒子

(4) 金 γ -三酸化二鉄合成粒子生成

周期幅を変化させた場合の偏光特性の変化

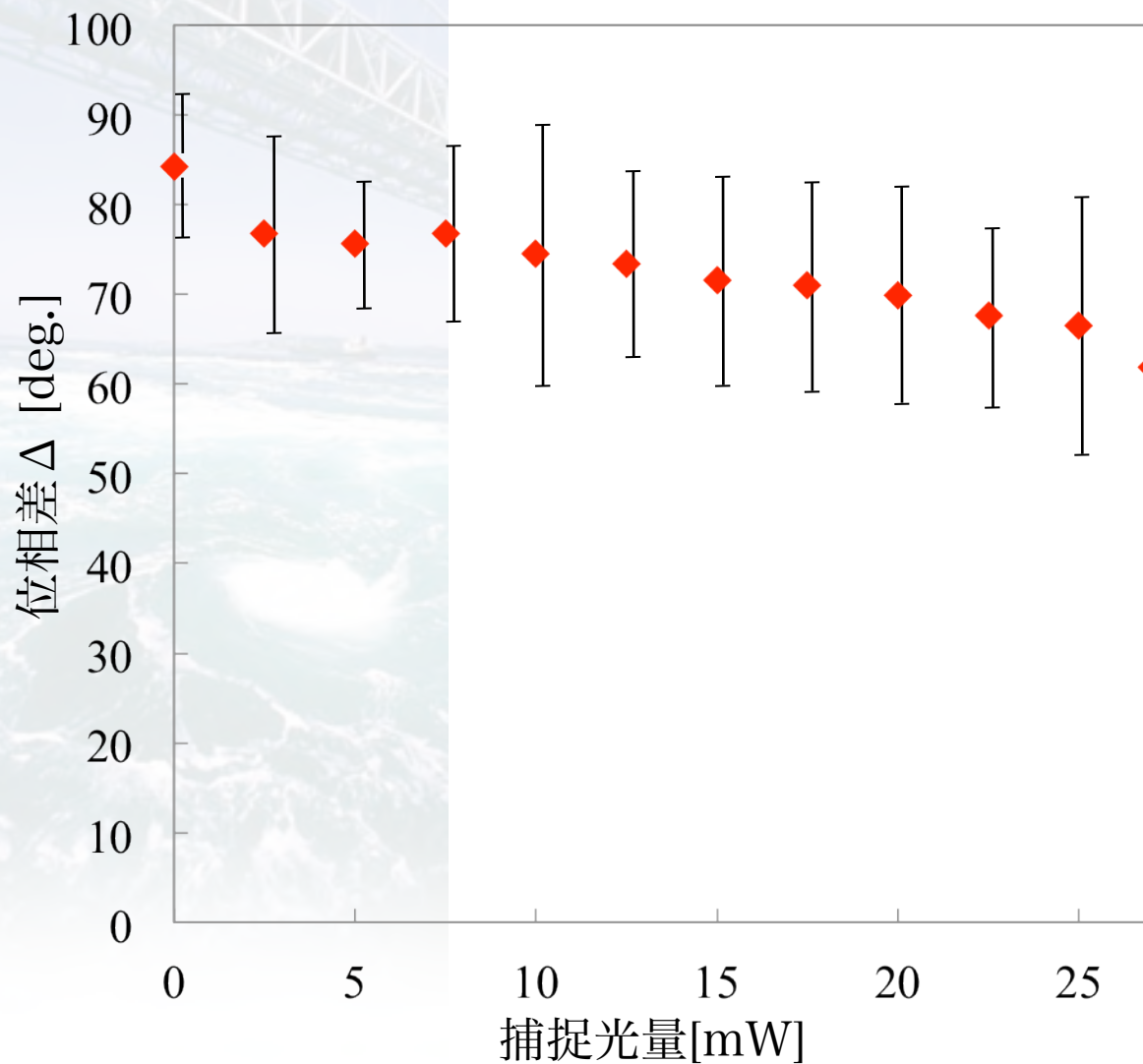
周期幅 0.51λ におけるナノ粒子捕捉前後の偏光特性



周期幅	Ψ [deg.]		Δ [deg.]		Δ の変化量 [deg.]
	捕捉前	捕捉後	捕捉前	捕捉後	
1.1λ	3.4 ± 0.58	5.8 ± 1.2	96 ± 8.0	82 ± 5.7	14
0.51λ	6.9 ± 1.1	6.3 ± 1.1	83 ± 4.0	49 ± 0.10	34

周期幅の減少に伴い位相差の変化量増加

捕捉光の出力による位相差の変化



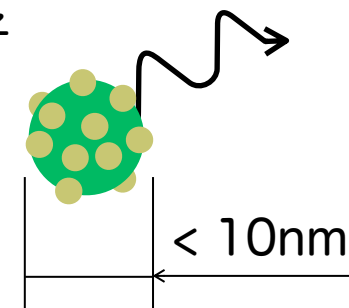
シリコン基板の異方性解消

ナノ粒子が捕捉
できることを確認

ナノ粒子の特徴

- ・ 回折限界以下の大きさ
- ・ ブラウン運動(液中)

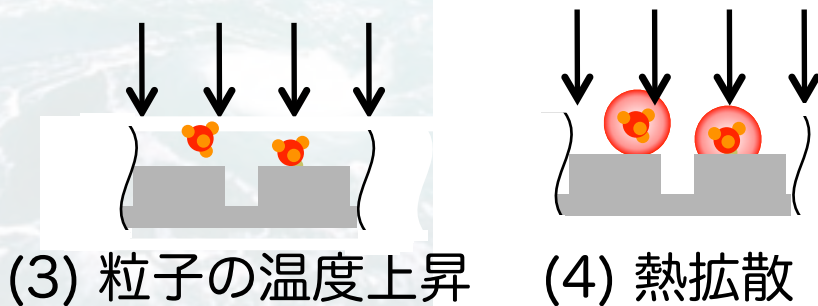
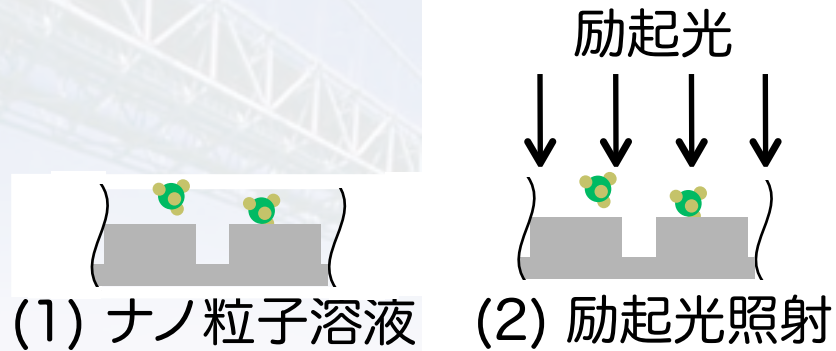
ナノ粒子



観察する視点

- ・ 集団としての観察 (マクロな観察)
マस्पロダクション的な視点から
- ・ 粒子としての観察 (ミクロな観察)
反応や挙動の解析

光熱変換効果による単一ナノ粒子イメージング



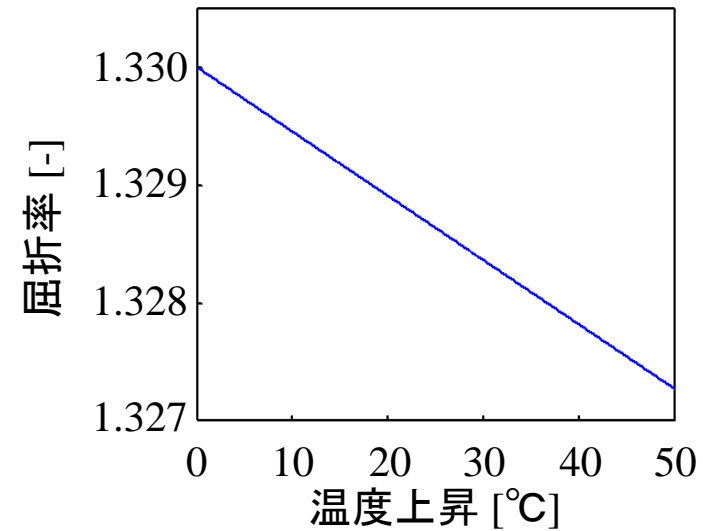
屈折率の温度係数

$$\frac{dn}{dT} = -\frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{6n^2} \beta$$

Y. Terui et al *J. Photopolym. Sci. Technol.* **18** 337 (2005)

n : 溶媒の屈折率

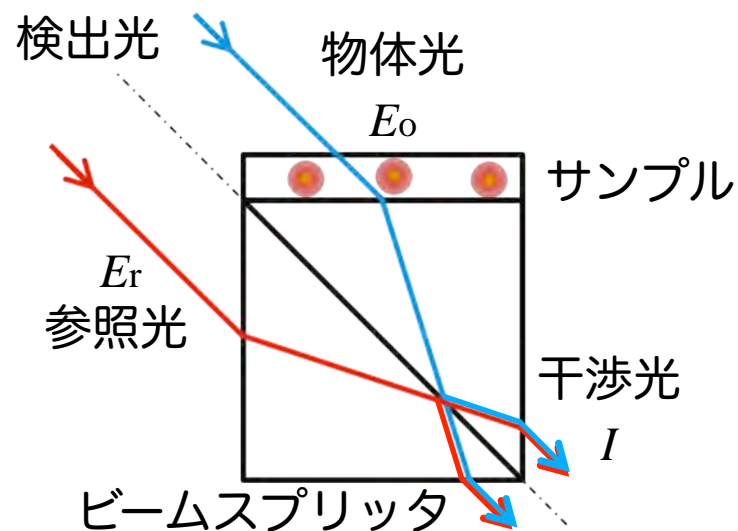
β : 溶媒の体積膨張率



水の屈折率温度依存性

屈折率変化の測定により拡大した粒子像を取得

共通光路型干渉計による屈折率変化の検出



干渉光の光強度分布

$$I(x, y) = E_o^2 + E_r^2 + 2E_o E_r \cos \left[\frac{2\pi d}{\lambda} \left\{ \sqrt{2} - \frac{n_s(x, y)}{\cos \theta_s} \right\} + \Delta \right]$$

λ : 検出光の波長

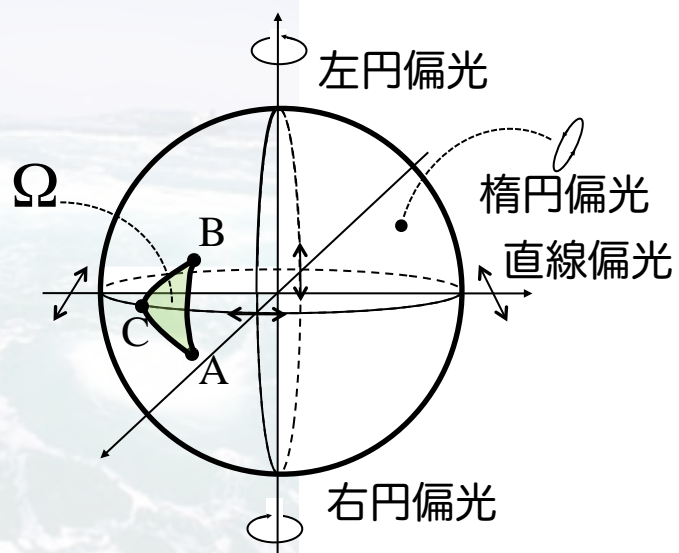
d : サンプルの厚み

$n_s(x, y)$: サンプルの屈折率分布

θ_s : サンプル界面での屈折角

Δ : 幾何学的位相

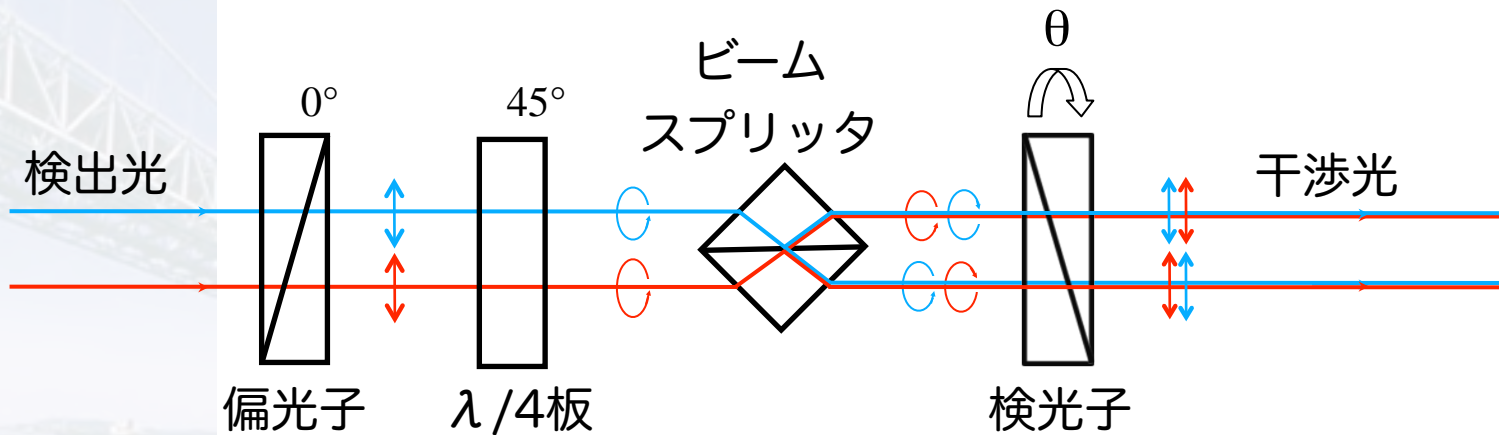
偏光状態のポアンカレ球表示



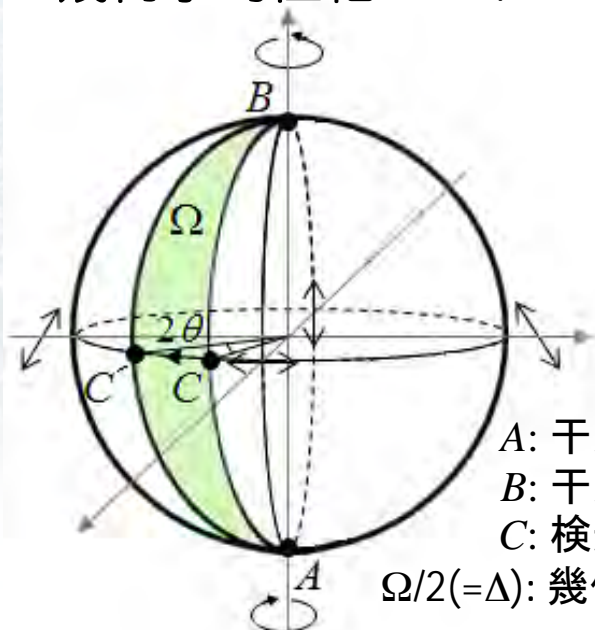
- A: 物体光の偏光状態
- B: 参照光の偏光状態
- C: 干渉光の偏光状態
- Ω : 球面上の三角形の面積

$$\text{幾何学的位相 } \Delta = \Omega/2$$

幾何学的位相シフトによる位相解析



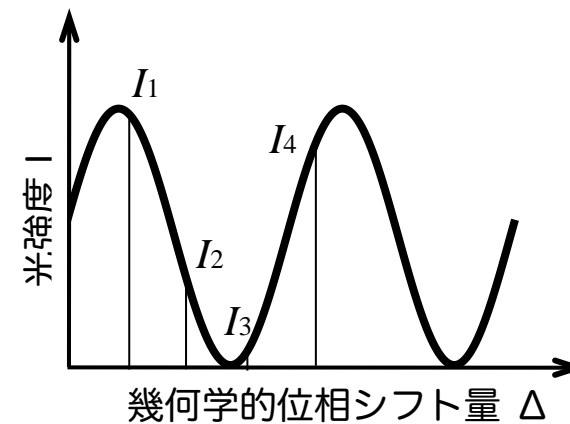
幾何学的位相シフト



- A: 干渉光の反射成分
- B: 干渉光の透過成分
- C: 検光子透過後の干渉光
- $\Omega/2 (= \Delta)$: 幾何学的位相シフト量

ポアンカレ球

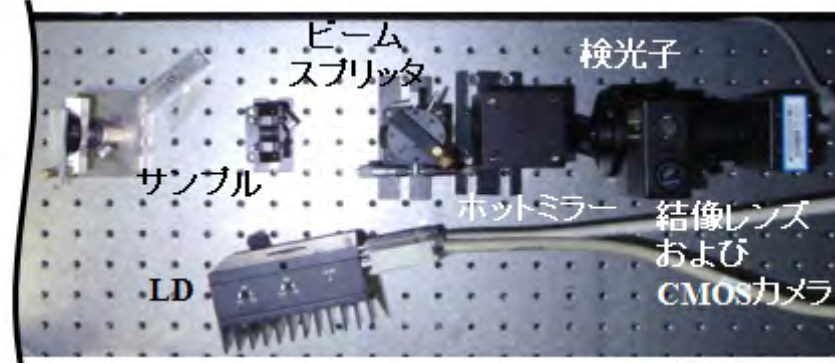
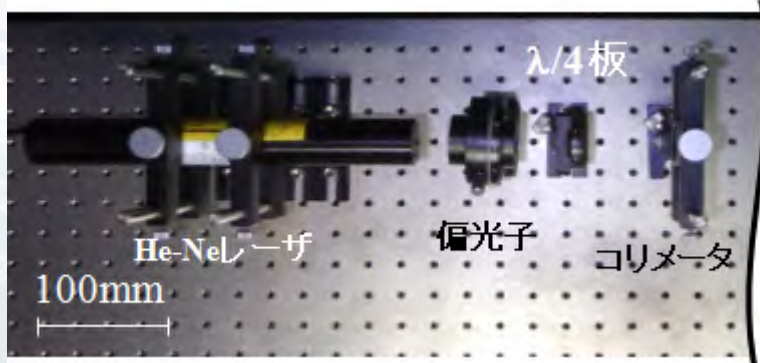
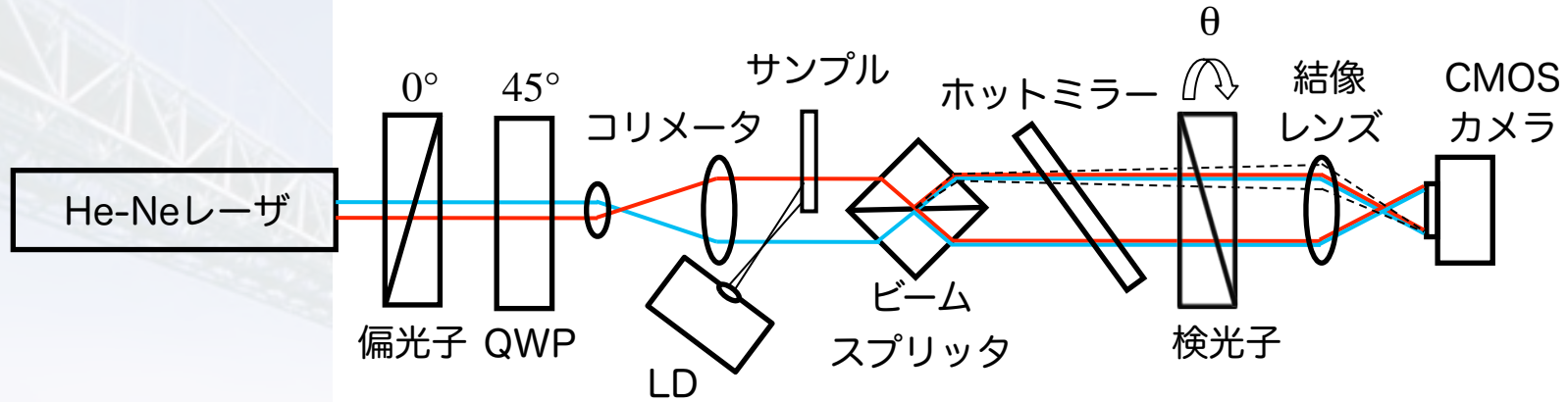
4ステップ位相シフト法による位相解析



干渉光の位相

$$\phi(x, y) = \tan^{-1} \left(\frac{I_2(x, y) - I_4(x, y)}{I_1(x, y) - I_3(x, y)} \right)$$

作製した共通光路型干渉計

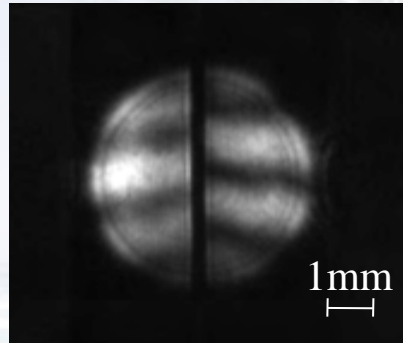


検出光源	He-Neレーザー 波長: 632.8 [nm] 出力: 1.5 [mW] ビーム径: 0.63 [mm]
励起光源	半導体レーザー 波長: 800 [nm] 出力: 最大200 [mW] ビーム径: 1 [mm]

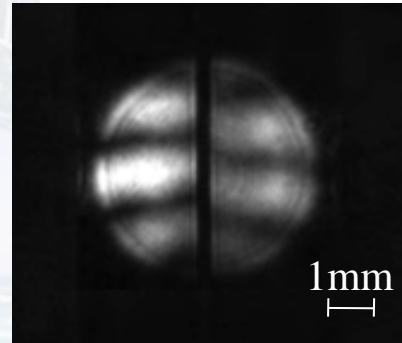
ビームスプリッタ	波長範囲: 400~700 [nm] 無偏光
結像レンズ	F値: 1.4 焦点距離: 4~12 [mm]
CMOSカメラ	解像度: 744×480 階調: 8 [bit]



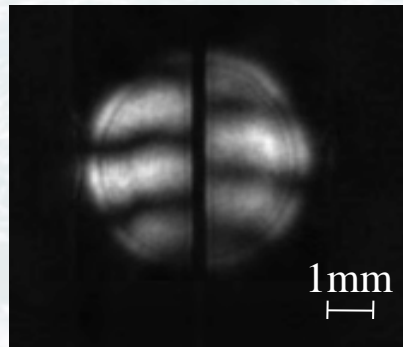
共通光路型干渉計による干渉像および位相分布



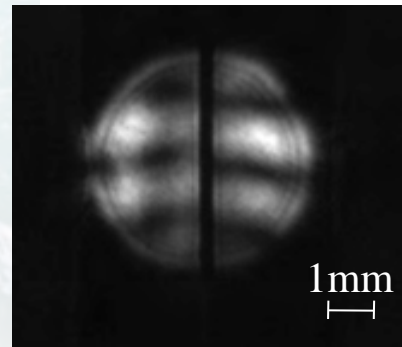
$\Delta=0$ [rad.]



$\Delta=\pi/2$ [rad.]



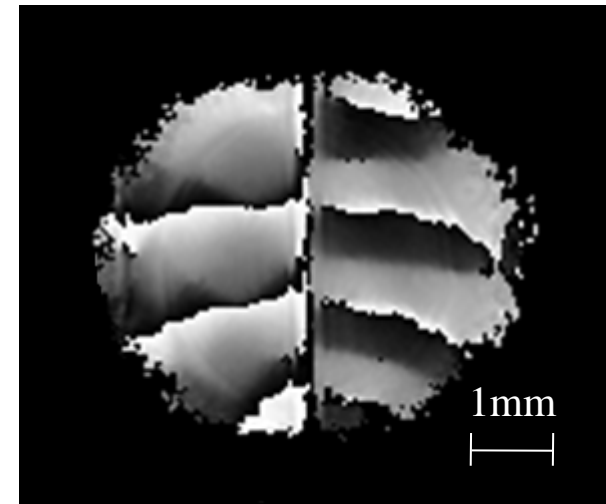
$\Delta=\pi$ [rad.]



$\Delta=3\pi/2$ [rad.]

255
光強度
[gray scale]
0

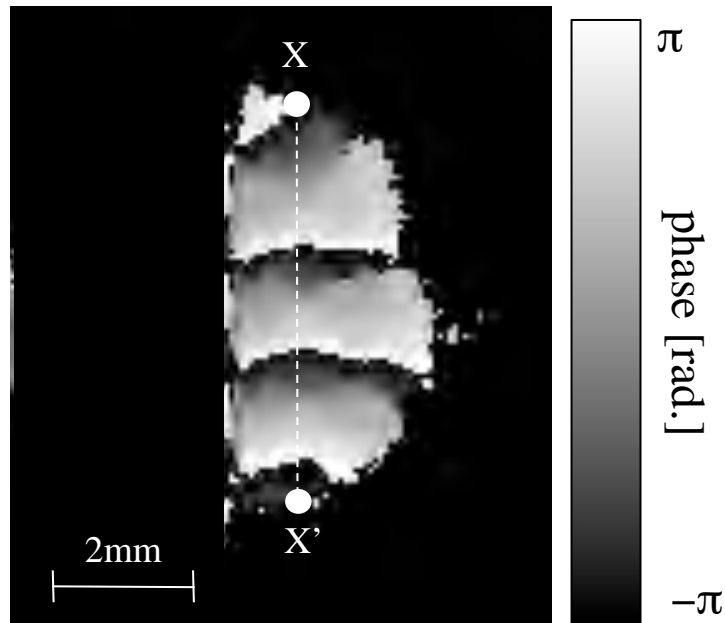
取得した干渉像



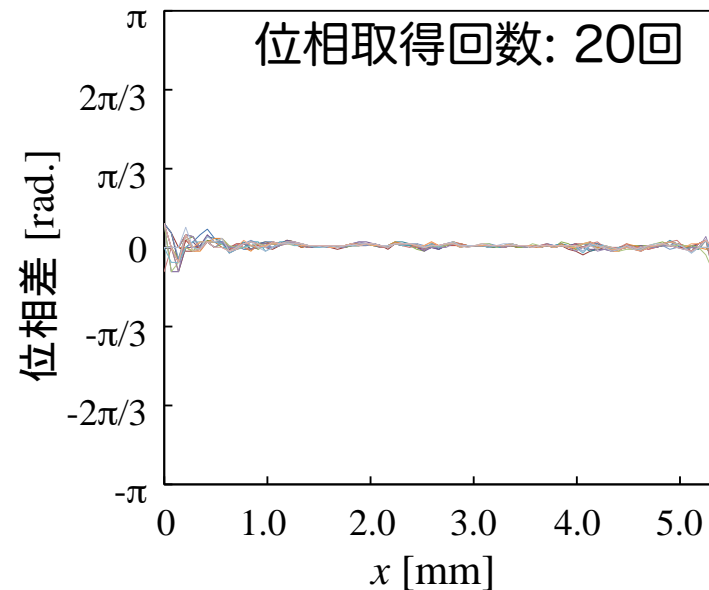
干渉光の位相分布

π
位相 [rad.]
 $-\pi$

共通光路型干渉計の精度検定



取得した位相分布



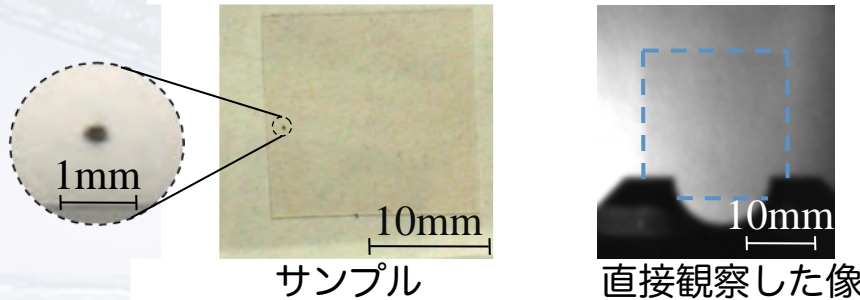
初回測定時の位相を基準とした
各測定回での位相差

$\lambda / 100$ 以下の繰り返し精度

光熱変換効果による位相変化の測定

サンプル

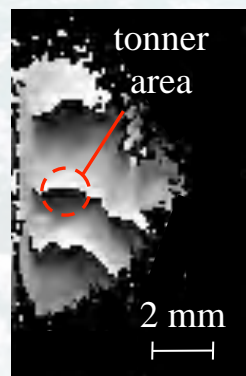
直径0.1 [mm]の円を印刷したPETフィルム



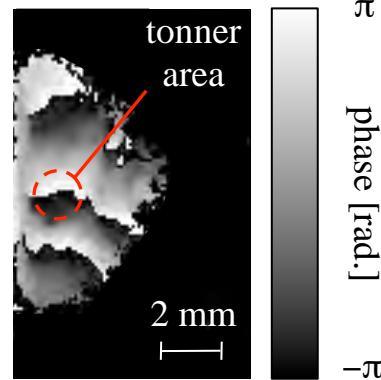
測定条件

励起光強度	25.6 [W/cm ²]
照射時間	100 [s]
照射領域	$\phi = 1$ [mm]

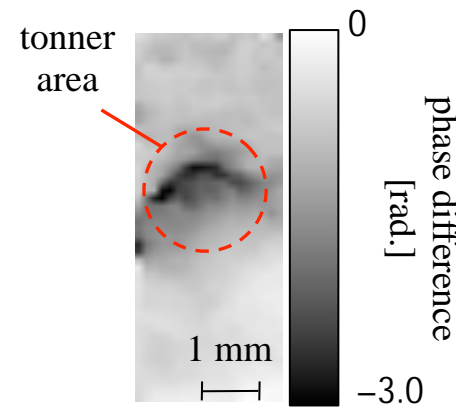
取得した位相分布



励起光照射前



励起光照射後



位相変化の分布

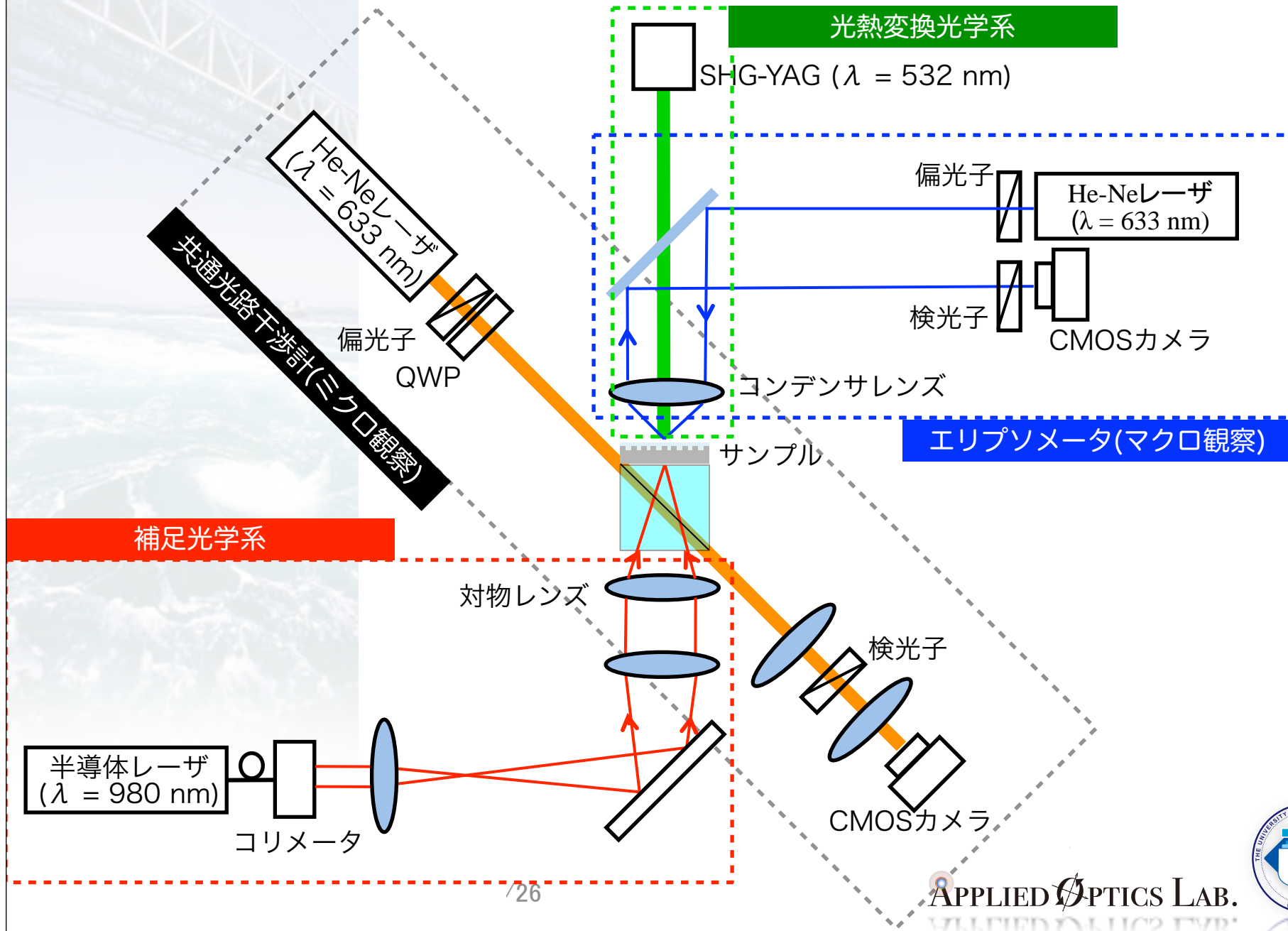
位相変化量のピーク値
-2.55 [rad.]

位相変化量の半値幅
0.86 [mm]

光熱変換効果による干渉光の位相変化を確認

位相変化の測定により疑似的に拡大した物体を検出可能

ナノ粒子トラップシステム



まとめ

周期局在光を用いたナノ粒子トラップシステムを提案

- 集団的ナノ粒子検出（マクロな観察システム）
 - 周期局在光によるナノ粒子の周期的補足
 - 偏光解析による補足状態の検出
- 単一粒子検出システム（ミクロな観察システム）
 - 光熱変換効果による粒子の擬似的な拡大
 - 共通光路干渉計による位相解析

謝辞

本研究は、科学研究費補助金(若手研究(A))および物質・デバイス共同研究領域拠点事業の援助をいただいています。ここに、感謝の意を表します。