レーザーによる光圧を利用した微小物質の回転およびナノ構造の構築

三 澤 弘 明^{*1}

Optical Manipulation of Individual Microparticles and Tailoring of Nanostructures in Polymer Gels

Hiroaki MISAWA

Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University Kita21 Nishi10, Kita-ku, Sapporo 001-0021 Japan

(Received November 6, 2004, Accepted July 2, 2005)

1. はじめに

光の圧力,「光圧」に関する実験的な測定が行われたのは1870年頃である. 真空管内に羽根車を設置した図1のような装置が用いられた. この羽根に光を照射すると羽根車は回転し, あたかも光圧によって回転させられているかのように見えた. しかし, 当時のイギリスの物理学者, クルックスらによって, この回転は光圧のためではなく, 真空管内に残っている気体分子の「熱作用」が原因で生じることが解明された. これは「ラジオメーター効果」と呼ばれる現象であり, 次のように理解されている. 光子が羽根に衝突すると光のエネルギーは内部エネルギーに変換され, 羽根の表面の温度上昇が誘起される. この時, 管内の気体分子が暖められた羽根表面と接触すると, 熱せられて高速度ではね返される. こうして, 気体分子は等しい大きさで反対方向の運動量を羽根に与え, この反作用の力が羽根を回転させるのである. 光圧を測定するべく作製された装置によりラジオメーター効果しか観測されなかったのは, 当時の真空技術では, 真空管の中から気体分子を十分除去することができなかったのが大きな原因であった.

このラジオメーターの実験から30年ほど経過した20世紀の初頭, Lebedevにより実験的に光圧の存在がはじめて検証された¹⁾. さらにそれから約70年経た1970年, Ashkinによって対向した2本のレーザービームを水中のポリスチレン微粒子に照射すると微粒子が光圧により非接触・非破壊的に捕捉されることが初めて見いだされ, 光圧に関する研究は新たなステージに入った²⁾. これ以降, 光圧を用いた応用研究は目覚ましい発展を遂げた. まず, Ashkinのグループにより屈折率の高い透明誘電体微粒子に顕微鏡の対物レンズを用いてレーザー光を絞り込み照射すると, 微粒子がどの位置にあってもレーザー光の焦点の方向に光圧が作用することが理論的に導き出され, 集光スポット付近に微粒子を捕捉し, マニピュレーションできる方法も開発された³⁾. これにより, レーザーマニピュレーションは物理学のみならず, 化学, 生物学, 機械工学など様々な分野で利用されるようになった. 最近では, タンパク質やデオキシリボ核酸 (DNA) に接着させたサブマイクロメートルサイズの微粒子をレー

図1 ラジオメーターの写真(現在の技術で作製されたもの).

ザーマニピュレーションすることにより, これら生体分子の運動特性や機械的強度を1分子レベルで明らかにする研究も進められている^{4,5)}.

一方, 筆者らも1990年に, 従来のレーザーマニピュレーション手法では捕捉することができなかった周囲の媒質より低い屈折率を持つ微粒子の捕捉や, 無秩序にブラウン運動する多数の微粒子を規則正しく配列させることを可能にするレーザー走査型マイクロマニピュレーション装置の開発に成功した⁶⁾. さらに最近では, 光学的に異方性を持つ液晶液滴を重水中で直線偏光や円偏を用いてレーザー捕捉することにより, 液滴の回転制御が可能なことや⁷⁻⁹⁾, 最近人工筋肉としての応用が注目されている高分子ゲルに光圧を作用させると可逆的な体積相転移を誘起でき, 体積収縮と膨潤を制御できることも見いだした¹⁰⁾. これらの研究が重水中で行われる理由は以下のとおりである. 光圧によって様々な物質をマニピュレーションする研究においては, 前述した熱による効果を極力排除することが重要である. レーザーマニピュレーションの研究には連続発振イットリウムアルミニウムガーネ

^{*1} 北海道大学電子科学研究所 (〒001-0021 札幌市北区北21条西10丁目 北海道大学創成科学研究棟内)

ット (CW YAG) レーザー光 (波長1064 nm) が広く利用されているが、これは有機、無機材料の多くにおいて、この波長域に吸収帯が無いためレーザー照射による熱発生を無視することができるためである。しかし、水中におけるレーザーマニピュレーションの場合、水の赤外吸収のオーバーートンが1064 nm 付近に存在するため、レーザー照射による熱発生が無視出来ない一方、重水はこのオーバーートンが水に比べ長波長側にシフトしているためほとんど吸収されることがなく、熱による効果を無視できるために利用されている。

本稿においては、光圧による微粒子マニピュレーションの原理とこれら筆者らが進める最近の研究に関して紹介する。

2. 光圧による微粒子の捕捉

光を粒子 (光子) と考えると、1 個の光子は h/λ で与えられる運動量を持っている。(ただし h はプランク定数、 λ は光の波長を表す) 光の光圧はこの光子の運動量に関する保存則を使って説明することができる。ここで、図 2 に示すように透明誘電体微粒子に顕微鏡用の対物レンズによってこの微粒子が吸収しないような波長のレーザービームを集光照射した場合を考える。図 2(a) の光線 A で代表されるように、屈折率が周囲の媒質と異なる微粒子の表面で屈折して光の進行方向が変わる。これは、光子の運動量が p_1 から p_2 に Δp 変化したことを示しており、この運動量変化が保存則に従って微粒子に受け渡され ($-\Delta p$)、光圧になる。光圧の大きさは、1 個の光子の運動量変化と微粒子に到達した単位時間あたりの光子数の積となる。さらに、微粒子の中を通過した光子は、媒質に出るときにもう一度屈折するため、そのときにも微粒子に光圧が作用する。その結果、光線 A 上の光子は全体として図中に示す光圧 (F_A) を発生する。微粒子に照射されるレーザー光は対物レンズによって絞込まれているため様々な角度から微粒子に入射するが、その光圧の合力 (F) を計算すると、微粒子の屈折率が媒質より大きい場合には、ちょうどレーザー光の焦点 (f) の方向を向く力となる。たとえば、微粒子が焦点より下方にあるとしても、光の進行方向とは逆向きの方に向かって光圧が発生する。厳密には、微粒子の表面で反射される光子もわずかながら存在するので、それによって発生する光圧も考慮すると、合力の向く位置は焦点よりわずかに下方となる。また、光圧の大きさは微粒子の中心がレーザー光の焦点から離れるほど大きくなり、微粒子の表面付近に焦点が存在するときに最大となり、それより遠ざかると減少する。図 3 に水中でレーザー捕捉された高分子微粒子を示した。図中央のレーザー捕捉された微粒子は、他の微粒子とは異なり顕微鏡のステージを移動してもその動きに従って移動することができないため、ブレないで撮影されている。

これまで説明した光子の運動量変化による光圧の発生に関しては、微粒子の大きさが照射するレーザー光の波長より十分大きいという条件が必要である。これは、波長より小さい微粒子に対しては図 2 のように光子の経路を光線で考えることができないためである。しかし、波長よりも小さな微粒子に対して作用する光圧に関しても、微粒子の屈折率が周囲の媒質のそれより大きいという条件を満たしていれば、光圧

図 2 透明誘電体微粒子のレーザーマニピュレーションの原理。

図 3 水中に分散した高分子微粒子の連続波イットリウム・アルミニウム・ガーネット (CW YAG) レーザー (波長: 1064 nm) によるレーザーマニピュレーション。

はレーザー光強度の最も高い方向に向き、レーザー光の焦点付近で微粒子が捕捉されることが理論的に証明されている。一方、微粒子の屈折率が、周囲の媒体より低い場合や、微粒子が照射レーザービームを吸収、反射する場合は、ここで示した従来のレーザーマニピュレーション法で捕捉することはできない。これらの微粒子を捕捉するために、筆者らは、前述したレーザー走査型マイクロマニピュレーション装置を開発している⁶⁾。

3. レーザー捕捉した微粒子の回転制御

レーザーマニピュレーションにより微粒子の回転を制御することが可能になれば、軸受けのないマイクロモーターやナノモーターを構築することが可能になる。通常、球などの対称性の良い微小物体をレーザーマニピュレーションした場合には、極めて安定に捕捉することができるが、非対称な形状の微小構造物をレーザーマニピュレーションすると偶力が発生し、回転運動が誘起される。すでに非対称な形状のマイクロ構造物を半導体微細加工技術を用いて作製し、レーザーマニピュレーションすることにより回転制御する研究が報告されている¹¹⁾。

他方、形状対称性の高い球形物質であっても、液晶液滴のように光学的異方性を有する微小体を直線偏光や円偏光レーザービームを用いてマニピュレーションを行うと、液滴の向

図5にネマチック液晶であるE-44（メルク社製）を重水中で液晶液滴とし、偏光顕微鏡下で観察したときの様子を

複屈折性を有する物質中を光が伝播すると、その物質が波長板として働いて光の偏光状態が変化し、角運動量が変化する。このような光の角運動量の変化により、液晶液滴に光学トルクが発生し、回転が誘起される。液晶液滴が粘性を持つ媒体中で回転すると、当然のことながら粘性抵抗によるトルクが発生するためこれと光学トルクとが釣り合ったところで一定の回転周波数で回転することになる。

503

図7 円偏光レーザービームによって捕足された液晶液滴による光変調(a)と、変調周波数の捕捉レーザーパワー依存性(b)。

転速度を明らかにするために、偏光顕微鏡の光検出器の直前にピンホールを装着し、マルターゼクロスの動きによる透過光の変化を測定した結果を図7に示した⁷⁾。図7(a)は直径 $1.8\mu\text{m}$ の液晶液滴を700 mWの円偏光レーザービームによって捕捉した場合に観測される光変調であり、 $280\mu\text{s}$ の光スイッチング速度が得られた。この光スイッチングは、図5のマルターゼクロスの動きからも示されるように、液晶液滴の1/4回転に相当している。図7(b)は、直径 $1\mu\text{m}$ および $2.3\mu\text{m}$ の液晶液滴を円偏光ビームでトラップした時の回転速度をレーザーパワーの関数としてプロットしたものである。図の破線は、レーザー光の持つ角運動量が一定の割合で液滴に伝わり、液滴の周囲の水は静止しているという単純化したモデルで計算した回転数であるが、実験結果をよく再現している。

4. 光圧による高分子の体積相転移制御

光圧によって材料のナノ構造がマニピュレーションできれば、局所的に新規機能を有する新しいナノ材料を構築することが可能になると考えられる。筆者らは、ソフトマテリアルである高分子ゲルを用いて光圧によってその局所的な体積相転移を誘起することを試みた⁹⁾。

高分子ゲルは現在種々の分野で幅広く利用されており、たとえば紙おむつの中で水分を吸収・保持する材料としても用いられている。高分子ゲルは分子構造として3次元網目構造を有し、その形態はこれら高分子鎖間に作用するクーロン力や疎水的な力、水素結合力、ファンデアワールス力などのバランスによって決定される。筆者らはこのような高分子ゲルのマイクロロッド（ロッド直径 $\sim 50\mu\text{m}$ ）を作製し、重水

図8 ポリ-N-イソプロピルアクリルアミド (PNIPAM) ゲルの放射圧による体積相転移制御。

図9 PNIPAM ゲルの体積相転移のおよぼす放射圧の影響
Do: 収縮前のゲルの直径, D: 収縮後のゲルの直径
(a), ゲルの体積収縮と浸透圧との相関関係(b)。

中で光圧を作用させ、その挙動を観測した。

図8に用いたマイクロ高分子ゲルのポリ-N-イソプロピルアクリルアミド (PNIPAM) ゲルの光圧による体積相転移の結果を示した。図8(a)はCW YAG レーザー (1064 nm) を集光照射する前の重水中のPNIPAMゲルであるが、レーザーを照射することによって光圧を作用させると、図8(b)に示すように照射部位の局所的な体積相転移によるゲルの収縮が観測された。レーザー照射を停止するとゲルは図8(a)の状態に可逆的に変化した。レーザー照射位置は図8(c)に示す $1.5\mu\text{m}$ 程度のスポットであり、レーザー照射により光圧が作用している領域よりもより広い空間で体積収縮が観測

された。

一方、PNIPAMゲルは、これまでの研究から光圧ではなく熱による外部刺激に対して体積相転移を示し、35℃付近で収縮することが知られている。そこでレーザー照射により局所的な温度上昇がどの程度誘起されるかを色素の発光から実験的に見積ったところ、本実験系では1.2 Wのレーザー照射によっても 1.7 ± 0.2 K程度の温度上昇しかないことが示された。したがって、図8(b)で観測されたレーザー照射による体積収縮が光圧によるものであることが明らかとなった。図9(a)にPNIPAMゲルの体積収縮の温度依存性を示した。これより、0.75 Wのレーザー照射により発生した光圧の作用で相転移温度が10℃程度低温側にシフトしたことが示された。図9(a)の20℃付近でレーザーのオン・オフによって観測されるゲルの体積収縮がどの程度の浸透圧に対応するかを報告されている理論式を用いて算出したところ、45 MPaとなった(図9(b))¹²⁾。体積相転移を誘起するためには、4.1 GPaの浸透圧が必要(図9(b))であることから、光圧の作用だけでPNIPAMゲルの形態が大きく変化したのではなく、光圧によりナノメートルオーダーの高分子鎖の距離がわずかに変化し、それによってゲルの形態を保つ様々な力のバランスが崩れ、体積収縮が誘起されたものと考えられる。

5. おわりに

レーザーマニピュレーション技術は、Ashkinによって初めてマイクロメートルサイズの微粒子が捕捉されてから30

年以上が経過し、現在では広範な研究分野で利用されている。最近では本稿で紹介したように、微小物質のハンドリングとしてだけでなく、回転制御法やナノ構造のマニピュレーションにも応用されつつあり、そのポテンシャルは極めて高いものといえる。今後もナノテクノロジーを含むより広い研究分野でレーザーマニピュレーション技術が利用されることを期待したい。

〔文 献〕

- 1) P. Lebedev: Ann. Phys. (Leipzig), 6 (1901) 433.
- 2) A. Ashkin: Phys. Rev. Lett., 24 (1970) 156.
- 3) A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm and S. Chu: Opt. Lett., 11 (1986) 228.
- 4) A. Ishijima, H. Kojima, T. Funatsu, M. Tokunaga, H. Higuchi and T. Yanagida: Cell., 92 (1998) 161.
- 5) Y. Arai, R. Yasuda, K. Akashi, Y. Harada, H. Miyata, K. Kinoshita Jr and H. Itoh: Nature, 399 (1999) 446.
- 6) マイクロ化学(化学同人, 増原 宏, 喜多村 昇, 三澤弘明, 玉井尚登, 笹木敬司編集, 京都市, 1993) 第1版, 第2章.
- 7) S. Juodkasis, M. Shikata, T. Takahashi, S. Matsuo and H. Misawa: Appl. Phys. Lett., 74 (1999) 3627.
- 8) S. Juodkasis, M. Shikata, T. Takahashi, S. Matsuo and H. Misawa: Jpn. J. Appl. Phys., 38 (1999) L518.
- 9) S. Juodkasis, I. Hasegawa, N. Murazawa, S. Matsuo and H. Misawa: Appl. Phys. Lett., 82 (2003) 4657.
- 10) S. Juodkasis, N. Mukai, R. Wakaki, A. Yamaguchi, S. Matsuo and H. Misawa: Nature, 408 (2000) 178.
- 11) E. Higurashi, H. Ukita, H. Tanaka and O. Ohbuchi: Appl. Phys. Lett., 64 (1994) 2209.
- 12) S. Hirotsu, Y. Hirokawa and T. Tanaka: J. Chem. Phys., 87 (1987) 1392.