金属酸化物粉末の光トラッピングにおける光学定数の影響

大森 良太*・鈴木 篤之*

Effects of Optical Constants of Metallic Oxide Particles
on the Optical Trapping Performances

Ryota OMORI* and Atsuyuki SUZUKI*

Optical trappings of metallic oxide particles with various optical constants, GeO_2 , MgO , Al_2O_3 , ThO_2 , Nd_2O_3 , CeO_2 , TiO_2 and UO_2 have been experimentally performed in water using two kinds of visible laser lights and an objective lens of $N.A. = 1.3$. Two-dimensional optical trappings of all particles except UO_2 , which has a large extinction coefficient, were possible for either of the laser lights. On the other hand, while three-dimensional optical trapping was possible for CeO_2 having a refractive index of ~ 2.2 by a He-Ne laser light at 633nm, it was observed for particles having refractive index of ≤ 1.7 by an Ar^+ laser light at 488nm. The trapping efficiencies of absorbing particles were calculated based on a geometrical optics model to determine the range of the complex index of refraction for which three-dimensional optical trapping is possible to take place. Computational results have a fairly good agreement with experimental results.

Key Words: Optical trapping, Metallic oxide, Radiation pressure, Geometrical optics, Laser manipulation

1. はじめに

光マニピュレーションは光子の持つ運動量、言い換えると電磁場中のマクスウェルの応力が物体に及ぼす力を利用して、対象を操作する手法である。光源には集光性に優れるレーザーが用いられるが、レーザー光がミクロンオーダー程度の物体に及ぼす力(放射圧)は、それに作用する重力や熱運動による力よりも数桁大きく、その非接触的操作が可能となる。Ashkin¹⁾によりレーザー光の放射圧による微粒子の駆動が初め

て報告されたのは1970年のことであるが、さらにAshkinら²⁾は1986年に1本のガウシアンビームによるポリスチレンラテックス粒子の三次元的トラッピングに成功し、これ以降、光マニピュレーションの研究が様々な分野で活発になされるようになっていく。

従来、光マニピュレーションの操作対象は、サブミクロンからミクロンオーダーの微粒子、生体細胞、液滴などで、透明な物体が中心であった。金属のように光の吸収や表面での反射率の大きい物質は、入射光による散乱力が大き

* 東京大学大学院工学系研究科システム量子工学専攻 (〒113 東京都文京区本郷 7-3-1)

* Department of Quantum Engineering and Systems Science, School of Engineering, University of Tokyo (7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113)

くなりトラップが困難になるためである。しかしながら、近年、非透明粒子の光学的トラップや移送も種々の方法³⁻⁷⁾により確認されている。

本研究では1本のガウシアンビームによる金属酸化物粉末のトラッピング特性について実験および数値シミュレーションにより解析を行う。金属酸化物粉末の光マニピュレーション技術は、遠隔的な操作が望まれる放射性物質や核燃料酸化物粉末などへの応用が期待される。また、金属酸化物はバンドギャップの大きさにより可視域での吸収係数が大きく異なるなど多様な光学定数を有し、そのトラッピング特性への影響を解析する上でも好都合である。金属酸化物粉末のトラップでは、 TiO_2 粉末⁸⁾のトラップが報告されている他、三次元的にトラップされた LiNbO_3 粉末⁹⁾や KTiOPO_4 粉末¹⁰⁾からの高調波の発生が確認されている。本研究では、アルゴンイオンレーザー光とヘリウムネオンレーザー光の二種の可視レーザー光を用い、種々の金属酸化物のトラップ試験を実施し、それらの光学特性や入射波長がトラッピング特性に及ぼす影響を解析する。

一方、レーザー光が粒子に及ぼす力の大きさは、基本的にはマクスウェルの方程式と粒子表面の境界条件から入射場、散乱場そして粒子内部の電磁場を記述し、それらの運動量の差から計算することができる。このようなアプローチによる解析理論としては、平面波の球による散乱理論であるLorentz-Mie理論を入射ビームがガウス型ビームの場合に拡張した一般化Lorentz-Mie理論(GLMT)¹¹⁻¹³⁾とArbitrary-Beam理論(ABT)¹⁴⁻¹⁶⁾が提唱されている。両理論は等価であると指摘されているが¹²⁾、三次元的トラップの実施に際しては一般的な条件である、入射ビームを高開口数の対物レンズで絞った場合やビームスポット径が粒径よりも小さい場合には両理論とも完全には妥当しない。すなわち、このような条件の下では、ガウシアンビームによる場の記述がポイントとなり、両理論で用いられているDavis¹⁷⁾の理論による近似解とMaxwellの方程式の厳密解の差が無視できなくなる^{12,16)}。Maxwellの方程式から出発するこれらのモデルは複雑になるが、以下の場合には適当な近似により取り

扱いははるかに容易になる⁸⁾。まず、粒子の大きさが入射波長に比べてずっと小さい場合には、レイリー散乱モデル、すなわち、粒子を一様な電磁場中に存在する双極子と見なして、光と双極子の相互作用という形で現象を捉えるモデルが適用できる。反対に、粒子の大きさが入射波長よりも十分に大きな場合には、幾何光学モデル^{19,20)}が妥当する。このモデルでは入射ビームは回折の効果を無視できる光線の束と考え、入射光と粒子の相互作用を、各々の光線の粒子表面での反射や屈折、および粒子内部での吸収といった観点から記述する。このモデルを用いて、Ashkin²⁰⁾は透明粒子に対するトラッピング力の計算を広範に実施したが、佐藤⁶⁾はさらにこのモデルを吸収を持つ粒子に拡張した。本研究では、ミクロンオーダーの金属酸化物粒子の三次元的トラッピング特性をこの幾何光学モデルにより解析する。

2. 金属酸化物粉末の光学的特性

光マニピュレーション特性は対象粒子の光学的特性、とりわけ屈折率と消衰係数に大きく支配される。酸化物は伝導帯と価電子帯とのエネルギーギャップの大きさによって、絶縁体と半導体に分類されるが、このバンドギャップが大きいほど、可視光に対する吸収の大きさは特に長波長側で小さくなる。酸化物の光の吸収の要因²¹⁾には、このようなバンド間の電子遷移に基づく可視域短波長側の光の吸収の他に、物質の格子振動や分子振動による赤外域の光の吸収が挙げられるが、可視レーザー光を使用する本研究においては、前者の可視域短波長側の吸収が重要である。一般に絶縁体酸化物はエネルギーギャップが大きく、可視域全般にわたり透明であるが、アクチニド元素など原子番号の大きな元素を含む酸化物の場合は、エネルギーギャップが小さいものが多く、可視域の短波長側あるいは全域にわたり光を吸収しやすい。

光を吸収する物質の複素屈折率 $n_p - ik$ において、屈折率 n_p は物質中の光の位相速度が c/n_p であることを意味する。また消衰係数 k は、物質中を伝搬する光の強度が、一波長分進む間に $4\pi k$ の割合で

減衰することを表し、吸収係数 α とは $\alpha = 4\pi k / \lambda$ の関係がある。ただし λ は真空中での入射光の波長である。また、吸収のある物質は表面での反射・屈折に関してスネルの法則が成立しない。

以上のような酸化物による光の吸収に加えて、粉末の調整過程で生成した気孔や不純物による散乱、さらに多結晶体の場合には結晶粒の光学的異方性に基づく結晶粒界での散乱によっても光マニピュレーションの性能は低下すると考えられる。蛍石型など立方晶型の結晶構造を持つ酸化物は光学的に等方であり、結晶粒界での光の散乱は小さいが、複屈折性の大きな酸化物ではこの散乱が大きくなる。

3. 金属酸化物粉末の三次元的光トラッピング実験

3.1 実験装置

実験装置の概略をFig. 1に示す。トラッピングレーザーにはアルゴンイオンレーザー (SPINNAKER Co., Ltd., 1161-A11, $\lambda = 488\text{nm}$, 最大出力250mW) とヘリウムネオンレーザー (NEC Co., Ltd., GLG5900, $\lambda = 633\text{nm}$, 最大出力75mW) の二種の可視レーザーを使用した。透過強度可変式のNDフィルターでレーザー光強度を調節した後、対物レンズの入射瞳をレーザー光で満たすために、レーザービームの直径をビームエキスパンダーで6mmに拡大して顕微鏡内に導入した。顕微鏡は無遠焦点系の透過型顕微鏡

(OLYMPUS Co., Ltd., BX50)で、対物レンズは倍率100倍、開口数1.3、入射瞳の有効径4.9mmの油浸式対物レンズ (OLYMPUS Co., Ltd., UPlanFl) を使用した。また、顕微鏡内部にダイクロイックミラーを設置し、レーザー光を反射し試料に照射させ、試料観測用の可視光は透過させた。試料の様子はCCDカメラを使用して、TVモニターに映し出し、カラープリンタとビデオにより記録した。また、試料面でのビーム強度はMisawa²²⁾らの方法により決定したが、本実験におけるその典型値は50~100mWであった。

3.2 試料

実験に用いた酸化物粉末の種類および光学定数をTable Iに示す。表中の屈折率のうち GeO_2 については1-メチルナフタレンとジヨードメタンの混合溶媒を用いた液浸法により実測した。この際、混合溶媒の屈折率はアッペ屈折計により測定した。その他の酸化物の値は文献値²³⁻²⁸⁾である。複屈折性を有する酸化物については、平均屈折率を示してある。消衰係数は UO_2 と ThO_2 にのみ示してあるが、他の酸化物の消衰係数概ね 10^{-3} 以下と小さい。また、可視域での屈折率の波長依存性は比較的小さいのに対し、消衰係数のそれは吸収端の位置により大きく変化する場合があり、さらに、これらの光学定数は試料の調整方法や形態によっても少なからず変動することにも注意が必要である。

用いた UO_2 粉末と ThO_2 粉末の粒径は数百nm~1 μm 程度である。その他の粉末は市販品を購入し、それらを粉砕して粒径を数百nm~2 μm 程度に調整した。また、各粉末の形状は非球形性が強くなっている。これらの粉末を水中に加え、壁面との吸着を防ぐために界面活性剤を加えた後、十分に超音波分散を行った。さらに、この分散液をホール付きスライドガラスに滴下し、カバーガラスを乗せ、顕微鏡ステージ上に固定した。

3.3 実験結果

各金属酸化物粉末について、水中での二次元及び三次元的トラップ実験の結果をTable Iに示す。二次元的トラップとは、ビームに垂直な方向に関してはビーム中心軸に引き寄せられる

Fig. 1 Schematic diagram of the optical trapping system.

Table I Optical constants and results of optical trapping experiments of various metallic oxides.

	References	Optical constants			Ar ⁺ laser 488nm		He-Ne laser 633nm	
		Wavelength (nm)	Refractive index	Extinction coefficient	2D trapping	3D trapping	2D trapping	3D trapping
GeO ₂			1.66		○	○	○	○
MgO	23	589	1.74		○	×	○	○
Al ₂ O ₃	24	591	1.77		○	△	○	○
ThO ₂	25	633	1.80	0.002	○	△	○	○
Nd ₂ O ₃	23	589	1.85		○	×	○	△
CeO ₂	26	550	2.18		○	×	○	○
TiO ₂	27	600	2.75		○	×	○	×
UO ₂	28	600	2.42	0.009	×	×	×	×

力, またビーム進行方向に関しては前方に押し出される力が働くため, 粒子はスライドガラスの表面でトラップされる現象である。一方, 三次元的トラップとは, ビーム進行方向に関して焦点付近でポテンシャルの谷ができるため, 粒子には焦点近傍方向に力が働き, そこでトラップされる現象である。

実験結果は, 安定したトラップが可能(表中の記号○), トラップは可能だが10~20秒程度で熱運動によりトラップから外れてしまう(表中の記号△), トラップが不可能(表中の記号×)に分けて評価した。同じ種類の粉末であっても, 個々の粒子の粒径や形状は多様であり, ○や△と記した試料も, トラップを試みた全ての粒子がそのような結果であったわけではない。非球形性が強い粉末はトラッピング力が劣化する。また, 粒径が小さくなるとブラウン運動による変位が大きくなりトラップは不安定になり, さらに粒子に作用する放射圧自体も小さくなることが報告されている^{18,29,30)}。

二次元的トラップは, 両レーザー光に対してUO₂粉末以外の全ての粉末で観察された。しかしUO₂粉末はレーザー光との間に常に斥力が作用して, 粉末はビーム中心軸から外側に押し出された。これは言うまでもなく, UO₂の高い表面での反射率と内部での吸収が原因である。次に, 三次元的トラップについてみると, 本実験で使用した試料の範囲では, それらの屈折率が大きくなるとトラップが困難になる傾向が確認され

た。また, アルゴンイオンレーザーとヘリウムネオンレーザーのトラッピング性能を比べると, アルゴンイオンレーザー光を照射した場合には, 屈折率が1.7程度の粉末まで, ヘリウムネオンレーザー光を照射した場合には, 屈折率が2.2程度のCeO₂粉末まで可能であり, ヘリウムネオンレーザーの方が良好であった。これは酸化物は可視域の長波長側の光に対して, 吸収や反射率が小さくなる傾向にあるためと考えられる。直径7μmの透明なポリスチレン粒子に対するトラッピング性能を両レーザー光で比較したところ, 両者にほとんど差は見られなかった。また, 本実験では粒子の粒径や形状が1つ1つ異なるため, トラッピング力の定量的な解析には至らなかった。

4. 幾何光学モデルによるシミュレーション解析

4.1 Q値

レーザー光によるトラッピング特性の指標として, 無次元数Q値¹⁸⁾が用いられる。パワーP[W]のビームが屈折率nの媒質中を伝播する際に有する放射圧は nP/c [N]であり, この放射圧により物体にF[N]の力が作用したとするとQ値は次式のように定義される。

$$F = Q \frac{nP}{c} \quad (1)$$

Fig. 3 Values of q_s and q_g as a function of an incident angle of a single ray of $\lambda = 633\text{nm}$ for a ThO_2 particle of $d = 2\mu\text{m}$.

Fig. 4 Values of q_s and q_g as a function of an incident angle of a single ray of $\lambda = 633\text{nm}$ for a UO_2 particle of $d = 2\mu\text{m}$.

となる。ただし、 r は粒子の半径、 λ は光線の波長、 k は粒子の消衰係数を表す。粒子に入射する前の光線の運動量は、 s 方向が P 、 g 方向が O である。文献20と同様にして、 s 、 g 方向に働く力積を計算すると

$$P_s = P + PR \cos 2\theta - PT^2 X \frac{\cos(2\theta - 2\phi) + RX \cos 2\theta}{1 + R^2 X^2 + 2RX \cos 2\phi} \quad (10)$$

Fig. 5 $Q_{\min}$ of particles of $d = 2\mu\text{m}$ as a function of their complex index of refraction.

Fig. 6 $Q_{\min}$ of particles of $d = 10\mu\text{m}$ as a function of their complex index of refraction.

$$P_g = -PR \sin 2\theta + PT^2 X \frac{\sin(2\theta - 2\phi) + RX \sin 2\theta}{1 + R^2 X^2 + 2RX \cos 2\phi} \quad (11)$$

が得られる。ここで、 s 方向に働く力は散乱力と呼ばれトラップを不安定にする一方、 g 方向に働く力は勾配力と呼ばれトラップの安定に寄与する。さらに、入射光の持つ放射圧のうち、粒子に働く力の割合はそれぞれ次のようになる。

$$q_s = \frac{P_s}{P} = 1 + R \cos 2\theta - T^2 X \frac{\cos(2\theta - 2\phi) + RX \cos 2\theta}{1 + R^2 X^2 + 2RX \cos 2\phi} \quad (12)$$

$$q_g = \frac{P_g}{P} = -R \sin 2\theta + T^2 X \frac{\sin(2\theta - 2\phi) + RX \sin 2\theta}{1 + R^2 X^2 + 2RX \cos 2\phi} \quad (13)$$

4.3 計算結果

Fig. 3, 4に水中での ThO_2 粒子と UO_2 粒子の q_s と q_g の入射角依存性を示す。 ThO_2 粒子の結果は透明粒子の結果²⁰⁾とほぼ同様であり、高入射角で入射した光線が粒子に大きな力を及ぼすことが分かる。一方、 UO_2 粒子は大きな消衰係数を持ち、表面での反射率と内部での吸収が大きい。この結果、トラッピングの安定に寄与する q_g よりも、粒子を前方に押し出す成分 q_s の方が大きくなっている。ビーム全体が粒子に及ぼす力積や $Q_{\min}$ は、各々の光線が粒子に及ぼす力積を、それらの入射角と強度分布、さらには粒子とビーム焦点の位置関係を考慮してビーム全体で積分することにより求められる。

Fig. 5, 6に粒径が $2\mu\text{m}$ と $10\mu\text{m}$ の球形粒子の $Q_{\min}$ の屈折率と消衰係数の依存性を示す。なお、入射波長は 633nm 、対物レンズの入射瞳の有効径は実験条件と合わせて 4.9mm として計算した。幾何光学モデルによれば、透明粒子の場合には $Q_{\min}$ は粒径に依存しないが、吸収を考えると粒径の大きな粒子ほどトラッピング効率は低下している。また、 $k < 10^{-3}$ の場合には $n_p = 2.4$ の粒子まで理論的には3次元的トラップが可能であることもこれらの結果から見て取れる。Table Iにまとめた入射波長が 600nm 前後の各金属酸化物の光学定数をこのシミュレーション結果に当てはめると、ヘリウムネオンレーザー光を用いた場合の実験結果と良く一致していることがわかる。さらに、 UO_2 粒子と ThO_2 粒子の3次元的トラップ挙動の違いもFig. 5から説明される。

5. まとめ

アルゴンイオンレーザー光とヘリウムネオンレーザー光を用いて、種々の金属酸化物粉末の水中でのトラップ実験を行い、それらの光学定数のトラッピング特性に及ぼす影響を調べた。二次元的トラップは、吸収の大きな UO_2 粉末以外の全ての粉末で可能であった。一方、三次元的トラップは、ヘリウムネオンレーザー光を用いた場合には屈折率が2.2程度の CeO_2 粉末まで観察されたが、アルゴンイオンレーザー光を用いた場合には、トラッピング性能は低下した。これ

は、短波長の光に対しては、試料の吸収係数が大きくなるためである。また、幾何光学理論に基づき、吸収を持つ粒子の Q 値を計算し、三次元的トラップが可能である粒子の複素屈折率の範囲を決定した結果、実験結果と良く一致した。

本研究の解析では粉末の非球形性や光学的非等方性による結晶粒界での散乱等を考慮していない。また、粒子の熱運動を考慮していないことや数ミクロン程度の粒径の粒子の光散乱への幾何光学理論の適用妥当性に注意が必要である。粒径が数ミクロン程度の球形透明粒子に対する Q 値の実験値と幾何光学理論に基づく理論値の相違については文献29, 30を参照されたい。

参 考 文 献

- 1) A. Ashkin: Phys. Rev. Lett. **24** (1970) 156.
- 2) A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm and S. Chu: Opt. Lett. **11** (1986) 288.
- 3) K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura and H. Masuhara: Appl. Phys. Lett. **60** (1992) 807.
- 4) G. Roosen and C. Imbert: Opt. Commun. **26** (1978) 432.
- 5) S. Sato, Y. Harada and Y. Waseda: Opt. Lett. **19** (1994) 1807.
- 6) 佐藤俊一, 原田康則, 早稲田嘉夫: 光学 **24** (1995) 40.
- 7) K. Svoboda and M. Block: Opt. Lett. **19** (1994) 930.
- 8) 増原極微変換プロジェクト編: マイクロ化学 (化学同人, 1993) 第2章.
- 9) S. Sato and H. Inaba: Elect. Lett. **28** (1992) 286.
- 10) S. Sato and H. Inaba: Opt. Lett. **19** (1994) 927.
- 11) G. Gouesbet, B. Maheu and G. Gréhan: J. Opt. Soc. Am. A **5** (1988) 1427.
- 12) K. F. Ren, G. Gréhan and G. Gouesbet: Opt. Commun. **108** (1994) 343.
- 13) K. F. Ren, G. Gréhan and G. Gouesbet: Appl. Opt. **35** (1996) 2702.
- 14) J. P. Barton, D. R. Alexander and S. A. Schaub: J. Appl. Phys. **64** (1988) 1632.
- 15) J. P. Barton, D. R. Alexander and S. A. Schaub: J.

- Appl. Phys. **66** (1989) 4594.
- 16) J. P. Barton and D. R. Alexander: J. Appl. Phys. **66** (1989) 2800.
- 17) L. W. Davis: Phys. Rev. **19** (1979) 1177.
- 18) W. H. Wright, G. J. Sonek and M. W. Berns: Appl. Phys. Lett. **63** (1993) 715.
- 19) G. Roosen, B. F. S. Louvent and S. Slansky: Opt. Commun. **24** (1978) 116.
- 20) A. Ashkin: Biophys. J. **61** (1992) 569.
- 21) 一ノ瀬昇, 平野眞一: 光機能性材料セラミクス(ファインセラミクステクノロジーシリーズ, オーム社, 1988), p.6
- 22) H. Misawa, M. Koshioka, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara: J. Appl. Phys. **70** (1991) 3829.
- 23) G. サムソノフ監修: 最新酸化物便覧(新日本鑄鍛造協会, 1978) p.231.
- 24) F. Gervais: in *Handbook of Optical Constants of Solids II* ed. E. D. Palik (Academic Press, INC, 1991) p.770.
- 25) H. M. Liddell: J. Phys. D **7** (1974) 1588.
- 26) G. Hass, J. B. Ramsey and R. Thun: J. Opt. Soc. Am. **48** (1954) 324.
- 27) M. W. Ribarski: in *Handbook of Optical Constants of Solids I* ed. E. D. Palik (Academic Press, INC, 1985) p.800.
- 28) R. J. Ackermann, R. J. Thorn and G. H. Winslow: J. Opt Soc. Am. **49** (1959) 1107.
- 29) W. H. Wright, G. J. Sonek and M. W. Berns: Appl. Opt. **33** (1994) 1735.
- 30) R. Omori, T. Kobayashi, S. Miyamoto and A. Suzuki: Optical Review **3** (1996) 11.