

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：12501

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15058

研究課題名（和文）光渦が創るソフトマテリアル内部へのカイラル構造体形成

研究課題名（英文）Formation of chiral structures inside soft materials created by optical vortices

研究代表者

豊田 耕平（TOYODA, Kohei）

千葉大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：40740212

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：金イオン添加したハイドロゲルに光渦を照射することで、光渦の螺旋波面を記録したカイラル構造体が形成されることを発見した。この金構造は光渦の次数に伴った構造を持っており、回転方向を制御できる。この構造体に対して、ガウス光を照射することで、記録に用いた次数の光渦に変換できることを明らかにした。

ハイドロゲル内部にカイラル構造体を形成し、さらに光渦の波面記録と再生を可能とする新機能を付与することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

螺旋波面を有した光である光渦を金イオン添加したソフトマテリアル内部に照射することで、螺旋状に析出した新奇カイラル金構造体の形成に成功した。この構造体は形成に用いた光渦の波面を記録し再生できる、という全く新しい付加価値をもった、ソフトカイラルデバイスである。光渦の次数によって螺旋構造が反転するキラリティを有し、またガウス光によって再生される光渦もまた形成に用いた光渦に回答した次数を有する。生体内における光渦再生など、ドラッグデリバリーなどへの応用も期待される。

研究成果の概要（英文）：By irradiating gold ion-doped hydrogels with optical vortices, we found that chiral structures are formed that record the spiral wavefronts of the optical vortices. This gold structure has a structure associated with the order of the optical vortex, and the direction of rotation can be controlled. By irradiating this structure with Gaussian light, it was found that it can be converted to the optical vortex of the order used for recording. They succeeded in forming a chiral structure inside the hydrogel, and furthermore, gave it a new function that enables wavefront recording and playback of the optical vortex.

研究分野：光物質相互作用

キーワード：軌道角運動量 光渦 ハイドロゲル 光と物質の相互作用

1. 研究開始当初の背景

光渦は偏光に依存しない螺旋波面に起因した位相特異点と円環状強度分布を有する光の総称である(図1)。その代表例に円筒座標系における近軸の固有解であるラゲールガウスモードがある[Allen, et. al., 1992]。螺旋波面を持つ光渦の輻射力の一部は円環状強度分布の周回方向に沿って現れる。申請者は「光渦レーザーを用いたカイラル構造体の創成と制御」について研究を行ってきた。光渦を金属に照射した際に、金属はアブレーションを介することによって、軌道角運動量を受け取り、挟じれた表面を持つカイラル構造体を形成する。そしてそのカイラリティは軌道角運動量の符号と完全に一致する。[K.Toyoda, et. al., 2011,2012]

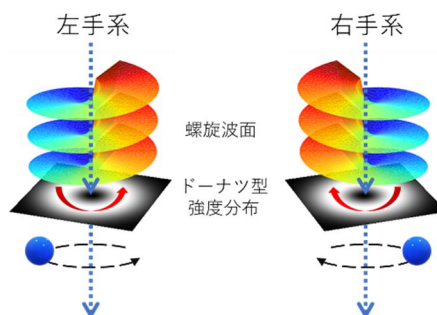


図1 光渦の等位相面と強度分布の模式

さらに、光の角運動量には円偏光に由来するスピン角運動量がある。軌道角運動量とスピン角運動量の総和は全角運動量と呼ばれ、構造体上に現れる螺旋の周波数を全角運動量によって制御できることを世界で初めて発見した。この成果はレーザー加工によって螺旋構造体の形成、制御はできないという従来の常識を完全に覆した。このような構造体を、現在までに金や銅、タンタルなどの金属類、シリコンのような半導体において形成し、様々な固体材料に対し、後天的にカイラリティを付加することに成功している。

しかし、光渦によって金属基板上に形成されたカイラル構造体のようなソフトマテリアルに対してカイラル構造体を形成し、光学活性機能を与えたという先行研究例はない。仮に、既に存在するソフトマテリアルにカイラル構造体の構築を行うことができるならば、既存のゲルに円二色性を新たに付加した全く新しいタイプのカイラルゲルの開発や、光渦波面の記録デバイス、生体組織内にカイラル分子を効率的に配置、輸送、配向することが可能な近接場プローブへの応用が可能である。さらにカイラル構造体の材質によって、吸収スペクトルや円二色性のような光学性能、剛性や膨潤性のような力学性能などソフトマテリアルの物性自体も自由に制御できる可能性がある。「光渦はソフトマテリアルにカイラル構造体を形成し、新たなカイラルソフトデバイスを創成できるのか。」この学術的問いに対して、本研究ではソフトマテリアルの代表例でもあるハイドロゲルに対して金属イオンを添加し、光渦超短パルスレーザーを用いた光還元反応を介することで、ハイドロゲル内部に新奇カイラル構造体形成を行い、物性評価を行うことで明解な解を与える。

2. 研究の目的

カイラルソフトデバイスへの応用の検証として、本研究では光渦波面の再生デバイスについての応用が可能かどうか検証した。微小領域における角運動量制御は様々な手法で研究が進められている。中心対称に偏光方位を持つ液晶分子や、螺旋構造を持ったポリマータイプの微小球などがあげられるが、これらは局所的に光渦を発生させることが可能であるが、生体適合性はなく、ドラッグデリバリーなどへの応用は困難であった。そこで本研究では、ソフトマテリアルの一つであるハイドロゲルに着目した。ソフトマテリアルは多量の水をその構造内に保持でき、生体シミュレーターとして着目されている材料である。ハイドロゲル内に金イオンを添加し、光渦によって誘起した光還元反応によって金粒子を析出させることで、新たなソフトデバイスとしての応用が可能か検証することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、ハイドロゲルとして、Polyethylene Glycol Diacrylate(PEGDA) PEGDA(分子量 6000, 0.2mg)、重合開始剤 Irgacure2959 (0.02mg)、超純水(2ml)からなる溶液をシリコンモールド(10mm×10mm×2mm) (図2(a))に流し込み、紫外線を2時間照射して架橋させてハイドロゲルを調整した(図2(b))。さらに、塩化金(III)水溶液をハイドロゲルに浸漬させることで金イオン添加し、試料として用いた。

本研究の実験光学系を図3に示す。光源には、波長 532 nm、繰返し周波数 49.6MHz、パルス幅 10 ps のレーザーを使用した。レーザー照射によって金イオンは二光子吸収過程を経た光還元反応によって、金粒子として析出する。レーザー光を 1/4 波長板(QWP)によって円偏光にした後、液晶偏光スパイラルプレート(Q-plate)によって円偏光光渦とし、2枚目の 1/4 波長板(QWP)によって直線偏光 1 次光渦に変換した。発生した光渦は、対物レンズ(×5)でハイドロゲル中へ集光照射した。照射パワーは 15mW とし、30秒照射した。

照射の際、透過光は照射する光渦のトポロジカルチャージに応答した回転運動を見せる。これはハイドロゲル内部で屈折率変化が生じていることを示している。
螺旋波面の再生評価として、再度の光還元反応を防ぐため、2mW まで減光したガウス光を、同じ場所に照射して、透過光の波面や干渉縞を測定した。

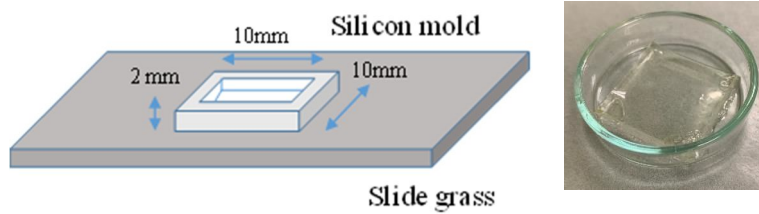


図2 ハイドロゲルの調整
(a) ゲルを形成するモールド (b) 形成されたハイドロゲル

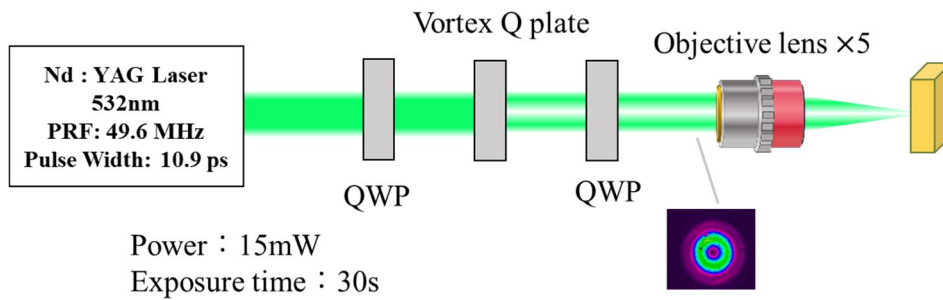


図3 実験光学系

4. 研究成果

4.1 研究成果詳細

図4に金イオン添加ハイドロゲルに光渦を照射した痕を光学顕微鏡によって横から観測したものと照射方向から観測したものを図4に示す。金はハイドロゲルに対して屈折率が低いためガウス光は発散する。しかしながら、光渦の場合、円環状の強度分布を示すため、特異点付近がソリトンとしてまっすぐ伝搬する。さらに照射方向からの観測では円環状の析出が見られた。析出部は金イオンのプラズモン共鳴によって、赤くなる。この構造体は透過方向にスキャンして観測すると濃部が螺旋状に回転していることを確認した。この析出部に、ガウスビームを照射し、透過光と干渉縞を観測した様子が図5である。

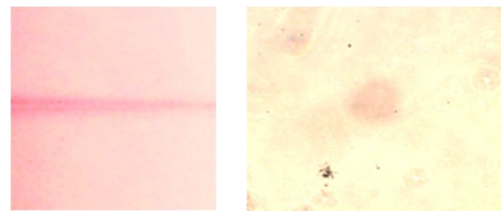


図4 照射痕
(左 側面方向、右 照射方向)

ゲル通過前のガウス光は縦方向の干渉縞を持つことが確認できるが、透過光は特異点が脇にずれた円環状の強度分布を持つことが確認できた。これは光渦とガウス光の混合波の特徴であり、その証明に得られた自己干渉像は光渦の特徴である分岐が見られた。

これらのことより、光渦によって形成された金析出部を通過することによって、入射したガウシアンビームが光渦に変換されたことを意味する。ハイドロゲルと金の屈折率の差があることから、ハイドロゲル内部には3次元的な屈折率の螺旋状秩序が形成されていることが期待される。

さらに、次数の異なる光渦によってカイラル構造体を形成し、光の波面記録について検討した。カイラル構造体を形成する光渦のトポロジカルチャージは $\ell = \pm 1$ とした。

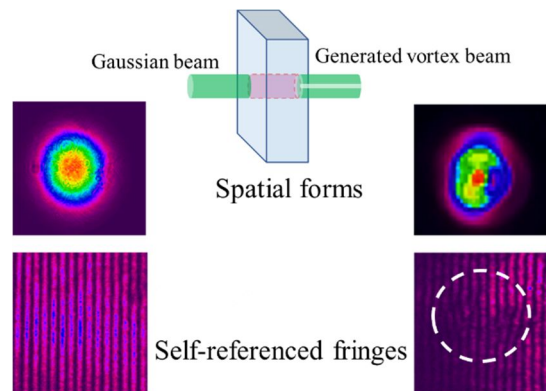


図5 カイラル構造体にガウス光を照射した際の干渉縞

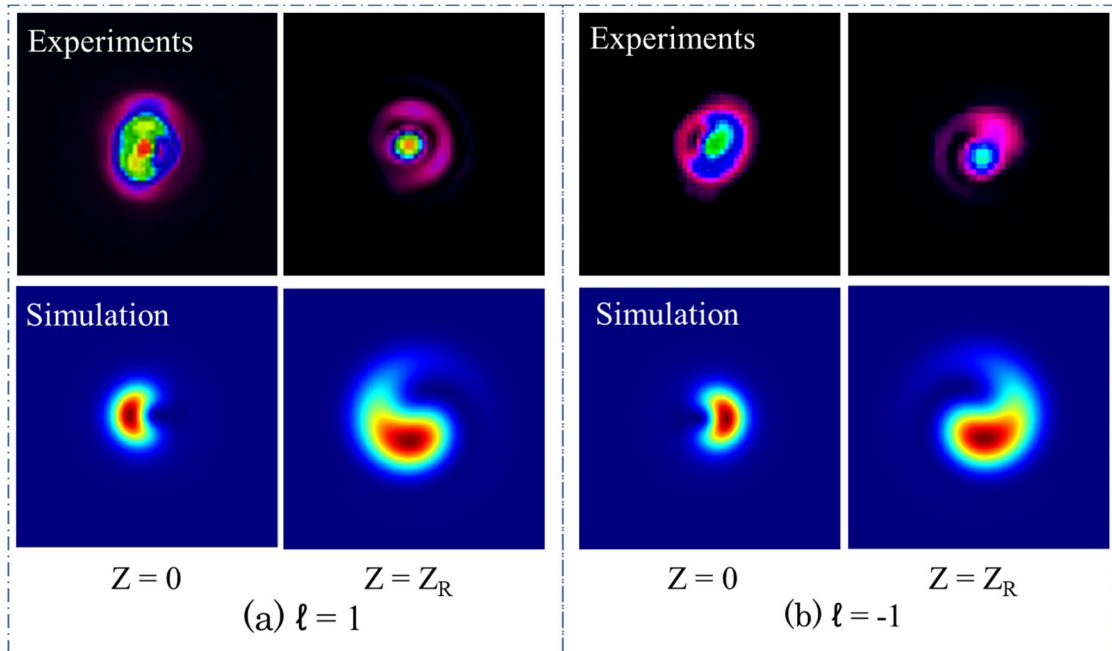


図6 次数の異なる光渦によってカイラル構造体を形成し、
 ガウス光を照射した際の光伝搬

トポロジカルチャージの符号を変えた光渦によってらせん構造を形成し、ガウス光を入射、集光した際の伝搬を測定した実験結果を図6 (a) (b)の上部に示す。Z=0 は集光位置、Z=Z_r はレイリー長である。形成に用いた光渦のトポロジカルチャージの正負による結果を比較する。Z=0 におけるビームの特異点の位置ずれ、Z=Z_rにおける捻れた強度分布が反転している。これはガウスと光渦の球面波干渉した時に見られる構造であり、入射したガウス光の一部が光渦に変換されることが期待される。

ガウスと光渦の正確な混合比率を出すためには、液晶空間光変調器などを用いて非整数の光渦をガウスに変調することが必要になるため、現環境では難しい。そこで、本課題では、ガウスと光渦の球面波干渉の式を用いてシミュレーションを行った。

$$u(r, \phi, z) = u_{0,0}^{LG} \cos\theta(r, \phi, z) \cdot \exp(-k\sqrt{r^2 + z^2}) + u_{0,\pm 1}^{LG} \sin\theta(r, \phi, z) \cdot \exp\left[\mp i \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)\right] \cdot \dots (1)$$

ここで、 $u_{p,\ell}^{LG}(r, \phi, z)$ は光渦の複素振幅であり、 $p=\ell=0$ はガウス光を示し、 $p=0, \ell=1$ は一次の光渦を示す。 k は波数である。この比率を0.5として計算したものをシミュレーションしたものを図6の下部に示す。シミュレーション結果は実験値とよく一致していることがわかった。

4.2 まとめ

本研究では螺旋波面を有した光渦を金イオン添加したソフトマテリアル内部に照射することで、螺旋状に析出するという新奇カイラル構造体の形成に成功した。この構造体は形成に用いた光渦の波面を記録し再生できる、という全く新しい付加価値をもった、ソフトカイラルデバイスである。光渦の次数によって螺旋構造が反転するキラリティを有し、またガウス光によって再生される光渦もまた形成に用いた光渦に応答した次数を有する。光渦の再生効率率は0.5程度と見積もられる。

今後は様々な材料を用いてカイラル構造体を形成し、変換効率向上の検証を行い、それを数値的に解析することを目指す。さらに今回ハイドロゲルとして選択したPEGDAを、温度応答やpH応答性のゲルに変えることで、後天的にカイラル構造体の構造を可変できる機構の構築など、ソフトカイラルデバイスの新規応用について検討していく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ablimit Ablez, Kohei Toyoda, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu	4. 巻 13
2. 論文標題 Microneedle structuring of Silicon(111) by irradiation with picosecond optical vortex pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 062006-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ab8d4b	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

1. 著者名 Ablimit Ablez, Kohei Toyoda, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu	4. 巻 4
2. 論文標題 Nanotwist of aluminum with irradiation of a single optical vortex pulse	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 OSA Continuum	6. 最初と最後の頁 403-408
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/osac.417444	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Ablimit Ablez, Kohei Toyoda, Katsuhiko Miyamoto, Ryuji Morita, Takashige Omatsu
2. 発表標題 Silicon (111) chiral structures fabricated by the illumination of optical vortex
3. 学会等名 2020 SPIE Structured Light at OPIC, Optical Manipulation and Structured Materials (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Keigo Masuda , Taiki Yoshizawa , Junhyung Lee , Masataka Shinada , Yoshiko Okada-Shudo , Takeshi Murata , Kohei Toyoda , Katsuhiko Miyamoto , Takashige Omatsu
2. 発表標題 Spinning twin-mode generation in a bacteriorhodopsin suspension
3. 学会等名 2020 SPIE Structured Light at OPIC, Optical Manipulation and Structured Materials (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小池 涼雅, 高橋 定洋, 豊田 耕平, 宮本 克彦, 尾松 孝茂
2. 発表標題 生体適合性ポリマーへの光渦の螺旋波面記録
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (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
---------	---------