

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：33924

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14555

研究課題名（和文）サブサイクル中赤外超短パルスレーザーを用いた輻射力による光物質操作

研究課題名（英文）Optical manipulation by sub-cycle mid-Infrared pulsed lasers

研究代表者

工藤 哲弘（Kudo, Tetsuhiro）

豊田工業大学・工学（系）研究科（研究院）・講師

研究者番号：20768270

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：中赤外領域のレーザー光源を用いた輻射力による新しい光操作実験を遂行した。超短パルスレーザーを用いた実験計画からは予定を修正しているが、次に示す2つの成果を挙げることができた。1つ目として、中赤外量子カスケードレーザーを用いて、特定の分子振動を励起することで、その物質のみを選択的に光輸送できる機構を発見した。世界で初めての成果であり、分子構造に応じたクロマトグラフィーが可能になると期待される。2つ目は、中赤外ファイバーレーザーを用いた溶媒加熱による光熱トラップの技術を提案した。我々の手法では、水溶液中にレーザーを照射するだけで、溶媒内の微粒子等を局所的に濃縮させることができる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

クロマトグラフィーや電気泳動等の技術は、生体分子や化学薬品などを選別するために非常に重要な技術であり、様々な領域において利用されている。本研究では、レーザーの輻射力を利用することで、特定の分子構造を有する物質のみを選択的に光操作できることを世界で初めて示した。本中核と成る発見を更に展開、発展させることで赤外吸収スペクトルに応じた光クロマトグラフィーが可能になると期待される。

研究成果の概要（英文）：We conducted novel optical manipulation experiments using radiation forces with a mid-infrared laser source. Despite altering our initial plans that used an ultra-short pulse laser, we achieved two main results. First, we discovered a mechanism for optically transporting specific materials selectively by using a mid-infrared quantum cascade laser to excite certain molecular vibrations. This result paves the way for chromatography based on molecular structures. Second, we proposed a technique for opto-thermal trapping through solvent heating using a mid-infrared fiber laser. In our method, simply irradiating a laser into a water solution allows for the local concentration of microparticles.

研究分野：レーザー物理

キーワード：光マニピュレーション 中赤外レーザー 分子選別 赤外分光 光ピンセット

1. 研究開始当初の背景

光マニピュレーション(光操作)とは、光により物質に誘起される輻射力を利用してマイクロやナノサイズの微小物質を力学的に操作する技術のことである。図1(a)に示すように、近赤外レーザーを微粒に照射することで、光の運動量が微粒に乗り移り、微粒を光輸送することが出来る[1]。また、図1(b)のようにレーザーを溶液に集光することで、勾配力で微小物質をトラップすることが出来る[2]。この技術は光ピンセットとして知られており、2018年にノーベル物理学賞に選ばれている。これらの光操作の研究は、生物学や化学、物理などの様々な分野で活用されてきたが、物質に対して透明な近赤外領域の連続光レーザーを利用することが一般的であった。

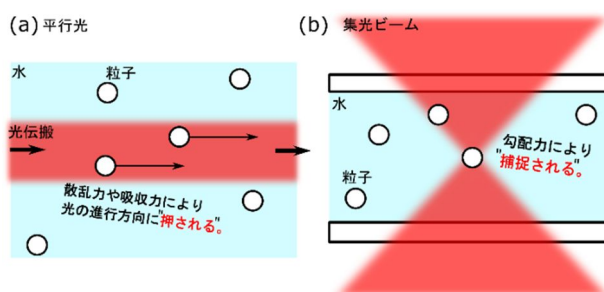


図1 (a)レーザーによる粒子の光輸送。(b)集光レーザーによる光トラップ。

2. 研究の目的

本研究では、(1)電場一周期に満たないサブサイクルパルスレーザーを用いた新しい光マニピュレーションを理論的に及び実験的に提案することが当初の目的であった。また、(2)中赤外レーザーによる、分子振動準位励起に基づく、物質の赤外スペクトルに応じた分子種の選択的光操作技術を創出することも当初の目的であった。本研究では、一年目の理論計算により、1つ目の目的が困難であることが原理的に明らかとなったため、2つ目の選択的光操作技術に注力した。また(3)副次的に発見した光熱トラップの成果についても以下で説明する。

3. 研究の方法

(1)時間振動項を残した輻射力の理論計算

超短光パルスレーザーにより、瞬時的に物質に印加される輻射力の計算を行った。従来の表式は時間平均した式を利用することが一般的であったため、元のローレンツ力の式に戻り、時間依存する輻射力の式を導出して、一サイクルに満たないパルスを用いた輻射力の計算を行った。

(2)中赤外エバネッセント波による微粒子の選択的輸送に利用した実験系

中赤外量子カスケードレーザーをプリズム表面で全反射させることで、エバネッセント波が生じる。溶液サンプルの赤外分光を行う際にも同じ光学配置を利用される。このエバネッセント波により、微粒子が光の進行方向に輸送される。操作対象の微粒子にシリカとポリスチレンを用いた。利用するレーザーの波数は 1075cm^{-1} であり、シリカを構成するシロキサン結合(Si-O-Si)の分子振動を励起することができる。微粒子の様子は、プリズム上部より、典型的な顕微鏡を利用した観察した。

(3)光熱トラップに利用した実験系

$2\mu\text{m}$ 帯の赤外ファイバーレーザーを導入した倒立型顕微鏡を作製した。水の分子振動に共鳴する $2\mu\text{m}$ のレーザーを利用することで、集光点を局所加熱することができ、その温度勾配を利用した微粒子の光トラップ実験を遂行した。

4. 研究成果

(1)時間振動項を残した輻射力の理論計算

理論計算を始める前の当初の予測としては、電場波形が一周期も無い場合、普段時間的に平均すると相殺する項が残ると予想した。しかし、実際に計算を行ったところ、結果として、電場の位相項だけでなく包絡線項の影響により、サブサイクルであっても期待していた項が相殺することがわかった。実験に移行しても成果が得られる見通しが立たなくなったので、サブサイクルによる実験計画は中断している。一方で平行して、実験目的(2)の分子振動共鳴効果を利用した中赤外領域のレーザーによる光マニピュレーションの実験にも着手しており、以下の(2)と(3)で有望な成果が得られたのでそれらを紹介する。

(2)中赤外エバネッセント波による微粒子の選択的輸送実験

波長 $9.3\mu\text{m}$ (波数 1075cm^{-1})の中赤外量子カスケードレーザーを用いて、シリカ微粒子の振動モード(シロキサン結合として知られている Si-O-Si の非対称伸縮振動、図 2(b)のシリカの青太線参照)を励起し、ポリスチレン微粒子と混合した溶液から、シリカのみを選別する機構を世界で初めて発見した。図 2(a)の光学系に示すように、レーザーがプリズム表面で全反射することでエバネッセント波が発生し、その波によってシリカ粒子が光の進行方向に押され輸送される(実証試験の結果、図 2(c-e)参照)。有限差分時間領域法(FDTD 法)を用いた輻射力の理論計算とも良く一致し、シロキサン結合(Si-O-Si)を有した物質を選別できる新しいクロマトグラフィーの機構を世

界で初めて示した[3]。中赤外レーザーを用いた輻射力の実験自体が世界的にも報告事例が全くなかった独自の試みである。今後は、この原理の汎用性や適用性を示すために、さらなる研究を行い分子構造に応じた中赤外輻射カクログラフィー技術を創出する。

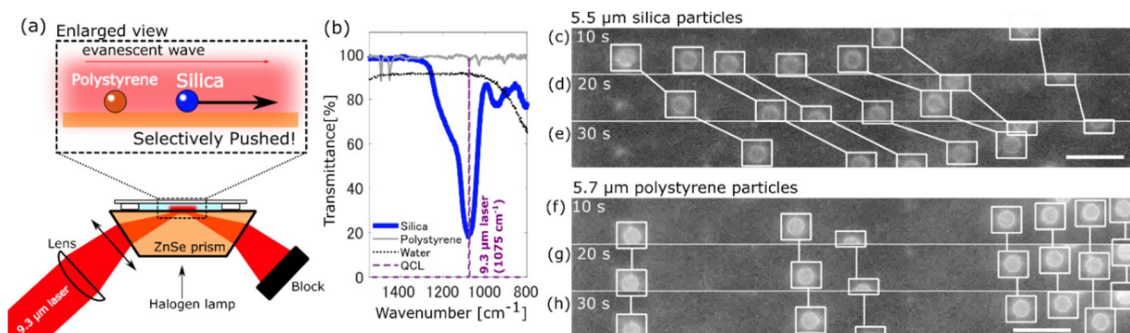


図 2 (a)9.3 μm 中赤外レーザーによるシリカ微粒子の光輸送実験。プリズム表面で光が全反射することでエバネッセント波が生じる。(b)シリカ、ポリスチレン、水の赤外透過スペクトル。(c-e)5.5 μm シリカ微粒子と(f-h)5.7 μm ポリスチレン微粒子の光輸送の経時変化。白いスケールバーの長さは 10 μm である。

(3)2 μm 帯の赤外ファイバーレーザーによる光熱トラップ

近年、様々な機構を用いた光熱トラップの研究が進められており、医療検査技術への応用が期待されている。例えば、血中等の腫瘍由来の核酸を高濃度に、局所的に集めることが出来れば検査を高速化させることができる。最近では、金属ナノ構造体を利用した可視や近赤外レーザーによる局所加熱法に基づいた光熱トラップの研究が活発化している。つまり、金属ナノ構造体のエッジ近傍をレーザーで加熱し、間接的に溶媒を加熱する手法である。我々は以下で示すように、金属構造体なしで、水分子の振動モードを励起する直接加熱法を提案している[4]。図 3 は、2 μm 帯の赤外ファイバーレーザーにより、水を直接加熱しその温度勾配を利用して微粒子を捕捉した様子である。レーザーを切ると微粒子が再分散していることがわかる。また、重水に変えることでトラップできないことから、熱が起因していることがわかる。従来にも直接加熱法の先行研究は存在していたが、水の吸収係数が小さい 1.4~1.5 μm 帯のレーザーが利用されてきた。今後は、水の吸収係数が高い 3 μm 帯のレーザーを開発するところから着手し、効率的な光熱トラップの実験を進める予定である。上述の成果以外にも、海外との共同研究で複数の研究成果を学術誌に発表している。

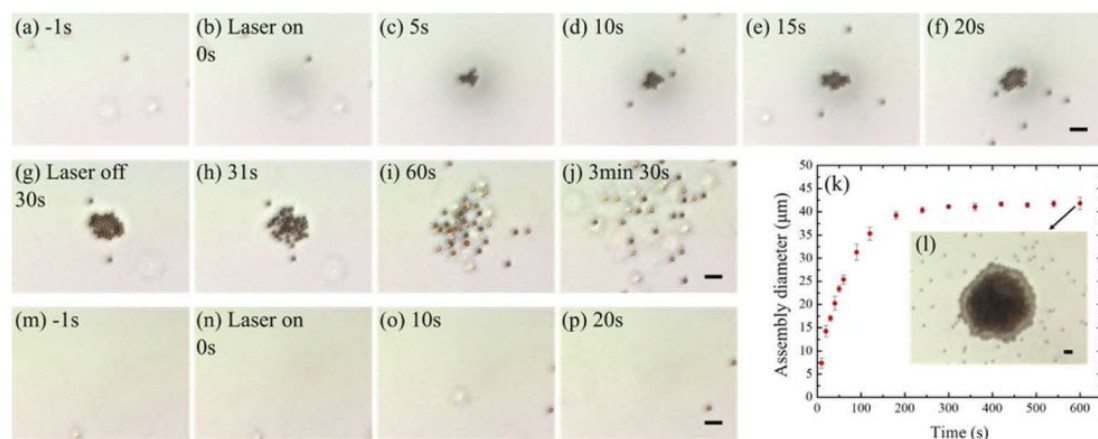


図 3 (a-j)微粒子が捕捉され集合体を形成する経時変化。倒立顕微鏡で透過像を取得している。(m-p)重水を溶媒に利用した場合の経時変化。(k)長時間照射したときの集合体の直径。

< 引用文献 >

- [1] A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **24**, 156 (1970).
- [2] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm, and S. Chu, Opt. Lett. **11**, 288 (1986).
- [3] A. Statsenko, Y. A. Darmawan, T. Fuji, T. Kudo, Phys. Rev. Appl. **18**, 054041 (2022).
- [4] R. Mamuti, T. Fuji, T. Kudo, Opt. Exp. **29**, 38314 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 6件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Statsenko Anna, Darmawan Yoshua Albert, Fuji Takao, Kudo Tetsuhiro	4. 巻 18
2. 論文標題 Midinfrared Optical Manipulation Based on Molecular Vibrational Resonance	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 54041
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevApplied.18.054041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Huang Chih-Hao, Louis Boris, Bresol-Obach Roger, Kudo Tetsuhiro, Camacho Rafael, Scheblykin Ivan G., Sugiyama Teruki, Hofkens Johan, Masuhara Hiroshi	4. 巻 13
2. 論文標題 The primeval optical evolving matter by optical binding inside and outside the photon beam	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5325
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-33070-w	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 該当する
1. 著者名 Chang Yu Chia, Bresol Obach Roger, Kudo Tetsuhiro, Hofkens Johan, Toyouchi Shuichi, Masuhara Hiroshi	4. 巻 10
2. 論文標題 The Optical Absorption Force Allows Controlling Colloidal Assembly Morphology at an Interface	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2200231 ~ 2200231
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adom.202200231	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Mamuti Roukuya, Fuji Takao, Kudo Tetsuhiro	4. 巻 29
2. 論文標題 Opto-thermophoretic trapping of micro and nanoparticles with a 2 μ m Tm-doped fiber laser	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 38314 ~ 38323
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.440866	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 Huang Chih-Hao, Kudo Tetsuhiro, Sugiyama Teruki, Masuhara Hiroshi, Hofkens Johan, Bresol-Obach Roger	4. 巻 125
2. 論文標題 Photon Momentum Dictates the Shape of Swarming Gold Nanoparticles in Optical Trapping at an Interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 19013 ~ 19021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c06004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yi Po-Wei, Chiu Wei-Hsiang, Kudo Tetsuhiro, Sugiyama Teruki, Bresol-Obach Roger, Hofkens Johan, Chatani Eri, Yasukuni Ryohei, Hosokawa Yoichiroh, Toyouchi Shuichi, Masuhara Hiroshi	4. 巻 125
2. 論文標題 Cooperative Optical Trapping of Polystyrene Microparticle and Protein Forming a Submillimeter Linear Assembly of Microparticle	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 18988 ~ 18999
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c05796	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kamit Abdullah, Tseng Ching Shiang, Kudo Tetsuhiro, Sugiyama Teruki, Hofkens Johan, Bresol Obach Roger, Masuhara Hiroshi	4. 巻 69
2. 論文標題 Unraveling the three dimensional morphology and dynamics of the optically evolving polystyrene nanoparticle assembly using dual objective lens microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Chinese Chemical Society	6. 最初と最後の頁 120 ~ 132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/jccs.202100275	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Bresol-Obach Roger, Kudo Tetsuhiro, Louis Boris, Chang Yu-Chia, Scheblykin Ivan G., Masuhara Hiroshi, Hofkens Johan	4. 巻 8
2. 論文標題 Resonantly Enhanced Optical Trapping of Single Dye-Doped Particles at an Interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 1832 ~ 1839
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.1c00438	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 該当する

[学会発表] 計10件(うち招待講演 0件/うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Roukuya Mamuti, Takao Fuji, Tetsuhiro Kudo
2. 発表標題 2 μm Tm-doped fiber laser trapping of colloidal particles by temperature gradient
3. 学会等名 Optical Manipulation Conference(OMC) 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Roukuya Mamuti, Takao Fuji, Tetsuhiro Kudo
2. 発表標題 Direct trapping of micro particles with a 2 μm Tm-doped fiber laser
3. 学会等名 CLEO-Pacific Rim 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Chih-Hao Huang, Ya-Chiao Lee, Teruki Sugiyama, Tetsuhiro Kudo, Xu Shi, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, Hiroshi Masuhara
2. 発表標題 Guiding the Expanding Direction of Optically Evolved Swarming of Gold Nanoparticles by Lithographically Fabricated Gold Nanodisks
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yoshua Albert Darmawan, Takuma Goto, Anna Statsenko, Taiki Yanagishima, Takao Fuji, Tetsuhiro Kudo
2. 発表標題 Selective mid-infrared optical manipulation based on molecular vibrational resonance
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第43回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Roukuya Mamuti, 清水 雅也, 藤 貴夫, 工藤哲弘
2. 発表標題 3 μ m Er:ZBLANファイバーレーザーを用いた熱泳動による光物質操作
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第43回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yoshua Albert Darmawan, Takuma Goto, Taiki Yanagishima, Takao Fuji, Tetsuhiro Kudo
2. 発表標題 Mid-Infrared Optical Sorting of Microparticles Composed of Si-O-Si Bonds
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Roukuya Mamuti, Takao Fuji, and Tetsuhiro Kudo
2. 発表標題 Opto-thermal trapping of micro and nanoparticles with a 2 μ m Tm-doped fiber laser
3. 学会等名 レーザー学会中部支部2021年度若手研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Anna Statsenko, 藤 貴夫, 工藤 哲弘
2. 発表標題 中赤外エヴァネッセンス波によるマイクロ微粒子の光輸送
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

1. 発表者名 Roukuya Mamuti, 藤 貴夫, 工藤 哲弘
2. 発表標題 Opto-thermal trapping by directly heating up the water solvent with a 2 μm Tm-doped fiber laser
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

1. 発表者名 Chih-Hao Huang, Boris Louis, Roger Bresol-Obach, Tetsuhiro Kudo, Rafael Camacho, Ivan G. Scheblykin, Teruki Sugiyama, Johan Hofkens, Hiroshi Masuhara
2. 発表標題 Optical Binding Outside the Focal Spot Leading to Swarming of Gold Nanoparticles
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

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 微粒子操作装置	発明者 工藤哲弘、藤貴夫	権利者 学校法人トヨタ学園
産業財産権の種類、番号 特許、2023-001829	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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			
ベルギー	Katholieke Universiteit Leuven			
ドイツ	Max Planck Institute			
スウェーデン	Lund University	University of Gothenburg		

共同研究相手国	相手方研究機関			
スペイン	Institut Quimic de Sarria			
その他の国・地域(台湾)	National Yang Ming Chiao Tung University			