

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成26年6月4日現在

機関番号：34310
研究種目：挑戦的萌芽研究
研究期間：2010～2014
課題番号：22654046
研究課題名（和文） 光子流束が誘起するマクロ系の自律運動
研究課題名（英文） Generation of macroscopic autonomous motion induced photon flux
研究代表者 吉川研一 (YOSHIKAWA, kenichi) 同志社大学・生命医科学部・教授 研究者番号：80110823
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）2,700,000円、（間接経費）420,000円

### 研究成果の概要（和文）：

本研究では、cm スケールの物体を可視光レーザーにより遠隔操作により搬送することを可能にするような、新規な方法論の確立を目指した。中でも、単一のグリーンレーザーを用いて、上方から、cm サイズの液滴を、照射させたときに生じる、自律運動について、新しい発見を行うことができた。レーザーの出力を上げていくと、微細なゆらぎの状態から、焦点を中心とする往復運動へとモード分岐する。更に出力を上げていくと、焦点のまわりの公転運動に分岐することを見出し、理論的にもそのメカニズムを明らかにすることができた。

### 研究成果の概要（英文）：

The purpose of the present study is to realize the transportation of cm-sized macroscopic object by using visible laser. As the most remarkable result, we have succeeded in generating an autonomous motion for a cm-sized oil droplet under constant irradiation of green laser. With the increase of laser power, the motion bifurcates from simple fluctuation to spinning motion, and then, orbital motion.

研究分野： 数理物理・物性基礎

科研費の分科・細目：数理物理・物性基礎

キーワード： レーザー光、マランゴニ効果、非平衡開放系、自律運動、界面張力勾配、光誘起相転移、遠隔操作、誘電ポテンシャル

### 1. 研究開始当初の背景

光によるマイクロ物体の補足・搬送については、現在では、集光レーザーによる光トラップが良く知られているが、これについては、1986-87年のAshkinによる細菌やウイルスのトラップ実験が最初である。それを遡る1975年に、Ashkinは1G(地表重力)の下で半径7 $\mu$ mの液滴(glycerol)の浮遊実験を報告している。この実験では、下方から上方に向かってレーザービーム(40mW)を照射し、液滴への光子流速の反跳効果により、空中に浮遊させることに成功している。これは光の運動量の約6%が8pNの浮遊力に転化したことを意味している。簡単な計算により、1Wの出力であっても、理論的な限界は1pN程度となることが分かる。集光レーザーによる光トラップにおいても、これ以上の力を発生させることは、現実の実験条件を考えると困難である。実際、レーザートラップでは高度に集光さ

せることが必要であり、発熱・蒸発や光損傷の問題が生じる。このため、レーザートラップ法でのマイクロ物体の捕束や搬送は、10 $\mu$ m程度が限界となっている。これに対して、本申請者らは、レーザーによって形成した界面張力の空間勾配の効果を利用すると、cm程度の物体を運動させることが可能であることを、相異なる3つの実験手法により明らかにしてきている。1) 光吸収による温度勾配の発生：水面上に浮遊するcmスケールの油滴に、気水界面に平衡に可視光レーザーを照射すると、液滴への照射部位を制御パラメータとすることにより、光の進行方向への並進運動(順泳動)や逆方向への運動(逆泳動)を引き起こすことを報告している。(Phys.Rev.E,2004など) 2) 光による有機分子の異性化反応：ジアゾベンゼンを側鎖にもつ界面活性分子存在下、可視光と紫外光により、液滴の併進運動の方向を、光の進行方

向とその逆方向の間で反転させることに成功した(*Angew.Chem.*2009 など)。3) 集光による誘電ポテンシャルによって誘起される液相の相転移: 臨界点近傍にある2成分均質液体に、レーザーを集光させると、誘電率の高い成分に富む相が焦点から湧き出る。このため、焦点近傍に液滴の自発的な並進運動が生じる。

## 2. 研究の目的

本申請者らが見出した、cm 物体の光誘起運動についての研究を飛躍的に発展させる。具体的には、1) 光吸収による温度勾配の発生: 液滴や固形物体について、2次元の運動面(水平面)の鉛直方向からレーザーを照射し、物体に運動をおこさせる系についての研究を進める。なお、予備的な実験により、自転・公転運動やラセン状の運動など、運動モードの間の分岐を引き起こすことを、すでに見出してきている。2) 光による有機分子の異性化反応: 光感受性の分子設計を、有機合成のグループとの共同研究により進め、より効率の高い光運動系を探索する。3) 集光による誘電ポテンシャルによって誘起される液相の相転移: 液相の容器やレーザーなどの空間対称性を変化させることにより、液滴の運動モードの分岐の制御を試みる(例えば、一方向の回転運動など)

## 3. 研究の方法

cm スケールの物体の光誘起運動についての研究を飛躍的に発展させる。申請者らが考案した、3つの実験手法についての研究を進めるとともに、理論的なモデル化を行い、研究を総合的に発展させる。

1) 光吸収が引き起こす温度勾配の発生による液滴の運動

cm スケールの油滴を水面上に置き、レーザーの局所照射による液滴の変形・運動を系統的に調べる。すでに予備的な実験を行い、液滴の重心は光照射位置の方向に並進運動をおこない、照射位置と重心が一致した状態で静止する。この状態で、レーザー照射位置を変化させると、2次元の平面上で液滴がレーザーに追従して運動する。この運動の機構は次のように考えられる。すなわち、レーザー照射部位近辺の温度の上昇した領域では、界面エネルギーが低下(界面張力が減少)する。液滴の重心付近にレーザーが照射されたときには、全体としては界面エネルギーの減少した面積が増大するため、液滴は系の自由エネルギーのより低い方向に移動する。興味深いことに、照射するレーザーの出力を増大させると、液滴はレーザー照射位置を中心に往復運動し、この運動は limit cycle 振動としての性質を示す。また、レーザーの照射角度を鉛直方向から変化させ斜め位置にとると、

液滴の回転運動を誘起することも可能となる。予備実験では、これらのことが現象としては、明らかになりつつあるが、その機構はまだ解明することは出来ていない。そこで、液滴近傍の温度分布と流体運動の同時計測を行うことにより、特定の運動モードの現れるメカニズムを解明することを目指す。さらに、多波長の個体レーザーシステムを本研究の設備費で購入し、波長を変化させることによる、運動モードの変化を調べる。この実験では、液滴に添加する色素を変化させ、それによる、液滴の幾何学的な温度分布を変化させ、運動に対する影響について系統的に調べる。

2) 光による有機分子の異性化反応を利用した液滴の運動制御

光の波長に依存して特異的な異性化反応を示す界面活性物質存在下での液滴の運動を調べる。液滴の運動方向を、光の波長により反転させることが可能となっている(*Angew. Chem.*, 2009)。そこで、液滴のサイズや光照射方式を変化させて、運動モードの分岐現象を系統的に調べることを計画している。また、上記の運動方向は、光によって引き起こされる系の自由エネルギー変化によって、定性的な説明は可能となつてはいるが、液滴近傍の流体運動など不明な点が多々残されている。運動のメカニズムの詳細を解明することが課題となっている。

3) 集光による誘電ポテンシャルによって誘起される相転移系

二成分からなる均一相の液体について、その相分離(一次相転移)の臨界点近傍の実験条件のもと、集光レーザーを照射すると、レーザーによる誘電ポテンシャルによって、相分離が引き起こされ、マイクロ液滴が湧き出てくる。二成分の組成に依存し、マイクロ液滴は焦点にトラップされ成長するモードか、あるいは、焦点から排除され遠方方向に併進運動を行い、その後消滅する(花火パターン)といったようなモードであるかの、いずれかの現象が観測される。このような実験系について、さらに水性二相分配系(二種の水溶性の高分子の混合系)などに研究を発展させる。

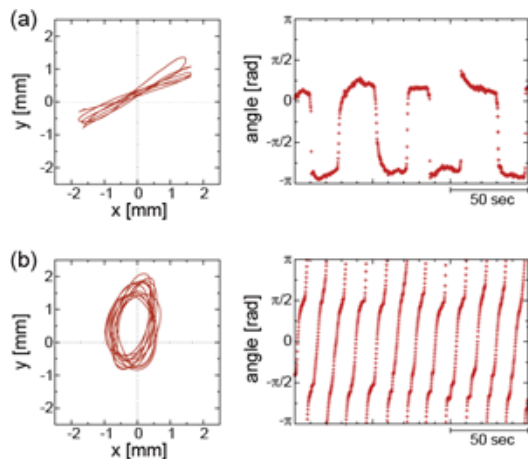
## 4. 研究成果

光子は運動量の運搬体でもあることから、光による物体の搬送についての研究は数多い。しかしながら宇宙空間を除くと、地球上で輸送可能な物体のサイズは、実質的には数十マイクロメートル程度が限界であった。本研究では、cm スケールの物体を可視光レーザーにより遠隔操作により搬送することのできる、新規な方法論の確立を目指した。具体的には、1) 光吸収による温度勾配の発生、2) 光による有機分子の異性化反応、3) 集光による誘電ポテンシャルによって誘起される液相の相転移(相分離)の、3つの異なる実

験手法について、本研究を3年間に渡って推進し、いずれも当初の予想を越えた成果が得られている。本年度は、その中でも、単一のグリーンレーザーを用いて、上方から、cmサイズの液滴を、照射させたときに生じる、自律運動について、新しい発見を行うことができた。レーザーの出力を上げていくと、微細なゆらぎの状態から、焦点を中心とする往復運動へとモード分岐する。更に出力を上げていくと、焦点のまわりの公転運動に分岐し、これらは、いずれも亜臨界型の、不連続かつ履歴のあるモード分岐の特徴を示す。

このような実験から見出した新しい型のモード分岐について、理論的な考察を勧めた。レーザー照射による局所的な温度の上昇と、それによる熱マランゴニ効果が引き起こす空間的運動の二つのパラメータを基本とする、連立微分方程式により、レーザーによって引き起こされる自律運動とそのモード分岐を説明することにも成功している。このように、cmサイズの物体をレーザーにより搬送し、さらには、自転・公転・往復運動などの多様なモードの運動を引き起こすことが、本萌芽研究により可能となった。以下には、得られた研究成果の中でも、最も重要と思われるものを中心に報告する。

液体基盤上に浮かべた液滴にレーザー光を照射して局所加熱することで、温度マランゴニ効果に駆動される液滴の運動を観測した。レーザー出力が十分に弱い時には液滴はほぼ静止した状態であり、まれに揺らぎによる



不規則な運動を示す。出力を上げていくと、液滴はレーザー照射位置を中心とした往復運動を示すようになり(図 1a)、さらに出力を上げていくと直線的な運動から回転運動に転化する様子が確認された(図 1b)。この時、液滴内部の対流を可視化することにより、往復運動が生じる際には左右対称のロール状対流が生じているのに対し、回転運動が生じる際には液滴内部の対流構造が自発的に左右非対称になっていることを見出した。また、温度勾配により生じる液滴内部の対流が運動に与える効果を考慮に入れた簡単な力学

モデルにより、運動モード変化の様相が定性的に再現された。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

Chwen-Yang Shew, Kenta Kondo, Kenichi Yoshikawa, "Rigidity of a spherical capsule switches the localization of encapsulated particles between inner and peripheral regions under crowding condition: Simple model on cellular architecture", 査読有, J. Chem. Phys., 140, 024907 (2014)

Tomo Kurimura, Masatoshi Ichikawa, Masahiro Takinoue, Kenichi Yoshikawa, "Back-and-forth micromotion of aqueous droplets in a dc electric field Phys". 査読有, Rev. E, 88, 042918/1-5 (2013)

Masatoshi Ichikawa, Fumi Takabatake, Keitaro Miura, Takafumi Iwaki, Nobuyuki Magome, Kenichi Yoshikawa, "Controlling negative and positive photothermal migration of centimeter-sized droplets" 査読有 Physical Review E, 88, 012403/1-8 (2013)

Ken Hirano, Tomomi Ishido, Yuko S. Yamamoto, Norio Murase, Masatoshi Ichikawa, Kenichi Yoshikawa, Yoshinobu Baba, Tamitake Itoh, "Plasmonic Imaging of Brownian Motion of Single DNA Molecules Spontaneously Binding to Ag Nanoparticles", 査読有, NANO LETTERS, 13, 1877-1882 (2013)

[学会発表] (計5件)

吉川研一、Real-World Modeling on Exotic Aspects of Living Cell, International SPIRITS Symposium "Novel, Integrated Clinicopathologic Diagnosis of Cancer Based on Physical Readouts", 2014年3月29日, 京都府京都市

吉川研一、Unveiling Intrinsic Characteristics of Genomic DNA, International SPIRITS Symposium "Novel, Integrated Clinicopathologic Diagnosis of Cancer Based on Physical Readouts" 2014年3月18日, 京都府

吉川研一、Phase Transition on Genomic DNA: Its Physics & Biological Significance, German Science Days "Research for Sustainable Development",

2013年10月25日, 京都府

吉川研一, Specificity of cell-sized  
confinement, International Workshop  
“From Soft Matter to Protocell”, 2013年9  
月19日,宮城県

吉川研一, How does the higher-order  
structure of DNA concern with genetic  
functions? The International Conference  
on Medical Physics, 2013年8月25日, イ  
ギリス

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

○取得状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ

<http://dmpl.doshisha.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

吉川 研一 (YOSHIKAWA, Kenichi)

同志社大学・生命医科学部・教授

研究者番号: 80110823