

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：12501

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23584

研究課題名(和文)金イオン添加ハイドロゲルに対する光の角運動量を与える力学的相互作用評価

研究課題名(英文)Evaluation of the mechanical interaction of the angular momentum of light on hydrogels with gold ions

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) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では金イオン添加ハイドロゲルに対して光渦を照射し、ゲルの物性、光の特性によってどのような力学的応答が示されるかを調査した。作成したハイドロゲルであるPEGDAに対して、塩化金(Ⅲ)水溶液に浸漬させ金イオンを添加した。塩化金(Ⅲ)の濃度を変えて、光伝搬の散乱光および形成されたフィラメントを観察した。0.4-4 mg/ml時にはフィラメントが形成されたが、10 mg/mlおよび金イオンを添加しない場合には形成されないことがわかった。金イオンの添加量によって相互作用する条件があることを明らかにした。また光渦のトポロジカルチャージによってねじれの方向および分岐数を制御できることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光の軌道角運動量を活用することで、生体組織のようなソフトマテリアルが持つ擦りり応力など、従来、未知であった動力学特性が明らかになることが期待される。しかし、ソフトマテリアルと軌道角運動量の相互作用を直接計測・可視化する手段はなく先行研究は皆無であった。本研究成果は、ソフトマテリアルと軌道角運動量の相互作用ダイナミクスを直接計測することができたことを示している。これらの成果はソフトマテリアルと光の軌道角運動量の相互作用について確認した初めての例である。軌道角運動量がハイドロゲルに与える力学的作用についてさらに研究を進展させ、生体組織を対象とした研究へと発展させていく。

研究成果の概要(英文)：In this study, we irradiated a gold ion-doped hydrogel with optical vortices to investigate the mechanical response of the hydrogel depending on its physical properties and light characteristics. Gold ions were added to the prepared hydrogel, PEGDA, by immersing it in a gold(III) chloride solution. It was found that filaments were formed at 0.4-4 mg/ml but not at 10 mg/ml or when no gold ions were added. It was found that the filament formation was dependent on the amount of gold ions added. We also found that the topological charge of the optical vortex can control the direction of the twisting and the number of branches.

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

光渦は位相特異点に起因した螺旋波面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波動方程式の固有解であるラゲールガウスモードがある[L.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そって現れる。これを軌道角運動量という。これまで申請者は「光渦を用いたレーザーアブレーション」を研究してきた。光渦を金属表面に照射した時、アブレーション過程を介してできた金属クラスターに角運動量が作用し、螺旋構造を有した針状構造物が金属表面に形成されることを世界で初めて発見した[K.Toyoda,et.al.,2012]。光渦の軌道角運動量は固体材料のみならず、光マニピュレーションなど、生体組織の操作に対しての応用も期待されている。光の軌道角運動量を活用することで、生体組織が持つ拵り応力など、従来、未知であった動力学特性が明らかになることが期待される。しかし、ソフトマテリアルと軌道角運動量の相互作用を直接計測・可視化する手段はなく先行研究は皆無であった。

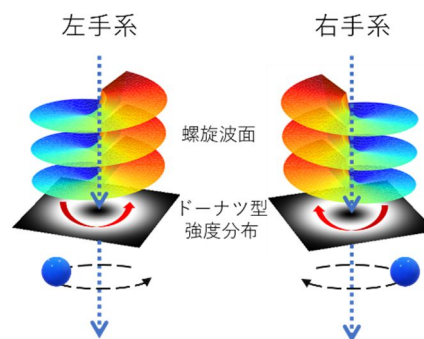


図1 光渦の波面と強度分布

### 2. 研究の目的

本研究では「光の軌道角運動量と生体組織はどのように相互作用し、物理学的な応答をしめすのか」を計測・可視化するため、高い含水率と高分子ネットワークを有するハイドロゲル(一般に生体組織のシミュレーターとして使われる)に金イオンを添加した「金イオン添加ハイドロゲル」に着目した。ハイドロゲルは無色透明であるが、添加された金イオンは、レーザー照射時に光還元反応を介してナノ微粒子として析出する。光渦照射時に析出する金ナノ微粒子をトレーサーとして生体組織の力学運動を可視化することで、生体組織と光の角運動量の力学的相互作用を計測する。さらに、金ナノ微粒子間の凝集によってできるナノ構造体の形状・空間分布からナノ微粒子間相互作用・局所的な質量移動を解析するとともに新奇ナノツイスト構造体創成の可能性を探る。

### 3. 研究の方法

ハイドロゲルとして PEGDA (Poly(ethylene glycol) diacrylate (n=6000)) を用いた。PEGDA 2 mg、重合開始剤として Irgacure2959 0.2 mg を 2 ml の純水に含有させて 30 分攪拌した。これらを 25 x 25 x 3 mm のガラスモールドに入れ、波長 356 nm の紫外線照射を 2 時間行った。形成されたゲルを純水に 2 時間浸した。作成したハイドロゲルを 10 x 10 mm 程度にカットし、塩化金(Ⅲ)水溶液に浸した。塩化金(Ⅲ)水溶液の濃度を変化させ光の伝搬角度およびフィラメントの形状を評価した。

光源として波長 1064 nm のパルス幅 5.9 ps パルスレーザーを用いた。LBO 結晶を用いて 532 nm に波長変換した。出射されるガウス光を厚みがステップ状に 16 分割されている螺旋型位相板を通過させることで光渦に変換した。光渦の位相波面の 1 波長ごとにおける周回数を表すトポロジカルチャージ( $l$ )は、螺旋方向の位相板の枚数によって変化させた。トポロジカルチャージの大きさ、符号に対して形成される金フィラメントの形状と CCD カメラによって観測した透過光の強度分布変化によって、伝搬特性を計測した。ハイドロゲルに入射する光のパワーは 5 mW とした。20 倍の対物レンズによってゲル端面に集光とした。光照射を行う時間は 2 分とした。

### 4. 研究成果

ハイドロゲルに浸漬させる塩化水溶液濃度を変化させて光渦を照射させ、照射時、照射後についてそれぞれ検証した。塩化金(Ⅲ)の濃度を 0.4 mg/ml, 4 mg/ml, 10 mg/ml とした水溶液に浸漬させたハイドロゲルおよび、金イオンを添加していないハイドロゲル(0 mg/ml)に対して光渦を照射した。画像右側から入射した際の散乱光を CCD カメラによって観測した様子を図 2 に示す。

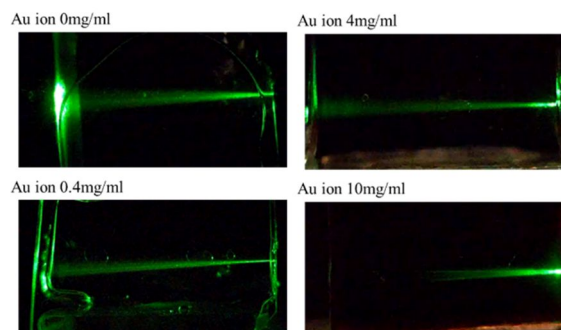


図2 ハイドロゲル内部における、金イオン濃度に対する光渦伝搬の様子

金イオン濃度が 0.4 mg/ml 及び 4 mg/ml のとき、入射光は発散が抑えられ反対側のゲル端面まで伝搬した。金イオン添加されていない場合、及び 10 mg/ml 時には光は発散した。これらを定量的に評価するため、集光点の大きさと、1 mm 離れた点の直径を時間経過ごとに計測して、発散角を求めた (図 3)。10 mg/ml は最大の発散角が示されたのに対し、0.4 mg/ml と 4 mg/ml では発散が抑えられた。これは、過剰に析出した金粒子が光伝搬路上に集まることによって、光が散乱したと考えられる。一方、金イオン添加を行っていないハイドロゲルは、20 秒から 30 秒にかけて凝集し、40 秒を過ぎると発散していく。これはレーザーによってゲルが凝集するため、水分含有量が下がり一時的に屈折率差が生じるが、ゲルの架橋が切れてモノマー化することで屈折率差がなくなることによると思われる。

図 4 では光渦照射後のハイドロゲルを光学顕微鏡で観測した画像を示す。写真右側から光渦を照射した。先程の結果を裏付けるように、0.4 mg/ml, 及び 4.0 mg/ml では 5 mm を超える直線状のフィラメントが形成されている。一方で 10 mg/ml では発散しており、フィラメントは形成されなかった。図 5 では透過光の観測を行った。反時計回りの軌道角運動量をもつ  $L=+1$  の光渦を用いた場合、光渦は二つに分離し、反時計回りに回転を伴いながら伝搬する。また、時計回りである  $L=-1$  を用いた場合には時計回りの回転を伴いながら伝搬する。これらは光渦を構成するエルミートガウスにモード分離しながら伝搬していくことが考えられる。 $L=+2$  の場合には三つの強度の強い点が観測され、この結果を裏付けている。現在はこのフィラメント形状を構成する微粒子の観測を進めている。これらの点から、フィラメントは内部で光渦のトポロジカルチャージに応じた分岐を伴いながらねじれて形成していると考えられる。さらに、トポロジカルチャージの大きさ、符号によってねじれ形状のフィラメントのねじれ方向や分岐の数が自在に制御できることを明らかにした。トポロジカルチャージがゼロである、ガウス光の照射時には発散した。フィラメント形状が形成されるのは、光渦特有の現象であることを確認した。

これは集光した光のゲル内部で生じる発散と、光強度分布に依存した場の屈折率分布が誘起されたことによる集光効果が釣り合う空間光ソリトンと呼ばれる現象によるものと考えられる。ゲルの屈折率に対して析出した金の屈折率は低いため、強度分布に対して負の応答が生じる。光渦は強度分布中心に位相特異点を有することより特異点付近の屈折率は場に比べ高くなるため、空間光ソリトンが発生する。しかしこの時のモード不安定性により、光渦はエルミートガウス光に分離し、分岐が見られる。ガウス光の場合は、光強度分布上の屈折率はゲル場に比べ低くなり、凹レンズ効果によって発散すると考えられる。

本結果は、企図していた金ナノ粒子で構成されたフィラメントのねじれ構造がトポロジカルチャージおよび金イオン濃度に応じて形成されることを表しており、ソフトマテリアルと軌道角運動量の相互作用ダイナミクスを直接計測することができたことを示している。今後、ハイドロゲルの凍結乾燥などの手段によってフィラメントを構成する微粒子の形状や元素分析を走査型電子顕微鏡 (SEM) および EDX によって観測する。さらにゲル自体の架橋度や膨潤度との関係を調査する予定である。これらの成果はソフトマテリアルと光の軌道角運動量の相互作用について確認した初めての例である。軌道角運動量がハイドロゲルに与える力学的作用についてさらに研究を進展させ、生体組織を対象とした研究へと発展させていく。

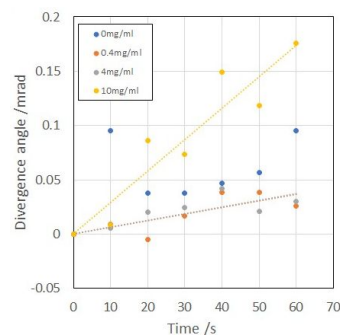


図 3 塩化金水溶液濃度と光の発散角の経時変化の関係

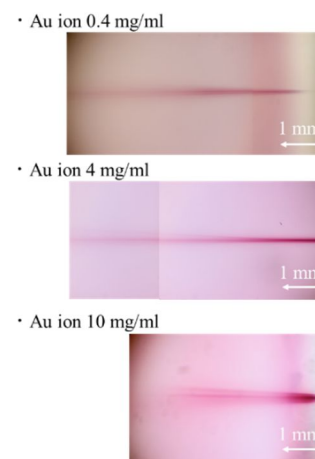


図 4 ハイドロゲル内部に形成されたフィラメントの光学顕微鏡像

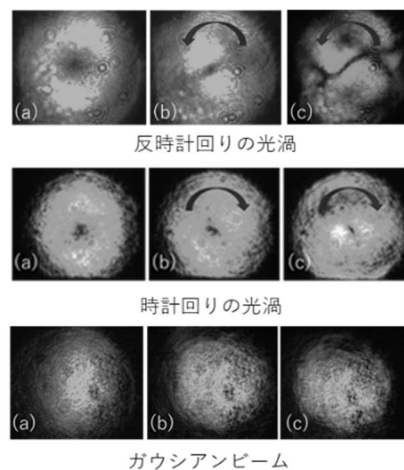


図 5 光のモードに対する透過光の経時変化

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 Ablez Ablimit, Toyoda Kohei, Miyamoto Katsuhiko, Omatsu Takashige	4. 巻 13
2. 論文標題 Microneedle structuring of Si(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 ~ 062006
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 Ablez Ablimit, Toyoda Kohei, Miyamoto Katsuhiko, Omatsu Takashige	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 ~ 403
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 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Kohei Toyoda, Takashige Omatsu
2. 発表標題 Helical light offers a new twist of materials science
3. 学会等名 NEW TREND IN CONTEMPORARY OPTICS（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 豊田 耕平、宮本 克彦、杉山 輝樹、尾松 孝茂
2. 発表標題 光渦レーザートラッピング結晶成長を介した光の全角運動量による結晶エナンチオマー制御
3. 学会等名 レーザー学会 学術講演会 第40回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 豊田 耕平、宮本 克彦、杉山 輝樹、尾松 孝茂
2. 発表標題 レーザートラッピング結晶化法におけるエナンチオマー過剰率の光波の全角運動量依存性
3. 学会等名 第67回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020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