

NIR レーザー光ピンセットと

UV レーザー誘起单分子膜接合によるマイクロ光学素子の実装

東京科学大学 物質理工学院・材料系

准教授 岸 哲生

(2021 年度 一般研究開発助成 AF-2021215-B3)

キーワード：光ピンセット，微小光学素子，单分子結合

1. 研究の目的と背景

近年の情報社会において、アナログおよびデジタル情報の担い手として光が広く利用されている。撮像素子が捉えた光は電気信号に変換・処理され、再び光としてディスプレイに表示される。もしくは、光信号として光通信用ファイバによって伝送され、世界中に配信される。最近では、光の量子的振る舞いを利用した量子計算が実証されるなど、光の果たす役割はますます拡大しており、光を高度に取り扱うための部品や機器の重要性が高まっている。

最近では、スマートフォン・スマートウォッチ用カメラやカプセル内視鏡のように、微小な筐体に多様な光学機器を搭載するようになっている。撮像素子の高感度化・小型化に伴って、光学部品がミリメートルサイズであっても多くの情報を含んだ画像が得られるようになった。今後、デバイスの小型化や多機能化はさらに進展するものと考えられ、それに伴って多彩な材料からなる多様な光学素子を3次元的に実装する技術が必要になることが予想される。

マイクロメートルサイズの物体を非接触・非侵襲で持ち上げる技術として、集光したレーザーを利用した光ピンセット^{1,2)}が広く利用されており、これまでに細胞のマニピュレーション^{3,4)}が実用化された。光ピンセットは、2018年にノーベル物理学賞が授与された優れたレーザープロセシング技術である¹⁾。静電気的相互作用が強く働くマイクロメートルサイズ以下のサイズでは、これまでの機械的な手法から、レーザーを用いた非接触・非侵襲な実装技術が必要不可欠になる。

マイクロメートルサイズは光の波長と同程度のサイズであり、光にとって究極的に小さい光学系である。現在の光学機器ではミリメートルサイズの素子が主要な光学部品となっているが、撮像素子の高感度化や小型化に伴って、最終的にはマイクロメートルサイズに行きつくはずである。その際には、多様な材料からなるマイクロメートルサイズの光学部品（レンズ、プリズム、光共振器）を、レーザープロセシングを用いて高精度に作製・アライメントする必要がある。

マイクロ光学素子を固定化する際に、UV 硬化樹脂などを用いると、接着面の最小サイズは光の波長程度となる。そのため、UV 硬化樹脂により素子表面が汚染され、光機能が損なわれる可能性がある。そこで本研究では 1nm 程度の厚さの单分子膜を介して接合させることで、素子の形

状と光機能を損ねることなく固定化させる。

光ピンセットを用いた微小物体のアライメントについては、これまでに多くの研究がなされてきた。また、光ピンセットと UV レーザーを併用した固定化についても Misawa らによって 20 年以上前に報告されている^{5,6)}。その後も、光ピンセットは飛躍的に発展を続け、ホログラフィ、光渦、複数ビームの利用など新しく有用な技術も開発が進んだ。しかしながら、光ピンセットを用いたデバイスの作製や機能実証は十分に進んでいるとは言い難い。これは、光ピンセットに適したマイクロメートルサイズの微小物体の種類が限られていることにも起因していると考えられる。実際に、既往の光ピンセットおよび固定化に関する研究は、市販されているポリスチレン球やシリカガラス球を対象としているものがほとんどである。

マイクロメートルサイズ光学素子として最も注目されているのは Whispering Gallery Mode (WGM)に基づく光共振器である。中でもガラス製の球状光共振器は、その優れた光閉じ込め効率から長い間研究が行われている。既往の研究のほとんどは、光ファイバの先端を溶融して作製したガラス球や結晶を高精度に研磨した構造など、100μm 以上のサイズの共振器を対象としており、マイクロメートルサイズの光共振器を対象とした研究は多くない。

微小結晶の研究では、ナノメートルサイズの結晶が多く見られる。これはナノサイズではバルクと異なる特性が得られることから、高い関心が寄せられているためである。しかしながら、サイズの大きいマイクロメートルサイズでは、サイズ効果を見込めないばかりか、ミリメートルサイズの単結晶のような物性測定にも適さないため、ほとんど注目されることではなく、捨て置かれていると言つて良い。

筆者らは最近、デュアルビーム光ピンセットを構築し单分子膜の結合技術と組み合わせることで、微小素子のマニピュレーションと固定化を実現できることを示し、マイクロメートルサイズの素子を実装するための準備を進めている⁹⁾。本研究では、マイクロメートルサイズのガラス微小球や微小結晶を持ち上げ固定化するために、近赤外 (Near-InfraRed: NIR) レーザー光ピンセットと紫外 (Ultra-Violet: UV) レーザー誘起单分子膜接合のための光学系を構築した。NIR レーザーの偏光・強度分布を制御し、様々な形状（球、八面体、立方体）の微粒子を効率的に捕捉する。捕捉した微粒子をその場で固定化するために、

NIR レーザーと同軸に UV レーザーを導入し、単分子膜と光重合開始剤を使った表面化学反応により、微粒子をその場で固定化する。

具体的には、球状光共振器に光導波路とのエバネッセントカップリングにより光を導入し、微小プリズムを介して光を取り出す新しい指向性微小レーザーの構築を目指して、以下の 3 項目に取り組んだ。

1. 光ピンセットの高度化：既設の光ピンセットに空間光変調器を組み込み、多軸ビーム照射により多様な粒子形状や粒子配置に対応できるように改良した。最適な光強度分布を有限要素法シミュレーションにより検討した。これにより、微小素子の材質、サイズおよび形状の選択肢を拡張できることを示す。

2. 単分子結合の最適化：UV レーザー照射光学系の改良を行った。高屈折率ガラスおよび結晶材料に適した単分子膜形成条件を検討した。多様な物質 (CeO_2 や TeO_2 など) の光物性に合わせて光重合開始剤とレーザー波長を調整した。

3. NIR/UV デュアルレーザービーム光ピンセットによる素子の実装：マイクロメートルサイズの TeO_2 系高屈折率ガラス微小球および CeO_2 八面体結晶のマニピュレーションと固定化に取り組んだ。

2. 実験方法

2・1 NIR/UV レーザーマルチビーム光ピンセットによる微粒子の捕捉と固定化

2・1・1 光学系

図 1 は、本研究で構築した NIR/UV レーザーマルチビーム光ピンセットの光学系である。多点捕捉のためのホログラム光ピンセット(HOT: Hologram Optical Tweezer)の光源には波長可変 Ti:Sapphire レーザー(NIR レーザー)を用いた。SLM (Spatial Light Modulator: 空間光変調器) により NIR レーザーの光の照射パターンを制御し、これを対物レンズにより微粒子に集光照射することで複数粒子の同時捕捉、視野内の粒子の移動および多様な粒子形状の捕捉が可能になる。

捕捉した微粒子の固定化のために下方から He-Cd レーザーを照射する。対物レンズにより UV レーザー(波長 325nm) もしくは青色レーザー(波長 442nm) を集光し、その集光スポットをガルバノミラーにより HOT で捕捉した粒子の位置に移動させることで、短波長光をトリガーとした単分子膜同士の光重合を促す。

2・1・2 テルライトガラス表面でのシリカガラス微小球の固定化

NIR/UV デュアルビーム光ピンセットを用いて、シリカガラス微小球のテルライトガラス ($\text{K}_2\text{O}-\text{WO}_3-\text{TeO}_2$ 系) 薄膜上への固定を試みた。テルライトガラスは線形および非線形屈折率が高い、フォノンエネルギーが小さい、希土類イオンなどの溶解度が高い、といった微小光学素子として優れた物性を有している。一方で、紫外線を透過しない

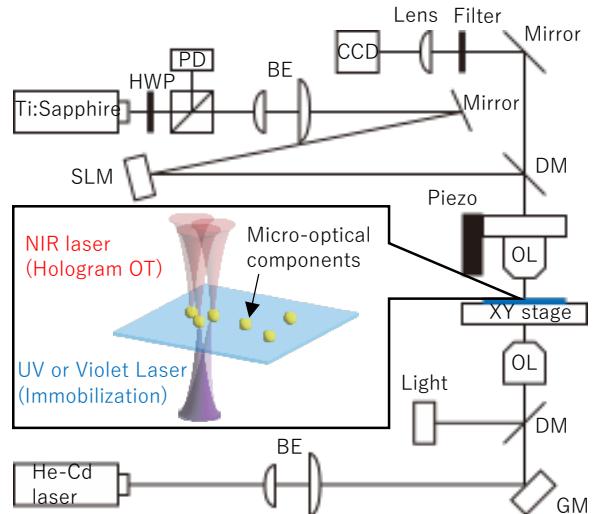


図 1 NIR/UV レーザーマルチビーム光ピンセット光学系の模式図。HWP: 1/2 波長板、PD: フォトダイオード、BE: ビームエクスパンダー、SLM: 空間光変調器、DM: ダイクロイックミラー、OL: 対物レンズ、GM: ガルバノミラー。

ため従来の波長 325nm の光を利用した光重合開始剤(IRGACURE184)を使用できなかった。そのため、波長 442nm の光に反応する光重合開始剤である IRGACURE819 を導入した。

シリカ微小球表面およびテルライトガラス表面を OH リッチとなるように親水化処理を施し、その後、3-Methacryloxypropyltrimethoxysilane (MOPS)による表面修飾を行なった。表面修飾した直径 5.7μm のシリカ微小球を IRGACURE819 添加イソプロパノール溶液中に分散させた。表面修飾シリカ微小球分散溶液を表面修飾したテルライトガラス薄膜上に滴下し、イソプロパノール溶液中において NIR レーザー光ピンセットで所望の位置に移動させた後、波長 442nm のレーザー光を照射することで单分子膜結合を促した。

2・2 計算機シミュレーションによる多面体微粒子の捕捉のためのビームプロファイルの検証

既往の光ピンセット研究では、単一の集光光学系で球状の微粒子を捕捉している。微小球にレーザーを集光照射すると、光圧がバランスする点である焦点位置の少し手前に微小球を捕捉できる。しかしながら、任意形状の微粒子を光圧により安定して捕捉するための技術的検討は不十分である。筆者らは実際に、单一ビームの光ピンセットによる正八面体微粒子の捕捉を試みたが、レーザーの焦点位置から逃げるような挙動を示し捕捉することができなかつた。

そこで、光ピンセットによる任意形状粒子の捕捉に向け、離散双極子近似法を用いた電磁場解析により、ガウシアンレーザー光照射によって粒子にかかる光圧を求めた。真球および正八面体粒子へのレーザー光の伝搬及び偏光方向

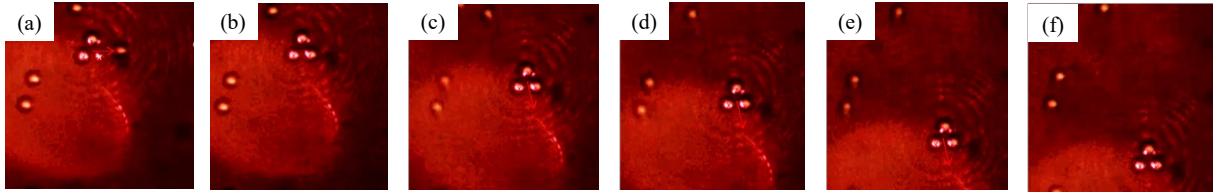


図2 SLMを用いたホログラフィック光ピンセットによる3点同時捕捉実験。(a) 2個のシリカ微小球をレーザースポットの2点(赤の×印)で捕捉。(b)白の×印で右側の3つ目のシリカ微小球を捕捉。(c)-(f) 3つのシリカ微小球を捕捉したまま移動。

が光圧に及ぼす影響を調査し、任意形状粒子の捕捉に適した条件を検討した。

電磁場解析にはオープンソースソフトウェアであるDDSCAT⁸⁾を基に、任意形状粒子とガウシアンレーザービームに対応するよう一部改良して用いた。DDSCATで得られた電場の値を用いて双極子モーメントおよび電場の偏微分を計算し光圧を計算した。この際、粒子中心から光軸をずらして逐次計算を行い、入射位置が光圧に与える影響を検討した。対象粒子としては直径が0.5, 1.0, 1.5μmのガラス真球粒子(屈折率1.59)と有効半径が0.5μmの正八面体酸化セリウム(CeO₂)結晶(屈折率1.7)とした。これらの粒子が水(屈折率1.33)中に分散され、直線偏光のガウシアンレーザー光が照射された条件で計算を行った。

3. 実験結果と考察

3・1 SLMによる多点同時マニピュレーション

SLMによってNIRレーザーのスポットを3点に分け、3つのシリカ微小球の同時捕捉実験を行った。図2に示すように、SLMを用いることで、対物レンズの集光面に3つのレーザースポットを形成することができた(図中のx印)。集光点をシリカ微小球に近づけると、3つの集光点のそれぞれで1つずつ微小球を捕捉可能であった(図2(a)および(b))。その後、自動ステージを移動させると基板が移動し、捕捉された3つの微粒子は全てレーザースポットに捕捉されたままであった(図2(c)-(f))。以上のように、SLMによりマルチスポットの同時照射を実現し、複数粒子を同時捕捉・移動可能なHOTが構築できた。

3・2 計算機シミュレーションによる多面体微結晶の光マニピュレーション条件の検討

改良したDDSCATプログラムで真球粒子について光圧を計算した結果、先行研究とよく一致することを確認した⁹⁾。本研究で開発したコードが光圧の計算に適用可能であることがわかった。図3は、レーザーの入射方向を結晶の回転対称軸に対してθ=0°または30°として粒子の重心に入射した場合に、正八面体CeO₂粒子に働く力を可視化したものである。0°では左右対称に力が分布しているのに対し、30°では右方向への力が大きくなっていることがわかる。

図4に入射位置を水平方向(y軸)に変化させた場合にy軸方向に働く力を示す。0°では復元力が働き重心位置で

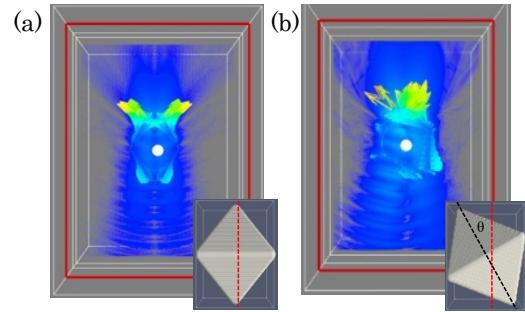


図3 CeO₂八面体マイクロプリズムに生じる光圧ベクトルのシミュレーション結果。(a)入射角0° (b)入射角30°。

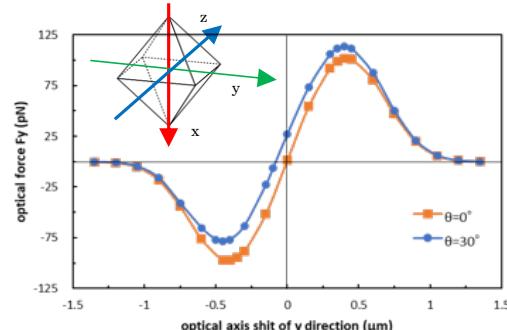


図4 CeO₂八面体マイクロプリズムに生じる光圧ベクトルの角度依存性。

安定するが、30°傾斜した場合は重心位置では安定せずに焦点位置から離れる事を示している。

さらに、平面基板上に静置された八面体粒子(回転角θ=-55°)について計算した結果、光の伝搬方向に垂直な方向の光圧・トルクがともにゼロで復元力が働く特異点が存在しないことがわかった。つまり、一本の直線偏光レーザーによる捕捉は不可能であることがわかった。一方で、正八面体が回転角θ=0°、90°のときには特異点が存在することから、八面体の頂点に3本の直線偏光レーザーを入射することで捕捉可能であることが明らかになった。今後、HOTを利用した捕捉を行なっていく予定である。

3・3 テルライトガラス表面でのシリカガラス微小球の固定化

図5にNIR(790nm)/Violet(442nm)レーザーデュアルビーム光ピンセットによるテルライトガラス薄膜上でシリカ微小球の移動と固定化の様子を示す。薄膜上の任意の場所にある微小球を790nmレーザーで捕捉し、自動

ステージを移動させることで所定の位置に移動させた後、442nm レーザーを数秒間照射するとプラウン運動による振動が止まったことから、微小球が所望の位置に固定化できていることを確認した。

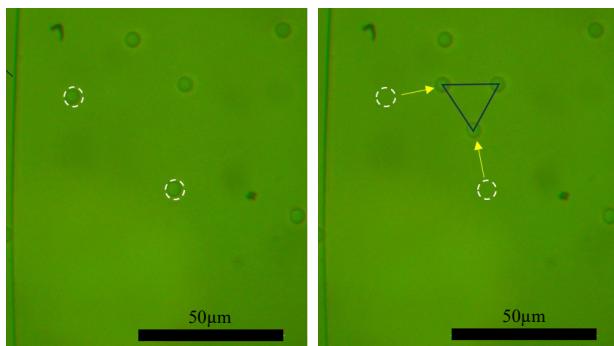


図 5 NIR/violet デュアルビーム光ピンセットによるテルライトガラス薄膜上でのシリカ微小球の捕捉と固定化。

図 6 は、442nm レーザー（強度：4.3 mW）照射時の微小球の固定化に要した時間を、光重合開始剤の添加濃度に対してプロットしたものである。添加濃度が増加するにつれて必要な照射時間は減少し、7mol%以上では約 6 秒でほぼ一定となった。光重合開始剤は短波長光によりラジカルを生成し、MOPS の二重結合を開裂させる役割を担っている。5mol%以上では MOPS 間の反応速度が律速していると考えられ、この単分子膜結合により最短 6 秒でマイクロ光学素子を固定化できると言える。

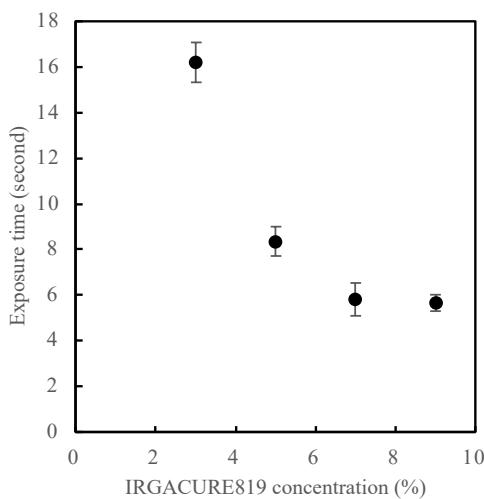


図 6 シリカ微小球とテルライトガラス薄膜の単分子結合に要する光重合開始剤 IRGACURE819 の濃度と 442nm レーザー照射時間の関係。

高い光機能性を有するテルライトガラスにおいてもデュアルビーム光ピンセットによる単分子膜による固定化が可能であることが示された。現在、テルライトガラス微小球を対象とした固定化を実施しており、高い光閉じ込め効率を有する微小球同士を近接させたフォトニック分子の構築とその光機能性の評価に向けて研究を継続している。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、公益財団法人天田財団の 2021 年度一般研究助成 AF-2021215-B3 を賜りました。微結晶の合成は、名古屋工業大学助教の渕上輝顕氏と東京科学大学助教の久保田雄太氏にご協力いただいた。光ピンセットの実験・計算において、本学大学院生の唐恒傑氏、鍾逸夫氏、周咸亨氏にご協力をいただいた。ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) A. Ashkin, J. M. Dziedzic: *Appl Phys Lett*, **19** [8], 283–285 (1971)
- 2) A. Ashkin: *Biophys J*, **61** [2], 569–582 (1992)
- 3) R. Diekmann, D. L. Wolfson, C. Spahn, M. Heilemann, M. Schüttelpelz, T. Huser: *Nat Commun*, **7** (2016)
- 4) Y. Li, Z. Guo, S. Qu: *Opt Lasers Eng*, **55** 150–154 (2014)
- 5) H. Misawa, K. Sasaki, M. Koshioka, N. Kitamura, H. Masuhara: *Appl Phys Lett*, **60** [3], 310–312 (1992)
- 6) H. Misawa, K. Sasaki, M. Koshioka, N. Kitamura, H. Masuhara: *Macromolecules*, **26** [2], 282–286 (1993)
- 7) H. Tang, T. Kishi, T. Yano: *ACS Omega*, **6** [18], 11869–11877 (2021)
- 8) B. T. Draine, P. J. Flatau: *Journal of the Optical Society of America A*, **25** [11], 2693 (2008)
- 9) L. Ling, F. Zhou, L. Huang, Z. Y. Li: *J Appl Phys*, **108** [7], 73110 (2010)