

# 解説

## 微粒子の光マニピュレーションと分光\*

笹木 敬 司

新技術事業団極微変換プロジェクト 〒600 京都市下京区中堂寺南町 17 京都市リサーチパーク内

(1992年5月26日受理)

### Optical Manipulation and Spectroscopy of Fine Particles

Keiji SASAKI

Microphotoconversion Project, Research Development Corporation of Japan,  
Kyoto Research Park, 17, Chudoji-minami, Shimogyo-ku, Kyoto 600

#### 1. はじめに

「光によって物体に圧力が働く。」これは、確かに Maxwell の方程式を解けば導き出される現象である。しかし、身の回りを飛び交う光から圧力を感じることはない。10 W のレーザービームを用いても発生する力は  $10^{-8}$  N 以下であり、重力、摩擦力、空気抵抗等と比べて無視できるほど小さい。ところが、顕微鏡で  $\mu\text{m}$  オーダーの微小空間を覗いてみると、そこにはマクロな場と大きく異なる世界が存在する。mm 径のレーザービームを  $\mu\text{m}$  まで絞り込むとフォトン密度は  $10^6$  倍に上昇し、また、物体が mm から  $\mu\text{m}$  に小さくなることによって粘性抵抗は3桁、重力は9桁も減少する。その結果、 $\mu\text{m}$  空間では光の圧力が微小物体を動かしたり持ち上げたりする現象を観ることが出来る。

この光の圧力(放射圧)を利用して微粒子を捕捉することにはじめて成功したのは Bell 研究所の Ashkin である<sup>1)</sup>。彼の初期の実験は、対向する2本のレーザービームで微粒子を挟み込むように捕捉するか、あるいは微粒子の下側からビームを上向きに照射し、噴水でボールを持ち上げるように捕捉するものであった<sup>2)</sup>。彼は、この浮揚型のトラッピングにおいて微粒子に働く放射圧をレーザー光の波長の関数として精密に測定し、ある特定の共鳴波長において放射圧が急激に大きくなるという現象を観測した<sup>3)</sup>。これは、球形微粒子の光共振器効果によるもので、微小球の粒径や屈折率、吸収係数の高精度

な測定法として利用されている。その後、Ashkin は、開口数の大きいレンズを用いてレーザービームを集光し焦点付近に微粒子を捕捉する手法を開発した<sup>4)</sup>。この手法は、落射照明型の顕微鏡で簡単に実験でき、かつ操作性に優れていることから現在最も広く使われている。

レーザートラッピングの応用研究は最近活発に進められており、特に生物学の分野では、微生物、細胞、染色体、DNA 等の非接触・非破壊的な操作法として盛んに利用されている<sup>5)</sup>。われわれのプロジェクトでも、光化学的な機能を持った微粒子を  $\mu\text{m}$  オーダーの空間に配置して微小反応系を組み立てたり、微小反応物を輸送して化学反応を誘起し時間・空間的な制御を行う「マイクロ化学システム」の研究にレーザートラッピングを応用している<sup>6)</sup>。

本稿では、われわれが開発した新しい微粒子操作法「レーザー走査マイクロマニピュレーション」について原理を説明するとともに、従来のトラッピング法ではできなかった金属・低屈折率微粒子の捕捉、複数微粒子のパターン形成・輸送、微粒子の分光計測や加工・組立て等の実験に用いた結果を紹介する。

#### 2. 微粒子に働く放射圧

$\mu\text{m}$  オーダーの微粒子に作用する放射圧を厳密に理解するためには電磁気学的な取扱いが必要であるが、微粒子が波長より大きい場合の理論は複雑なので、ここでは、直感的に理解しやすい幾何光学的な説明を用いる。

図1は、対物レンズを用いて集光したレーザービームが球形微粒子に及ぼす放射圧を模式的に表したものであ

\* 本稿は平成3年度光学論文賞受賞記念講演(1992年3月29日、日本大学)を骨子として、まとめたものである。

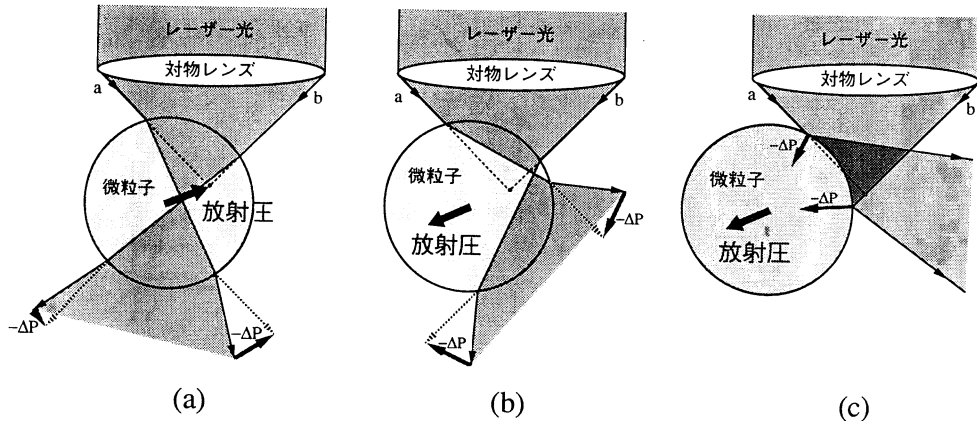


図 1 種々の微粒子に働く放射圧  
 (a) 微粒子の屈折率が周囲の媒質より高い場合, (b) 低い場合, (c) レーザー光を反射・吸収する場合.

る。周囲の媒質と屈折率が異なる微粒子にレーザー光が入射したとき、微粒子の表面および内部で屈折、反射、吸収が起こり、そのため、入射前後で光の運動量が変化する。このとき、運動量保存則に従って微粒子に働く力が放射圧である。微粒子が照射レーザー光の波長で透明であり、かつ屈折率が周囲より高い場合 (図 1 (a)), 放射圧を集光ビームのすべての光線について積分した力はレーザー光の焦点位置の方向を向き、それが重力や熱運動などの外力とつり合う位置で微粒子は捕捉される。従来のレーザートラッピング法はこの原理に基づいている。われわれもこの手法により、ポリマーラテックス、さまざまな液滴、シリカゲル、酸化チタンやバクテリア等を、水、種々のアルコール中で捕捉できることを確認している<sup>2)</sup>。

しかし、屈折率の関係が逆転し微粒子の屈折率が周囲より低くなると (図 1 (b)), 放射圧の方向も逆になりレーザービームから遠ざかる方向に力 (斥力) が働くため捕捉できなくなる。例えば、溶媒としてよく使われる水は屈折率が低いため、水滴を他の液体中で捕捉することは従来できなかった。また、金属微粒子やカーボン微粒子のようにレーザー光を反射・吸収する場合 (図 1 (c)) も、フォトンの衝突により微粒子はレーザービームから跳ね飛ばされてしまう。微粒子に対するこのような制約は、レーザートラッピングを応用する上で大きな問題となっていた。

### 3. 金属・低屈折率微粒子のレーザー走査型トラッピング

金属微粒子や屈折率の低い微粒子の捕捉を可能にする

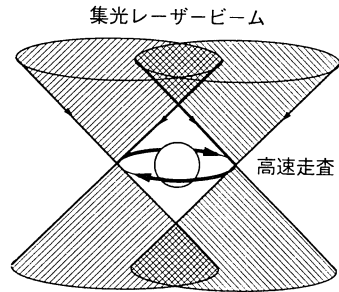


図 2 レーザー走査法の原理

新しい手法として、われわれはレーザー走査型トラッピング法を考案した<sup>3)</sup>。図 2 に、この手法の原理を示す。まず、図のように集光レーザービームを円形に繰り返し走査し微粒子を光で取り囲む。このとき、微粒子は円周上のすべての方向から斥力を受けるため、走査速度が微粒子の運動より十分速ければ輪の中に閉じ込められる。さらに、集光ビームを用いるので光は微粒子の上下も通過し、光軸方向にも挟まれる状態になる。その結果、いわば 3 次元の「光のかご」の中に微粒子は捕捉される。このレーザー走査型トラッピングでは、走査パターンを変えることによって、棒状、歯車形など球形以外の物体も容易に捕捉できる。また、従来のトラッピング法では複数の微粒子が放射圧によって引き寄せられ凝集するという問題があったが、レーザー走査法では、「光のかご」が外側にも斥力を及ぼすため微粒子が中に侵入することがなく、目的とする微粒子だけを長時間安定に捕捉できる。

図 3 に開発したレーザー走査マニピュレーションシステムの構成を示す。捕捉用の CW Nd: YAG レーザー

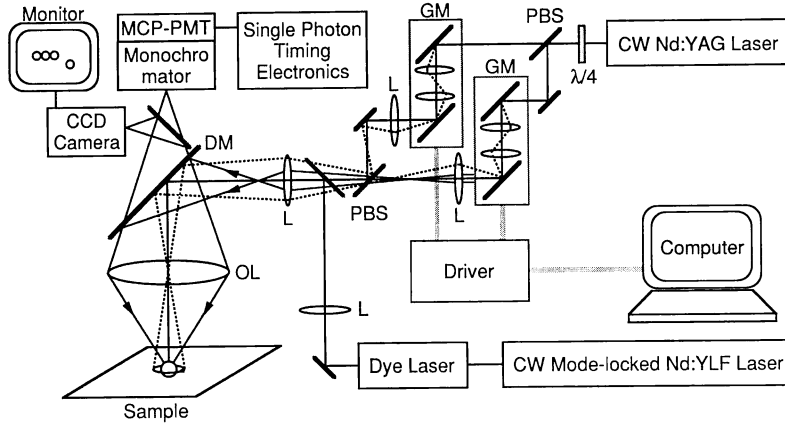


図3 レーザー走査マニピュレーションシステムの構成

GM, ガルバノミラー; PBS, 偏光ビームスプリッター; DM, ダイクロイックミラー; OL, 対物レンズ.

の基本波 (1064 nm) は、二つの微粒子を同時に操作するために偏光ビームスプリッターで二つに分け、それぞれに一对のガルバノミラーで自在に走査する。これらのビームは、再び偏光ビームスプリッターで同軸にし、光学顕微鏡の対物レンズ ( $\times 100$ ,  $NA=1.30$ ) により試料面上で約  $1\mu\text{m}$  のスポットに集光する。ガルバノミラーはコンピュータで制御し、集光スポットを高速走査させて任意の図形を繰り返し描画したり、キーボード操作で2本のビームを任意の位置に平行移動させることができる。微粒子マニピュレーションの様子は CCD カメラで観測し録画した。

図4は、鉄粉を水中で捕捉した様子である。粒径  $3\mu\text{m}$  の微粒子に対し、 $145\text{mW}$  のレーザービームが直径  $10\mu\text{m}$  の円を走査している。「光のかご」を移動させると捕捉した微粒子はそれに伴って動くが、周囲の凝集した微粒子は順に跳ね退けられていくのが観測された。また、走査を停止すると捕捉されていた微粒子は一瞬にして視野外に弾き飛ばされた。このほかにも、アルミ粉末やカーボン微粒子、流動パラフィン ( $n$  (屈折率) =  $1.46\sim 1.47$ ) に分散した水滴 ( $n=1.33$ ) を捕捉・操作できることも確認した。このレーザー走査トラッピング法と屈折率の高い微粒子を対象とした従来の手法を相補的に用いることにより、あらゆる微粒子の捕捉が可能になった。

#### 4. レーザー走査法による複数微粒子の捕捉・配列・輸送

複数のレーザービームを用いて複数の微粒子を同時に捕捉する実験は既にいくつか報告されているが、ビームを増やすことには装置的な限界がある。これに対して、

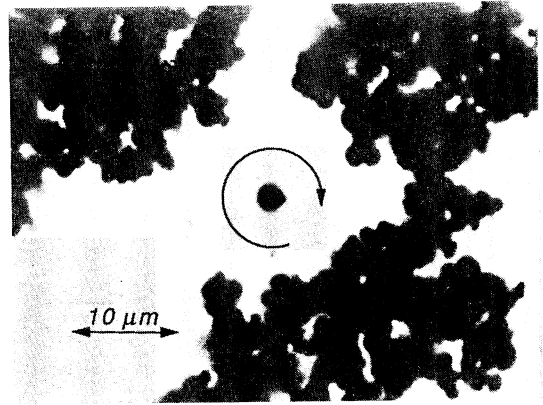


図4 鉄粉 (粒径  $3\mu\text{m}$ ) のトラッピング

レーザー走査法を用いると、1本のレーザービームで多数の微粒子を同時に捕捉し、任意のパターン上に配列させることもできる<sup>9)</sup>。例えば、屈折率の高い微粒子に対して図2のように集光スポットを円形に走査すると、時間平均した光強度はレーザー光の焦平面においてドーナツ状の分布になり、そのため、微粒子は放射圧により光強度の高い領域に引き寄せられ円形に捕捉・配列される。われわれは、既に干渉パターンを利用した複数微粒子のパターン形成法を開発しているが<sup>10)</sup>、パターンの自由度や時間的な変化をプログラムできるという点でレーザー走査法は優れている。また、走査法はパターン上の各点を照明する時間が異なるため、スペックル等のコヒーレント雑音パターン形成に影響を与えることもない。

図5は、レーザー光 ( $145\text{mW}$ ) で " $\mu\text{m}$ " という文字パターンを描画し (繰返し  $13\text{Hz}$ )、エチレングリコー

ル中で粒径  $1\mu\text{m}$  のポリスチレン微粒子を配列させた様子である。レーザー照射開始時には視野内に微粒子は存在しないが、放射圧により多数の微粒子が引き寄せられ、数十秒後には数珠状に並んで図のパターンが形成された。レーザー光を切ると熱運動により数秒でパターンは崩れた。

このレーザー走査法によるパターン形成では、ビームの走査速度とレーザー光強度を調整することにより、パターンに沿って任意の速度で微粒子を輸送することもできる<sup>11)</sup>。これは、ビームが走査するとき微粒子に働く放射圧は、微粒子をパターン上に保とうとする方向以外に、わずかながら走査方向に押す力の成分を持つためである。図6は、円形のパターンを描いた粒径  $1\mu\text{m}$  のポリスチレン微粒子が流れるように輸送される様子を1秒ごとの連続画像として観測した結果である。この微粒子輸送の速度を走査速度とレーザー光強度を変化させて測定すると、その結果は力学的な理論に基づいて解析した値とよく一致した。したがって、このような実験から微小領域における微粒子と基板の摩擦係数や放射圧などの物理パラメータを推定することもできる。

### 5. 微粒子の分光・加工・組立て

「マイクロ化学システム」の研究においては、個々の微粒子の内部あるいは微粒子間で起きる反応を計測・制御することも重要な課題である。われわれの開発したシステムでは、図3に示したように、パルスレーザーを捕捉用レーザーと同軸で微粒子に集光して光化学反応を誘起し、時間相関単一光子計数装置で反応に伴う発光の高速時間分解分光測定を行うとともに高速・高精度な数学的手法<sup>12)</sup>により物質情報を解析することができる。顕微鏡は共焦点系になっており、微粒子内の3次元的に微小なスポットの情報を得ることができる。レーザートラッピングは熱運動する微粒子を計測中固定するのに不可欠

である。システムの性能は、標準試料を測定した結果から、時間分解能が  $2\text{ps}$ 、3次元空間分解能として深さ方向に  $0.5\mu\text{m}$ 、面内方向に  $0.3\mu\text{m}$  が得られた<sup>13)</sup>。また、吸収情報についても同様な分解能で測定可能である<sup>14)</sup>。

図7はピレンを含有したトルエン溶液を内液としメラミン樹脂で包んだ球形のマイクロカプセル(粒径  $19\mu\text{m}$ )をレーザー捕捉し、紫外パルス光 ( $290\text{nm}$ ) の励起による蛍光スペクトルを球の中心部で時間分解測定した結果である。このような微粒子の光ダイナミクスについては、従来、集団としての情報しか得られなかったが、本システムにより個々の微粒子の特性を解析することが可能になった<sup>15)</sup>。

この捕捉・分光システムにおいて、励起パルス光の強度を少し上げると微粒子のレーザー発振を観測することにも成功した<sup>16)</sup>。図8は、ローダミンBをドープしたポリメタクリル酸メチル (PMMA) 微粒子 (粒径  $24\mu\text{m}$ ) を水中でレーザー捕捉しながら、Qスイッチ Nd:YAG レーザーの第2高調波 ( $532\text{nm}$ ,  $0.7\text{J/pulse/cm}^2$ ) を照射してレーザー発振させた様子である。球全体にぼんやり

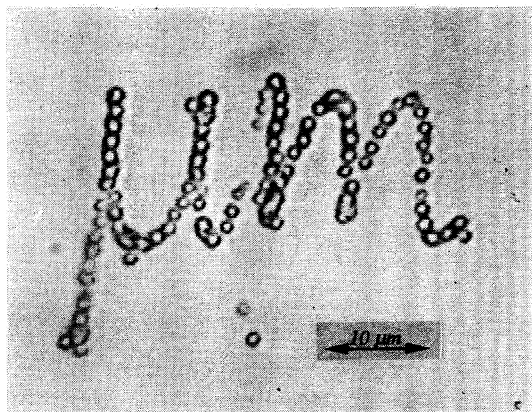


図5 ポリスチレン微粒子 (粒径  $1\mu\text{m}$ ) によるパターン形成

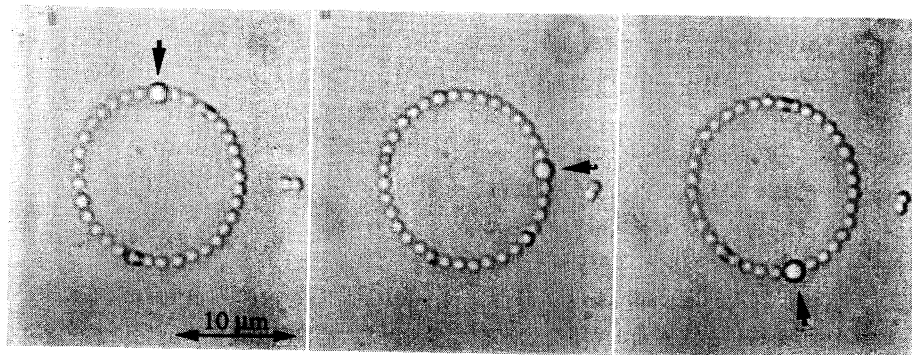


図6 パターンを形成した微粒子の輸送

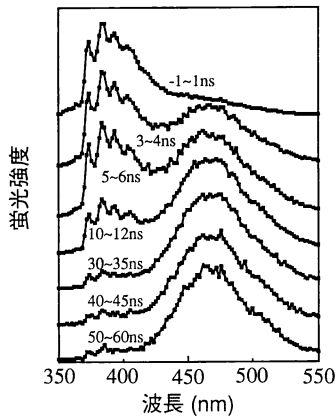


図7 マイクロカプセル内部のピレン/トルエン溶液の時間分解蛍光スペクトル

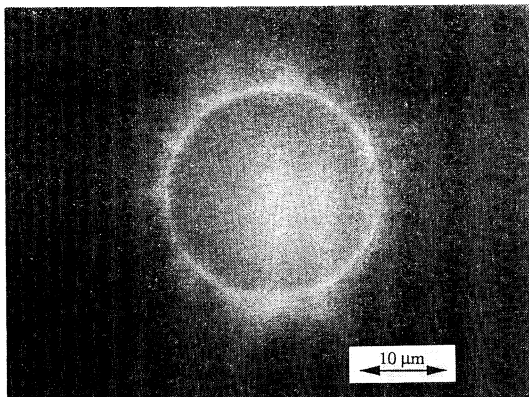


図8 ローダミンBをドーブしたPMMA微粒子(粒径  $24\mu\text{m}$ ) の水中でのレーザー捕捉・発振

りと光るオレンジ色の蛍光とは別に、球の縁で明るく輝いているのがレーザー発振光である。これは、微小球が光共振器となって光フィードバックを行う whispering gallery mode レーザーであり、その出力光は球の接線方向に放射されるのでリング状に見える<sup>17)</sup>。この微小レーザー球は3次元空間を自在に動かすことができるため、微小領域における光化学反応の選択的誘起や物質情報の高精度な計測・制御のためのレーザー光源として応用できる。

さらに励起パルスレーザーの出力を上げると、レーザーアブレーション現象を誘起し、微粒子1個の加工を行うことができる<sup>18)</sup>。例えば、ピレンをドーブしたPMMA微粒子(粒径  $7\mu\text{m}$ ) にパルス YAG レーザーの第3高調波 ( $355\text{nm}$ ,  $23\text{J/pulse/cm}^2$ ) を単発照射すると、直径  $1\mu\text{m}$  以下の微細な穴を貫通させることができた。この実験においても、レーザー捕捉していないと

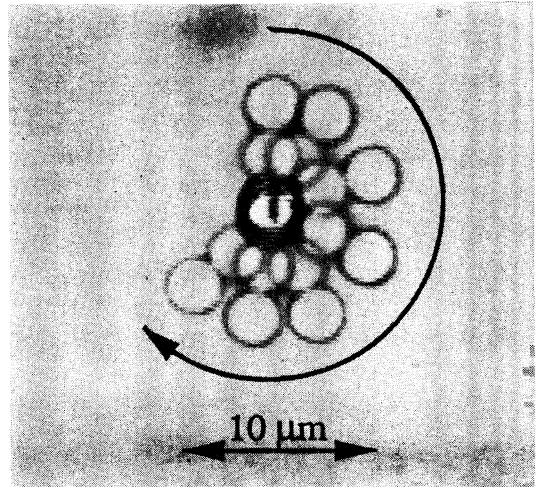


図9 ポリスチレン微粒子からなる微小構造物の回転・振り子運動

アブレーションの瞬間に微粒子はどこかに飛ばされてしまい加工状態が確認できないので、トラッピングは必要不可欠である。

励起レーザーで光重合反応を選択的に誘起すると高分子微粒子からなる微小構造物を組み立てることも可能である<sup>19)</sup>。組立て方法としては、まず、2本の捕捉用レーザーを用いて2個のポリスチレン微粒子を同時に捕捉・操作して接着させた後、励起レーザー ( $355\text{nm}$ ) を接触部に照射し媒質のエチレングリコールに溶かしておいた光重合用の試薬に反応を開始させると、数秒後にゲルが発生して二つの微粒子が接着する。次に、接着した微粒子を1本のビームの走査を開始して捕捉するとともに、もう1本のビームで別の微粒子を操作して接触させ、再び励起レーザーで接着する。この操作を繰り返すと微粒子からなるさまざまな構造物を積み木細工のように組み立てることができる。

図9は、3個の微粒子を棒状に接着した構造物の両端を2本のレーザー ( $145\text{mW}\times 2$ ) で捕捉し、一方のビームを固定してもう一方を回すことで回転運動や振り子運動を行っている様子である。微小構造物は基板から浮揚した位置で組み立て・駆動しており、3次元的な運動も可能である。この技術は、マイクロマシンの組立てやハンドリングの一手法として応用できる。

## 6. おわりに

微小空間で種々の微粒子を自由自在に操ることができ、レーザー走査マイクロマニピュレーションについて、いくつかの応用例を交えながら紹介した。この方法は、

マイクロ化学に新しい展開を開きつつあるとともに、微小領域における種々の科学技術への応用も期待される。本稿で紹介したレーザートラッピングや微小球レーザー発振は  $\mu\text{m}$  空間に特有な現象であり、さらに、その特殊な環境において光と物質が相互作用すると、微小領域でしか見られない新しい光物理・化学現象が起きるという興味深い実験結果が得られており、今後さまざまな分野への展開が期待される。

本研究は当プロジェクト (総括責任者, 増原宏大阪大学教授), 喜多村昇博士, 三澤弘明博士, 越岡雅則氏, 藤澤亮氏との共同研究によるものであり, これらの方々

#### 文 献

- 1) A. Ashkin: Phys. Rev. Lett., **24** (1970) 156-159.
- 2) A. Ashkin: Science, **210** (1980) 1081-1088.
- 3) A. Ashkin and J. M. Dziedzic: Phys. Rev. Lett., **38** (1977) 1351-1354.
- 4) A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm and S. Chu: Opt. Lett., **11** (1986) 288-290.
- 5) 例えば, 光学, **21**, 2 "レーザートラップ" 特集 (1992).
- 6) H. Masuhara: *Photochemical Processes in Organized Molecular Systems* (Elsevier, Amsterdam, 1991) p. 491; 三澤弘明, 増原 宏: レーザー研究, **19** (1991) 433-439.
- 7) H. Misawa, M. Koshioka, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara: J. Appl. Phys., **70** (1991) 3829-3836.
- 8) K. Sasaki, H. Misawa, M. Koshioka, N. Kitamura and H. Masuhara: Appl. Phys. Lett., **60** (1992) 807-809.
- 9) K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura and H. Masuhara: Jpn. J. Appl. Phys., **30** (1991) L907-L909.
- 10) H. Misawa, M. Koshioka, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara: Chem. Lett., (1991) 469-472.
- 11) K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura and H. Masuhara: Opt. Lett., **16** (1991) 1463-1465.
- 12) K. Sasaki and H. Masuhara: Appl. Opt., **30** (1991) 977-980.
- 13) K. Sasaki, M. Koshioka and H. Masuhara: Appl. Spectrosc., **45** (1991) 1041-1045; 笹木敬司, 増原 宏: 化学と工業, **43** (1990) 2024-2026.
- 14) K. Sasaki, M. Koshioka and H. Masuhara: J. Opt. Soc. Am. A, **9** (1992) 932-936; 笹木敬司, 越岡雅則, 増原 宏: 分光研究, **39** (1990) 353-357.
- 15) M. Koshioka, H. Misawa, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara: J. Phys. Chem., **96** (1992) 2909-2914.
- 16) K. Sasaki, H. Misawa, N. Kitamura, R. Fujisawa and H. Masuhara: Appl. Phys. Lett., submitted.
- 17) H. M. Tzeng, K. F. Wall, M. B. Long and R. K. Chang: Opt. Lett., **9** (1984) 499-501.
- 18) H. Misawa, M. Koshioka, K. Sasaki, N. Kitamura and H. Masuhara: Chem. Lett., (1990) 1479-1482.
- 19) H. Misawa, K. Sasaki, M. Koshioka, N. Kitamura and H. Masuhara: Appl. Phys. Lett., **60** (1992) 310-312.