

Oral presentation | 3 Optics and Photonics : 3.1 Basic optics and frontier of optics

📅 Sat. Mar 15, 2025 9:00 AM - 12:15 PM JST | Sat. Mar 15, 2025 12:00 AM - 3:15 AM UTC 🏢 K305
(Lecture Hall Bldg.)

[15a-K305-1~12] 3.1 Basic optics and frontier of optics

Kenji Setoura(兵庫県立大), Hiromasa Niinomi(東北大)

9:00 AM - 9:15 AM JST | 12:00 AM - 12:15 AM UTC

[15a-K305-1]

[The 57th Young Scientist Presentation Award Speech] Analyses of applied forces with ray tracing simulation on contour-tracking optical tweezers toward manipulation of particles of diverse size and shape

○Ryohei Omine¹, Shuzo Masui¹, Masaki Michihata¹, Satoru Takahashi¹ (1.The Univ. of Tokyo)

9:15 AM - 9:30 AM JST | 12:15 AM - 12:30 AM UTC

[15a-K305-2]

Numerical simulation of gradient and thermophoretic forces in optical manipulation

○Kenji Setoura¹, Koki Ide², Takayuki Suzuki², Tetsuro Tsuji³ (1.Univ. Hyogo, 2.Kobe City Col. Tech., 3.Kyoto Univ.)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

9:30 AM - 9:45 AM JST | 12:30 AM - 12:45 AM UTC

[15a-K305-3]

Plasmonic nanostructures that control optical force direction according to the surrounding refractive index

○(B)Shuto Watanabe¹, Ohta Ryuichi¹, Tsukasa Katayama¹, Tanaka Yoshito¹ (1.RIES, Hokkaido Univ.)

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[15a-K305-4]

Enhancement of Optical Trapping-Induced α -Synuclein Condensate Formation at Solution Surface by Gold Nanoparticle Conjugation

○Keisuke Yuzu^{1,2}, Eri Chatani², Hiroshi Masuhara¹ (1.Nat'l Yang Ming Chiao Tung Univ., 2.Kobe Univ.)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[15a-K305-5]

Control of Optical Properties of Supraparticle Composed of Silicon Nanoparticles with Temperature-Responsive Polymer

○Shintaro Kono¹, Vu Thi Oanh¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹ (1.Kobe Univ.)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award 🎯 English Presentation

10:15 AM - 10:30 AM JST | 1:15 AM - 1:30 AM UTC

[15a-K305-6]

Optical Sorting and Spectroscopy of Micro and Nanospheres Containing Carbonyl Bonds with Mid-Infrared Optical Force

○(P)Yoshua Albert Darmawan¹, Taiki Yanagishima², Takao Fuji¹, Tetsuhiro Kudo¹ (1.Toyota Tech. Inst., 2.Kyoto Univ.)

10:45 AM - 11:00 AM JST | 1:45 AM - 2:00 AM UTC

[15a-K305-7]

Mid-infrared molecular vibrational resonance optical manipulation: The effect of reflection with blue-detuned laser

Takuma Goto¹, Yoshua Albert Darmawan¹, Taiki Yanagishima², Takao Fuji¹, OTETSUHIRO KUDO¹ (1.Toyota Tech. Inst., 2.Kyoto Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM JST | 2:00 AM - 2:15 AM UTC

[15a-K305-8]

Theoretical analysis of the role of triplet-triplet annihilation in triplet-state-based optical manipulation

○Yoshiki Umekawa¹, Takao Horai¹, Roger Bresoli-Obach², Hajime Ishihara¹ (1.Dept. of Mater. Eng. Sci., Osaka Univ., 2.Dept. of Appl. and Anal. Chem., Institut Quimic de Sarria, Universitat Ramon Llull)

11:15 AM - 11:30 AM JST | 2:15 AM - 2:30 AM UTC

[15a-K305-9]

Control of Rotational Direction of Nanoparticles Using Recoil Force Generated by Stimulated Emission

○Takao Horai¹, Yoshiki Umekawa¹, Masaaki Ashida¹, Hajime Ishihara¹ (1.Osaka Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM JST | 2:30 AM - 2:45 AM UTC

[15a-K305-10]

Theory of Resonant Optical Force Acting on Chiral Nanoparticles Based on Non-Local Response Theory

○Takao Horai¹, Hajime Ishihara¹ (1.Osaka Univ.)

11:45 AM - 12:00 PM JST | 2:45 AM - 3:00 AM UTC

[15a-K305-11]

Lysozyme Crystallization Induced by Optical Forces with a Focused Laser Beam and X-ray Crystallography

○Manami Nishimuro¹, Yasushi Tanimoto¹, Kyoko Masui¹, Ikuko Miyahara¹, Chie Hosokawa¹ (1.Osaka Metropolitan Univ.)

◆ English Presentation

12:00 PM - 12:15 PM JST | 3:00 AM - 3:15 AM UTC

[15a-K305-12]

Dynamic optical matter of gold nanoparticles prepared by optical trapping in plastic pattern

○(M2)PIN HSUN HUANG¹, Mu-En Li¹, Chi-Shan Lu¹, Chih-Hao Huang¹, Henryk Witek¹, Peng-Chin Tsai¹, Hsin-Ni Wu¹, Ming-Chia Li¹, Hiroshi Masuhara¹ (1.Nat'l Yang Ming Chiao Tung Univ., Taiwan)

多様なサイズ・形状の粒子操作に向けた輪郭トラッキング光ピンセット における付与力の光線追跡による解析

Analyses of applied forces with ray tracing simulation on contour-tracking optical tweezers toward manipulation of particles of diverse size and shape

東京大工¹ ○大峰 遼平¹, 増井 周造¹, 道畑 正岐¹, 高橋 哲¹

The Univ. of Tokyo¹, ○Ryohei Omine¹, Shuzo Masui¹, Masaki Michihata¹, Satoru Takahashi¹

E-mail: takahashi@nanolab.t.u-tokyo.ac.jp

集光ビームにより微小物体を捕捉する光ピンセット[1]は、微小物体の操作において非常に有望な技術である。しかしながら従来の光ピンセットは、10 μm を超える大きな物体に対して捕捉力が不足する[2]ことや、複雑形状物体への照射時に不規則に回転し[3]安定捕捉（位置・姿勢固定）が難しいことが課題である。このサイズ・形状の制約を打破するため、筆者らは輪郭トラッキング光ピンセットと題する手法を提案している。この手法では、対象物体の輪郭をリアルタイム画像処理で取得し、その輪郭上の各点に集光するビームを時間平均で重ね合わせた照射パターンを物体に照射することで安定捕捉を実現する。筆者らはこの手法を用い、従来法では実現不可能であったサブ mm 級 ($\sim 120 \mu\text{m}$)・不規則形状ポリスチレン粒子の安定捕捉を実験的に実現した[4,5]。

輪郭トラッキング光ピンセットによる安定捕捉は、粒子の輪郭付近が球に近似する光学応答を示すため、外向き・上向きの力が付与されることが原因と考えられている（図 1）[4]。しかしながら現時点ではこれは仮説であり、実際の付与力は不明であった。そこで、 μm -mm スケールの物体の光学応答解析に適した光線追跡シミュレーションを構築し、不規則形状粒子（Gaussian Random Ellipsoids [6]）に対する付与力を解析した（図 2）。その結果、確かに輪郭への照射時に法線方向および鉛直上方向の成分が支配的に働くことが確かめられ、仮説の妥当性が検証された。

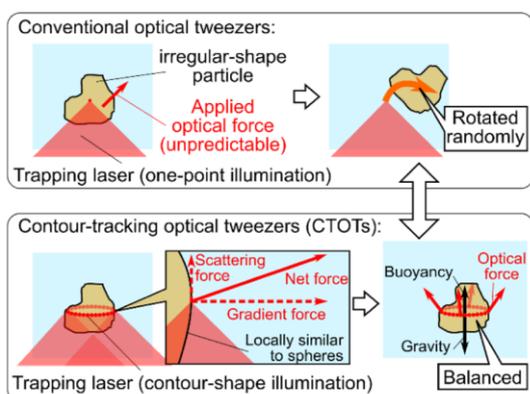


図 1 輪郭トラッキング光ピンセットによる付与力の仮説 [4]

対象粒子：
（等価半径 10 μm ）

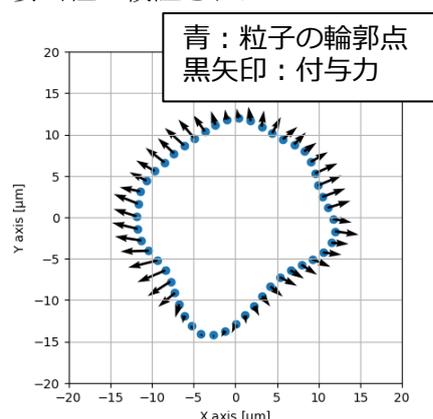
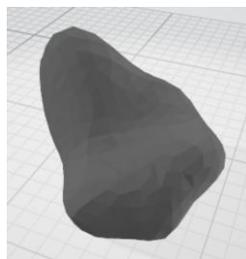


図 2 輪郭トラッキング光ピンセットによる不規則形状粒子への付与力のプロットの例

謝辞 本研究は里見奨学会の支援を受けて行われた。

[1] A. Ashkin *et al.*, *Opt. Lett.*, vol. 11, no. 5, pp. 288–290, 1986. [2] I. A. Favre-Bulle *et al.*, *Nanophotonics*, vol. 8, no. 6, pp. 1023–1040, Jun. 2019. [3] E. Higurashi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 64, no. 17, pp. 2209–2210, Apr. 1994. [4] R. Omine *et al.*, *Opt. Lett.*, vol. 49, no. 10, pp. 2773–2776, 2024. [5] 大峰遼平ら, 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会, Sep. 2024. [6] K. Muinonen and T. Pieniluoma, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 112, no. 11, pp. 1747–1752, Jul. 2011.

光マニピュレーションにおける勾配力と熱泳動力の数値シミュレーション

Numerical simulation of gradient and thermophoretic forces in optical manipulation

兵県大工¹, 神戸高専², 京大情報³ ◯瀬戸浦 健仁¹, 出 康樹², 鈴木 隆起², 辻 徹郎³

Univ. Hyogo¹, Kobe City Col. Tech.², Kyoto Univ.³ ◯Kenji Setoura¹, Koki Ide², Takayuki Suzuki²,

Tetsuro Tsuji³

E-mail: setoura@eng.u-hyogo.ac.jp

光マニピュレーションにおいては、近赤外波長域における溶媒の光吸収や、近接場を発生させる金属ナノ構造の光熱変換のために、レーザー照射スポットの温度が数°Cから時には 100 °C程度まで上昇する。このような局所加熱が顕著な条件では、光圧に加えて熱対流および熱泳動など熱誘起の物質輸送現象が駆動される。近年では、これらの熱誘起の現象を光圧と併用して物質を捕捉および輸送する「Optothermal manipulation」の報告が増加している[1]。熱泳動を活用した Optothermal manipulation の開拓のためには、捕捉対象の微粒子に作用する光圧と熱泳動力を定量的に切り分ける必要がある。我々の研究グループでは、水中を拡散するポリスチレン微粒子の熱泳動挙動について、実験とよく一致するブラウン動力学計算のモデルを開発している[2]。そこで本研究では、この計算モデルを拡張して光ピンセットにおける勾配力を実装することで、近赤外波長の集光レーザービームによる水中の光ピンセット条件における、熱泳動の寄与を数値計算によって検証した。

Figure 1 に、水中の直径 500 nm のポリスチレンナノ粒子に光勾配力および熱泳動力が作用した際の拡散挙動を示す。まず Fig. 1a では、時刻 $t = 0$ s において 500 個のナノ粒子が $40 \times 40 \mu\text{m}$ の x - y 平面の二次元領域にランダムに配置されている。この系では、回折限界まで集光された波長 1560 nm のレーザーによって x - y 座標の原点に勾配力が発生しつつ、水の光吸収による局所加熱で熱泳動も同時に誘起される。Fig. 1b には、レーザー照射開始から 60 秒経過時点のナノ粒子の位置を示す。この $t = 60$ s では、数個のナノ粒子が勾配力で x - y 座標の原点付近に捕捉されつつ、その近傍では熱泳動によってナノ粒子が押し出された枯渇領域があることが確認できた。講演では、レーザー波長や集光スポットサイズを変数とした際の捕捉挙動について詳細に議論する。

[1] D. G. Kotsifaki and S. N. Chormaic, *Nanophotonics*, **2022**, 11, 2199–2218.

[2] K. Ide et al., *ChemRxiv*, **2024**, DOI: 10.26434/chemrxiv-2024-10n14.

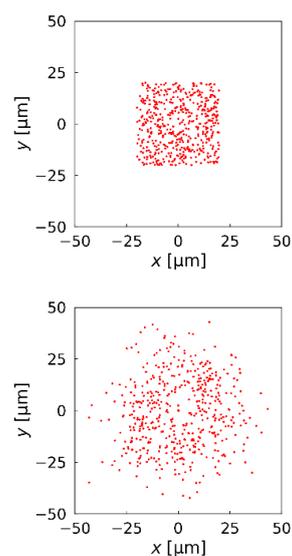


Figure. 1 (a) Initial positions of polystyrene nanoparticles. (b) Nanoparticle positions at $t = 60$ s.

周辺屈折率に応じて光圧方向を制御するプラズモニック構造の実現

Demonstration of plasmonic nanostructures capable of controlling the direction of optical forces according to the surrounding refractive index

北大電子研 ○(B)渡邊 柗人, 太田 竜一, 片山 司, 田中 嘉人

RIES, Hokkaido Univ., °Shuto Watanabe, Ryuichi Ohta, Tsukasa Katayama, Yoshito Tanaka

E-mail: watanabe.shuto.b9@elms.hokudai.ac.jp

我々はこれまで、金属ナノ構造の局在プラズモン共鳴により散乱光の運動量を制御し、その反跳としてナノ構造に働く光圧よりマイクロマシンを駆動する、プラズモニックナノアクチュエータを世界に先駆けて創出してきた[1]。この光圧はナノ構造の向きで力の方向を制御できるため、従来法のようにレーザービームの集光・操作を必要としない光駆動が可能である。これにより光マイクロマシンの小型化・集積化が期待されるが、Lab-on-a-chip の流体制御デバイスへの応用に向けては、流れてくる物質の種類に応じた動作の制御が求められる。そこで本研究は局在プラズモン共鳴の高感度センシング機能に着目し、周辺屈折率変化に応じた散乱光の運動量制御により自ら光圧の向きを変えるプラズモニックナノ構造を実現した。これにより周辺環境に応じて自律的に動作を制御する光マイクロマシンが可能になり従来にない全く新しい応用展開が期待される。

本研究で提案するナノ構造は長さの異なる金ナノロッドペアからなり、その片方は Al_2O_3 に覆われている(図 1(a))。この構造は、ナノロッド間のプラズモン振動の位相差により、左右の光散乱で非対称な干渉が生じ高い指向性の側方光散乱を示す[2]。実験では試料の上方からレーザー光を照射し、その散乱パターンを油浸対物レンズ(NA:1.49)と CMOS カメラを用いてフーリエ像として測定した。図 1(b)は大気中($n=1.00$)で測定した散乱光の強度分布であり、-1 次方向に高い指向性を示すことがわかる。次に試料を水($n=1.33$)に浸し同様の実験を行ったところ、 Al_2O_3 で覆われていない片方のロッドの共鳴波長のみが長波長シフトすることによりロッド間のプラズモン振動の位相差の符号が変化し、その結果散乱光の指向性は+1 次方向に逆転した(図 1(c))。図 1(d)は大気中と液中における ± 1 次方向の散乱光の強度比の波長依存性であり、100nm 程度の波長域で屈折率変化に応じて散乱光の運動量の方向、つまりその反跳光圧の方向が反転することが確かめられた。

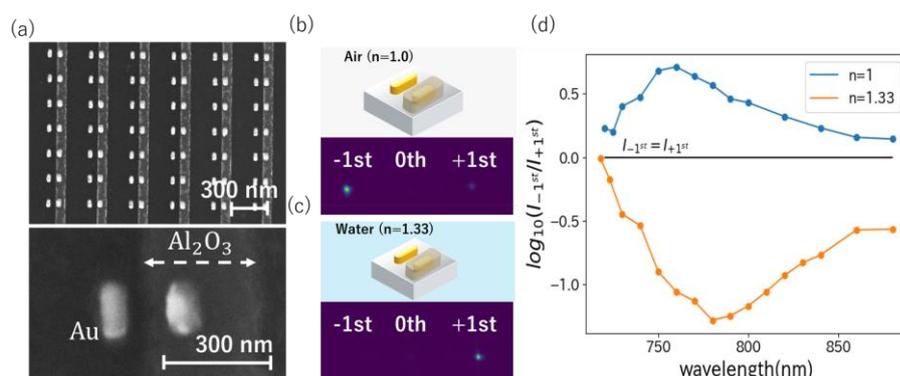


Figure 1(a): Scanning electron microscope (SEM) images of gold nanorod pairs. The shorter rods are covered by Al_2O_3 . Fourier space images of directional scatterings measured in air (b) and in water (c). (d) Wavelength dependence of the ratio of the light intensities in -1st direction (I_{-1}) to those in +1 direction (I_{+1}). The blue (orange) dots are measured in air (water) ambient conditions.

[1] Y. Y. Tanaka *et al.*, *Sci. Adv.* 6, eabc3726 (2020). [2] A. B. Evlyukhin *et al.*, *Nano Lett.* 10, 4571 (2010).

金ナノ粒子結合による溶液表面における光捕捉誘起 α シヌクレイン液滴形成の促進
**Enhancement of Optical Trapping-Induced α -Synuclein Condensate Formation
 at Solution Surface by Gold Nanoparticle Conjugation**

National Yang Ming Chiao Tung Univ., Taiwan¹, Kobe Univ., Japan²

°Keisuke Yuzu^{1,2}, Eri Chatani², Hiroshi Masuhara¹

E-mail: yuzu@nycu.edu.tw

Optical trapping, a technique to manipulate micro- and nanoparticles by mechanical force with a focused laser, has been developed in various research fields from optics to biology. Based on optical trapping, we have studied on optically evolved assembly of nanoparticles on solution surface, where nanoparticles assemble and grow beyond the laser focus area¹. We have previously discovered that lysozyme forms concentrated assembly in a supersaturated solution by optical trapping at solution surface², even though protein molecules are typically too small for optical trapping. In addition, we have recently found the optical trapping-induced formation of a single liquid-like condensate of α -synuclein at solution surface in its unsaturated condition³. Here, we attempted a more effective α -synuclein condensate formation by conjugating gold nanoparticles (Au NPs), which have high polarizability due to surface plasmon resonance and are thus strongly optically trapped. In the presence of 10 nm Au NP-conjugated α -synuclein, condensate was formed with a lag time of approximately 30 sec by optical trapping. In contrast, without conjugation, a lag time of approximately 300 sec was required (Figure 1). Moreover, the condensate formed unstably and immediately deformed in the presence of free gold nanoparticles. These observations suggest that the conjugation of Au NPs is effectively promotes stable condensate formation.

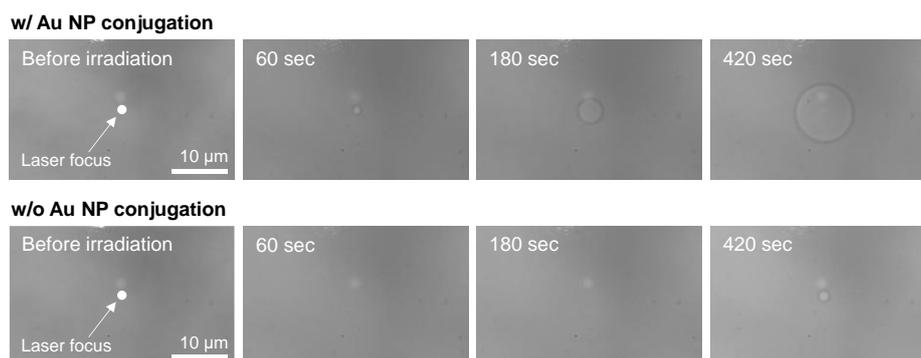


Figure 1. Transmission images of α -synuclein condensate formation by optical trapping at solution surface in the presence and absence of $1 \times 10^{-5} \%$ 10 nm Au NP-conjugated α -synuclein. Sample solutions containing 200 μ M α -synuclein, 25 mM Tris-DCI (pD 7.4), 100 mM NaCl and 7.5% PEG.

References

1. Masuhara and Yuyama, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **72**, 565-589 (2021)
2. Yi et al., *J. Phys. Chem. C* **125**, 18988-18999 (2021)
3. Yuzu et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **121**, e2402162121 (2024)

温度応答性ポリマーによるシリコンナノ粒子からなる Supraparticle の光学特性制御

Control of Optical Properties of Supraparticle Composed of Silicon Nanoparticles with Temperature-Responsive Polymer

神戸大院工¹, °(B4)河野 晋太郎¹, Vu Thi Oanh¹, 杉本 泰¹, 藤井 稔¹

Kobe Univ.¹, °Shintaro Kono¹, Vu Thi Oanh¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹

E-mail: sugimoto@eedept.kobe-u.ac.jp

結晶シリコンナノ粒子は、高い屈折率(~ 4)と低い消光係数を持ち、可視域で磁気・電気双極子共鳴を示すことが知られている。当研究室で開発したコロイドシリコンナノ粒子は高い真球性とコロイド安定性を持つ[1]。前回の講演で粒子を球状に自己組織化させた Supraparticle(図 1)を開発し、サイズに依存した反射特性を明らかにした[2]。また、Supraparticle 形成後に熱酸化によりナノ粒子表面に酸化膜を形成し、粒子間の距離を変化させることで光学特性が変化することを明らかにした。本研究では、能動的に構成粒子間の距離を制御する技術を開発し、単一構造の光学特性について実験と理論の両面から明らかにする。

今回、表面に温度応答性ポリマー(PNIPAM)を修飾したシリコンナノ粒子から Supraparticle を作製した。この Supraparticle に、波長 405 nm のレーザーを照射しシリコンナノ粒子の温度を増加させることで、図 2(a)のように粒子間距離を制御する。図 2(b)に、レーザー照射 ON/OFF における溶液中の単一 Supraparticle の光学顕微鏡像(反射)を示す。レーザー照射前の Supraparticle のサイズは約 20 μm であるのに対して、レーザー照射時には約 12 μm に収縮している。そして、Supraparticle の反射は緑色から黄色に変化していることがわかる。これは、Supraparticle 内の PNIPAM の密度が変化し、シリコンナノ粒子間の距離が小さくなったためであると考えられる。尚、レーザーを再び OFF にすると、照射前と同程度のサイズに戻り、可逆的であることがわかる。講演では、顕微分光測定とシミュレーションから得られた反射スペクトル特性を比較し、反射色変化のメカニズムについて議論する。

[1] Sugimoto, *et al.*, *Adv. Opt. Mater.*, 8, 12, 2000033 (2020).

[2] 河野他, 2024 年第 85 回応用物理学会秋季学術講演会, 16p-A32-12

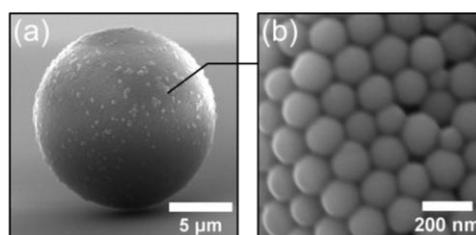


Figure 1. (a) SEM image of a supraparticle composed of Si nanospheres with tilted angle of 80°. (b) Enlarged image around the surface.

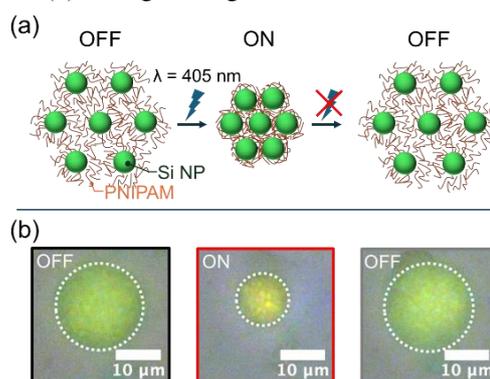


Figure 2. (a) Schematic of optical heating of a supraparticle by laser irradiation. (b) Reflection images of a single supraparticle before (black), during (red), and after laser irradiation (gray).

Optical Sorting and Spectroscopy of Micro and Nanospheres Containing Carbonyl Bonds with Mid-Infrared Optical Force

Toyota Tech. Inst.¹, Kyoto Univ.², Yoshua Albert Darmawan¹, Taiki Yanagishima², Takao Fuji¹,
Tetsuhiro Kudo¹
E-mail: kudo@toyota-ti.ac.jp

Introduction Recent studies have explored the use of resonantly enhanced optical forces in the mid-infrared (mid-IR) spectral region for sorting particles based on molecular vibrational resonance with a single wavelength mid-IR laser.^[1,2] Herein, we employed a tunable continuous-wave quantum cascade laser (CW-QCL) to specifically target the carbonyl (C=O) bond vibrational mode in PMMA and cross-linked TPM (3-trimethoxysilyl)propyl methacrylate) micro- and nanospheres. By monitoring velocity variation across different wavenumbers, we were able to reconstruct the mid-IR spectra of the micro- and nanospheres (velocity spectra), demonstrating a novel approach to combine optical manipulation with molecular-level spectroscopy.

Experiment A 5.6 - 6.4 μm (1782-1562 cm^{-1}) CW-QCL was introduced into an attenuated total reflection (ATR) setup to generate an evanescent field on a silicon prism surface. The evanescent field can exert optical force and accelerate micro- and nanospheres along the laser propagation direction. We employed microspheres containing carbonyl bonds with an absorption peak at 1750 - 1650 cm^{-1} . The trajectories and velocities of individual microspheres were recorded using a camera, and the obtained videos were analyzed using the Trackpy Python package.

Results and Discussion We have experimentally demonstrated the optical force spectroscopy of PMMA and TPM micro- and nanospheres using a mid-infrared evanescent field that excites the carbonyl group's vibrational modes. The velocities of the manipulated PMMA and TPM spheres at different laser wavenumbers, along with their velocity spectra, correlate well with the absorbance spectra obtained from conventional ATR-FTIR spectrometers, as shown in Fig. 1. Notably, the relative magnitudes and peak positions of the spectra are accurately reproduced, allowing us to sort carbonyl bonds with different bond environments. This demonstrates that optical chromatography can identify carbonyl groups in diverse environments and enables single-particle mid-infrared spectroscopy by analyzing the macroscopic motion of the spheres.

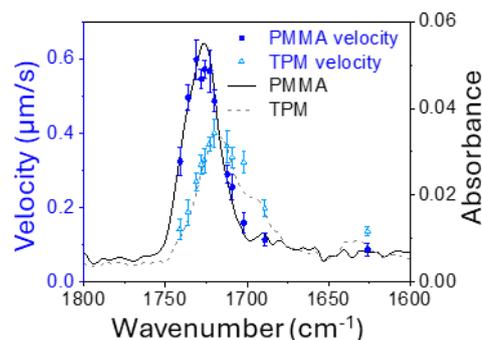


Figure 1. Velocity spectra of PMMA and TPM microspheres in the evanescent field and their respective ATR-FTIR spectra.

References

- 1) A. Statsenko, Y. A. Darmawan, T. Fuji, T. Kudo, Phys. Rev. Appl. **18**, 054041 (2022).
- 2) Y. A. Darmawan, T. Goto, T. Yanagishima, T. Fuji, T. Kudo, J. Phys. Chem. Lett. **14**, 7306-7312 (2023).

中赤外分子振動共鳴光輸送：青方離調における反射の影響

Mid-Infrared Molecular Vibrational Resonance Optical Manipulation:

The Effect of Reflection with Blue-Detuned Laser

豊田工大¹, 京大² 後藤 拓真¹, ダルマワン ヨシュア アルバート¹,

柳島 大輝², 藤 貴夫¹, 工藤 哲弘¹

Toyota Tech. Inst.¹, Kyoto Univ.², T. Goto¹, Y. A. Darmawan¹, T. Yanagishima², T. Fuji¹, T. Kudo¹

E-mail: kudo@toyota-ti.ac.jp

中赤外領域は分子指紋領域として知られており、分子種や分子構造、周辺環境の僅かな違いが、赤外吸収スペクトル上で大きな違いとして現れる。一般に光マニピュレーションの研究では、可視域や近赤外域の光を利用することが主流であるのに対し、近年我々は中赤外領域における分子振動共鳴を利用した中赤外光マニピュレーションの研究を開始している[1, 2]。これまでの研究では、分子種の異なる四種類の微粒子(シリカ、TPM、PMMA、ポリスチレン)を準備し、波長 9.3 μm の中赤外レーザーで、シリカと TPM を構成する Si-O-Si 結合を励起し、各粒子の輸送速度が吸光度に正比例することを見出した。分子種に応じた光選別を可能にする技術である。

共鳴励起に基づく現象において波長依存性を調べることは重要な基本事項であり、本研究では波長を少し逸らした 8.9 μm のレーザーによる実験を行い、各微粒子の輸送速度を評価した。図 1(a) の赤外吸収スペクトルより、波長 8.9 μm におけるシリカの吸光度は波長 9.3 μm のものに比べて小さいことがわかる。図 1(b)に示すように、輸送速度と吸光度は概ね“線形”な関係にあり、先行研究[2]の結果と良く対応する。しかし、シリカ微粒子を 8.9 μm レーザーで輸送したときのみ線形性から外れ、予想値よりもより速く進むことが明らかとなった(図 1(b), 青丸のデータとピンクの矢印を参照)。図 1(c-e)は輸送された微粒子の軌跡を示したものであり、8.9 μm レーザーを利用した方が微粒子は遠くに輸送される。この傾向は微粒子のサイズが小さくなるほど顕著に現れる。ダイポール近似による輻射力の計算を行い、電場と分極の位相関係を調べることで、青方離調(共鳴ピークよりも短波長側)における反射が影響していることがわかった。本成果は、分子振動共鳴付近における輻射力が反射の影響で、飛躍的に増大することを初めて示した成果である。

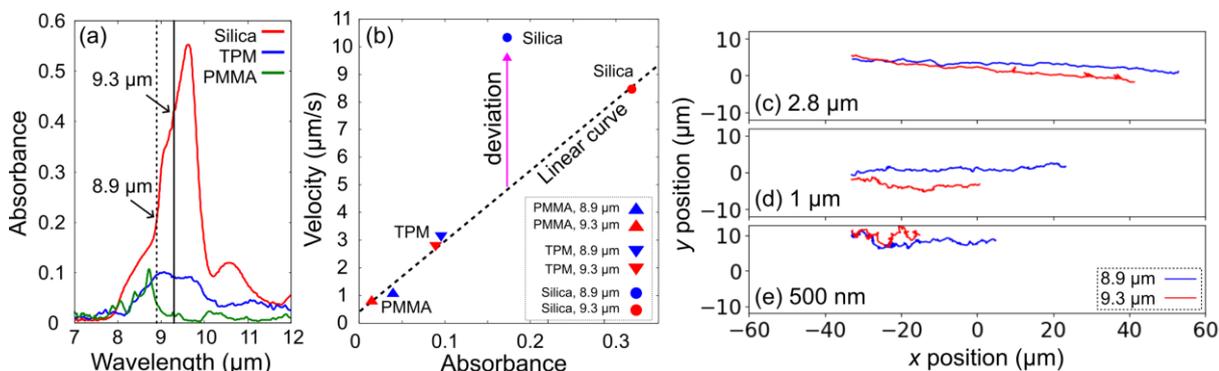


図 1 (a) 各微粒子の赤外吸収スペクトル(微粒子の直径は約 2.8 μm)。 (b) 微粒子の速度と吸光度の関係性。 (c-e) 両波長におけるシリカ微粒子 (直径は 2.8 μm , 1 μm , 500 nm) が光輸送されたときの軌跡。

[1] A. Statsenko, Y. A. Darmawan, T. Fuji, T. Kudo, Phys. Rev. Appl. **18**, 054041 (2022).

[2] Y. A. Darmawan, T. Goto, T. Yanagishima, T. Fuji T. Kudo, J. Phys. Chem. Lett. **14**, 7306 (2023).

Theoretical analysis of the role of triplet-triplet annihilation in triplet-state-based optical manipulation

Yoshiki Umekawa¹, Takao Horai¹, Roger Bresolí-Obach², Hajime Ishihara¹

Dept. of Mater. Eng. Sci., Osaka Univ.¹, Dept. of Appl. and Anal. Chem., Institut Químic de Sarrià,
Universitat Ramon Llull²

E-mail: umekawa.y@opt.mp.es.osaka-u.ac.jp

Since Ashkin's pioneering work on the trapping of microparticles using a strongly focused beam, optical manipulation has been extensively studied. However, manipulating nanoscale materials that are small and interact weakly with light poses challenges that require further enhancement of optical forces. One promising approach to address this challenge is the optical resonance effect (ORE), which increases optical forces by illuminating the material with light resonant with the excitation energy of a material's excited state [1]. While the application of ORE has traditionally been limited to singlet states, recent experimental successes in utilizing ORE in triplet states have been reported, resulting in a significant increase in the efficiency of optical manipulation [2]. Specifically, the study focused on Phenalenone molecules embedded to polystyrene spheres, with their energy-level structure is illustrated in Figure 1. States $|1\rangle$ and $|3\rangle$ correspond to the ground and excited states of the singlet states, respectively, while states $|2\rangle$ and $|4\rangle$ correspond to the ground and excited states of the triplet states. A key feature of this system is that triplet-state electrons are efficiently quenched by oxygen in the medium, rapidly relaxing to the ground state. Using a chemical stimulus to reduce the oxygen concentration and extend the lifetime of the triplet state $|2\rangle$, we demonstrated for the first time an enhancement of ORE, further improving the efficiency of optical manipulation.

In a previous study, we reported qualitative agreement between experimental results and theoretical predictions for this mechanism [3]. However, that study provided only a phenomenological explanation for the observed decrease in optical force under high-intensity excitation light, which was attributed to the saturation of triplet-state electron populations [4]. In this presentation, we hypothesize that this decrease is caused by triplet-triplet annihilation (TTA) and propose a new theory for optical manipulation incorporating TTA effects. The new theory explains the reduction in triplet-state electron populations and the corresponding decrease in optical force, which could not be captured by conventional theories. Building on these insights, we will also discuss changes observed when switching the light source from a CW laser to a pulsed laser, proposing a more efficient optical manipulation method. This study provides crucial insights for further enhancing the efficiency of ORE-based optical manipulation using triplet states.

[1] T. Iida and H. Ishihara, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 057403 (2003).

[2] R. Bresolí-Obach, S. Nonell, H. Masuhara, and J. Hofkens, *Adv. Optical Mater.* **10**, 2200940 (2022).

[3] Y. Umekawa, T. Horai, R. Bresolí-Obach, and H. Ishihara, The 71st JSAP Spring Meeting, Oral presentation 23p-12B-8 (2024).

[4] M. A. Baldo, C. Adachi, and S. R. Forrest, *Phys. Rev. B* **62**, 10967 (2000).

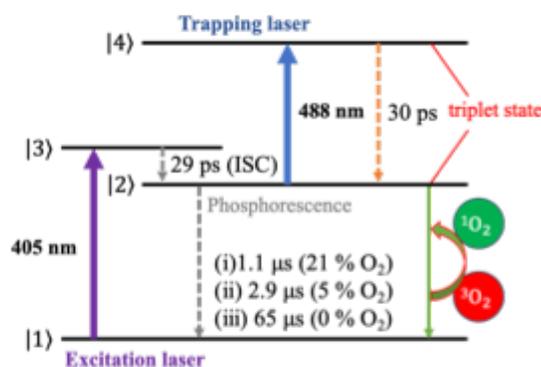


Fig. 1 Energy level structure of Phenalenone

誘導放出による反跳力を利用したナノ粒子の回転方向の制御

Control of Rotational Direction of Nanoparticles Using Recoil Force Generated by Stimulated Emission

阪大院基礎工

○蓬萊 貴大, 梅川 佳己, 芦田 昌明, 石原 一

Dept. of Mater. Eng. Sci., Osaka Univ.

○Takao Horai, Yoshiki Umekawa, Masaaki Ashida, Hajime Ishihara

E-mail: horai.t@opt.mp.es.osaka-u.ac.jp

ナノ粒子に働く光圧はマイクロ粒子に働く光圧と比較して極めて小さいため、例えば室温の溶媒中で安定した光圧操作を行うためには光圧を増強させる必要がある。この目的のために、局在表面プラズモン共鳴によって光電場を増強させる手法 [1]や、電子の遷移エネルギーに光を共鳴させる手法 [2]などが注目されている。これらの手法による光圧操作は、基本的にはナノ粒子の吸収あるいは散乱現象を利用しているが、近年、我々は発想を転換して、発光による光圧操作に注目している。本発表では、その1つとして、誘導放出による反跳力を利用した光圧操作に焦点を当てる。この反跳力は以前に我々が理論的に提案していたが [3]、近年実験的にも実証された [4]。

誘導放出による反跳力を利用する大きな利点の1つは、吸収飽和の影響を回避できるため、高強度のレーザー照射下でも光圧が飽和しないことにある。一方で、高強度のレーザーを照射すると、対象物質が色素分子などの場合には光褪色を起こすという課題がある。しかし、堅牢な構造に起因して光褪色が起きない NV 中心含有ナノダイヤモンド (NV-ND) が対象の場合にはこのことは問題にならない。以前より我々のグループでは、ナノ粒子に励起光を照射した上で、Laguerre-Gaussian ビーム (LG ビーム) を照射することで反跳力が生じ、ビーム軸方向の運動だけでなく、回転方向も通常とは逆向きになることを理論的に提案していた [5]。しかし対象は色素分子としており、室温の水中でどの程度力が有効であるかについて定量的な議論は行っていなかった。そこで本研究では、直径 50 nm の NV-ND に対して LG ビームを用い、安定的な捕捉の下で、反跳力による回転運動の反転が実験的に検証可能であることを定量的に示した。

本発表で想定する系として、 $l = 1$ および $l = -1$ の励起 LG ビームを同一方向から照射し (強度はそれぞれ 600 mW、500 mW)、励起 LG ビームによる回転を相殺した上で、 $l = 1$ の誘導 LG ビームを照射する (強度: 500 mW)。この条件下では室温の水中であっても NV-ND が勾配力によって 3 次元的に安定して捕捉され、更に誘導放出によって回転運動が反転することを動力学シミュレーションによって明らかにした。近年のナノ粒子のトラッキングの技術を駆使すれば [6]、本結果は実験的に観測可能であることが期待される。今回の結果は、ナノ物質の回転運動の新規な制御手法の実現に結びつくものである。

[1] *ACS Photonics* **11**, 321 (2024). [2] *Adv. in Phys.: X* **6**, 1885991 (2021). [3] *Phys. Rev. Lett.* **109**, 087402 (2012).

[4] *Chem. Sci.* **14**, 10087 (2023). [5] *Opt. Express* **28**, 14980 (2020). [6] *Nano Lett.* **21**, 6268 (2021).

非局所応答理論によるキラルナノ粒子に働く共鳴光圧の理論

Theory of Resonant Optical Force Acting on Chiral Nanoparticles Based on Non-Local Response Theory

阪大院基礎工

○蓬萊 貴大, 石原 一

Dept. of Mater. Eng. Sci., Osaka Univ.

○Takao Horai and Hajime Ishihara

E-mail: horai.t@opt.mp.es.osaka-u.ac.jp

光圧を用いたキラル物質の分離は近年注目を集め、活発に研究されている。マイクロメートルサイズのキラル液晶に対しては、実験によって分離に成功しているが [1]、ナノメートルサイズのキラル物質の実験的な分離は依然として挑戦的な課題であり、局在表面プラズモン共鳴を用いた分離等、多くの理論提案が行われている [2]。しかし、先行研究で光圧を評価する際には、例えば螺旋構造などの幾何学的な構造に由来して生じる光学活性の効果は、Pasteur パラメータと呼ばれるパラメータにその効果を丸め込むことで評価されてきた。そこで以前、我々は、対象のキラル物質の微視的空間構造を取り入れた光圧の定式化を行なった [3]。具体的には、実在するキラル分子である Tröger 塩基型ポルフィリン分子二量体を結合遷移双極子としてモデル化することで、実験から得られた CD スペクトルとの比較を行い、理論の妥当性についても検証した。しかし、理論では相互作用 Hamiltonian として $-\int d\mathbf{r} \mathbf{P}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ を与え、磁化による効果を省略する近似を行った。そこで本発表では、相互作用 Hamiltonian に磁化による効果 $-\int d\mathbf{r} \mathbf{M}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ も考慮し、より一般的な理論に拡張した。拡張した理論では、分極および磁化は非局所的に表現された電気感受率、磁気感受率、キラル感受率によって表現され、分極・磁化と電場・磁場を自己無撞着に決定する枠組みであるため、局在光場下などの長波長近似が成立しない場合でも適用できる。

本発表では、拡張した理論と以前我々が定式化した理論の比較を行う。例えば Tröger 塩基型ポルフィリン分子二量体など電気双極子モーメントが大きな分子に対しては、分極の空間構造を考えれば光圧はよく評価できることが明らかになり、以前の理論が良い近似になっているとの結果が得られている。しかし一方で、磁気双極子モーメントが大きくなるよう設計されたヘリセン [4]などを対象とした場合には、磁化による効果が無視できないことも明らかになった。これは拡張した理論の重要性を示唆するものであり、発表ではキラル光学効果において重要な役割を担う CD、ORD スペクトルと光圧スペクトルの関係についても議論する予定である。

[1] G. Tkachenko and E. Brasselet, *Nat. Commun.* **5**, 3577 (2014).

[2] Y. Zhao, A. A. E. Saleh, and J. A. Dionne, *ACS Photonics* **3**, 304 (2016).

[3] T. Horai, H. Eguchi, T. Iida, and H. Ishihara, *Opt. Express* **29**, 38824 (2021).

[4] H. Kubo, *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **12**, 686 (2021).

集光レーザービームの光圧によるリゾチーム結晶化と X 線結晶構造解析

Lysozyme Crystallization Induced by Optical Forces with a Focused Laser Beam and X-ray Crystallography

阪公大院理[○](M1)西室 愛実, 谷本 泰士, 増井 恭子, 宮原 郁子, 細川 千絵

Osaka Metropolitan Univ.,[○]Manami Nishimuro, Yasushi Tanimoto, Kyoko Masui, Ikuko Miyahara,
Chie Hosokawa

E-mail: sf24322t@st.omu.ac.jp

タンパク質溶液に近赤外レーザーを集光すると、光圧により局所的にタンパク質濃度が上昇し、タンパク質の結晶化が誘起される [1]。この手法は、結晶核生成確率の向上や結晶成長過程の時空間制御を目的とした新たなタンパク質の結晶化手法として注目を集めている。先行研究では、温度上昇が抑制される重水溶液を用いたタンパク質の結晶化が主であり、近赤外レーザーの光吸収に伴うタンパク質水溶液の温度上昇がタンパク質結晶の品質に与える影響は依然として明らかにされていない。そこで本研究では、ニワトリ卵白由来リゾチーム (HEWL) 水溶液および重水溶液に近赤外レーザーを集光し、レーザー照射後に生成した HEWL 結晶の X 線結晶構造解析を行うことにより、結晶中の HEWL の分子構造を評価した。

試料として、0.28–0.50 M 塩化ナトリウムを含む 0.1 M 酢酸緩衝液 (pH 4.7 および pD 5.1) を用いて 40 mg/mL HEWL 水溶液および重水溶液を調製した。波長 1064 nm の Nd:YVO₄ レーザーを倒立顕微鏡に導入し、100 倍油浸対物レンズ (開口数 1.3) によりガラス基板表面から 2–3 μm 上方の液中にレーザー光強度 500 mW の条件で 60 分間集光した (Fig. 1 (a))。レーザー照射中に結晶の生成は認められなかったが、レーザーオフ後 1 時間以内に集光領域近傍で HEWL 結晶が確認された。レーザー未照射溶液では 1 日後以降に HEWL 結晶が生成したことから、レーザー照射に伴い結晶が速く生成することを確認した (Fig. 1 (b))。生成された結晶を 30%(v/v) グリセロールを含むクライオプロテクトANT溶液下で抗凍結処理をした後、高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリーで X 線回折データを収集した。HEWL 水溶液または重水溶液中で生成したレーザーオフ後 2 日目の HEWL 結晶、およびレーザー未照射溶液から生成した結晶に対して構造解析を行った。すべての HEWL の分子構造において、主鎖を構成する原子を約 0.1 Å の標準偏差で重ね合わせることができ、生成された結晶における分子構造は同一であることが示された。レーザー照射により得られた HEWL 結晶は構造解析に十分な品質であり、HEWL 水溶液と重水溶液から生成した結晶の分子構造に差異は無く、近赤外レーザー照射による HEWL 分子の損傷は無いことが明らかとなった。

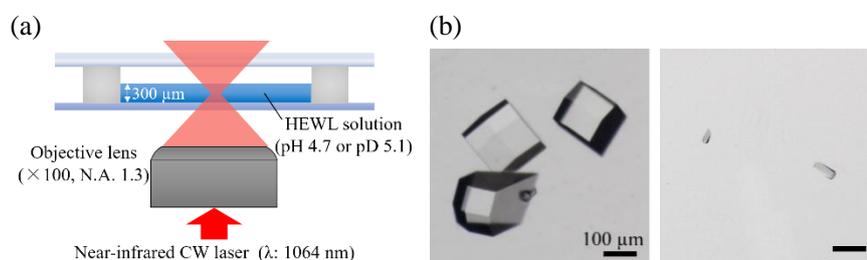


Fig. 1 (a) Schematic image of HEWL crystallization induced by near-infrared CW laser irradiation. (b) HEWL crystals 3 days after laser irradiation (left) and without laser irradiation (right). The laser power is 500 mW. The NaCl concentration is 0.46 M.

[1] T. Sugiyama, S. Wang, *J. Photochem. Photobiol. C*, 52, 100530 (2022).

Dynamic optical matter of gold nanoparticles prepared by optical trapping in plastic pattern

Dept. Appl. Chem.1 and Dept. Biol. Sci. Tech.2, National Yang Ming Chiao Tung Univ., Taiwan1,2

○ Pin-Hsun Huang¹, Mu-En Li¹, Chi-Shan Lu², Chih-Hao Huang¹, Henryk Witek¹, Peng-Chin Tsai², Hsin-Ni Wu², Ming-Chia Li², Hiroshi Masuhara¹

E-mail: s9605dianel@gmail.com

Optical trapping, which uses a tightly focused laser beam to confine tiny objects, enables precise manipulation of materials and the exploration of microscopic phenomena. In our recent studies, we observed a dynamic behavior of gold nanoparticles (Au NPs) at the glass/solution interface. We identified a dynamic optical binding network as the basis for the "optical trapping and swarming"¹ of Au NPs, which expands perpendicular to the linear polarization of the trapping laser, now described as "dynamic optical matter"².

Using microchannels, we aimed to compress and precisely control the morphology of Au NPs in optical trapping and swarming, exploring applications of dynamic optical matter. Polycaprolactone (PCL) plastic patterns were fabricated via Melt Electrospinning Writing (MESW)³. Microchannels with variable widths and heights of a few micrometers confined the 400 nm Au NPs. When irradiated with a 1064 nm laser, the Au NPs formed dynamic optical matter within the pattern structures. After 3 minutes of irradiation, the optical matter evolved into a dumbbell-shaped morphology show dynamic fluctuations and migration of Au NPs (Fig. 1a). The plastic patterns allowed morphology control, enabling compression or extension of the optical matter (Fig. 1b, 1c). This study shows how microchannels can flexibly manipulate optical matter, facilitating the formation of various structures such as disk-like, dumbbell-shaped, and triangular assemblies. This control over optical trapping and dynamic optical matter offers a new way for creating customizable optical structures.

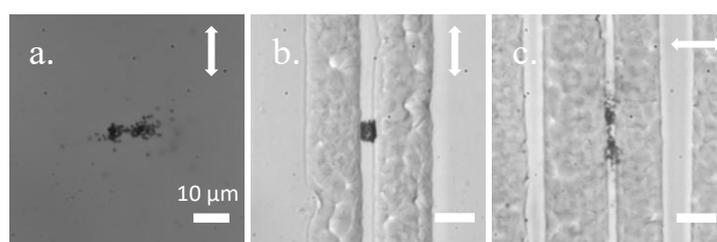


Figure 1. Linearly polarized laser irradiates for 3 minutes. The arrows represent the laser polarization direction. (a) The dynamic optical matter in free space. The dynamic optical matter in plastic microchannel with width of (b) 3.2 μm and (c) 2.4 μm .

1. T. Kudo, S.-J. Yang, H. Masuhara, *Nano Lett.*, **2018**, 18, 5846–5853
2. Burns, M. M., Fournier, J., & Golovchenko, J. A., *Adv. Sci.*, **1990**, 249, 4970
3. Brown, T.D., Dalton, P.D. and Hutmacher, D.W., *Adv. Mater.*, **2011**, 23: 5651-5657.