

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「独創的原理に基づく革新的光科学技術  
の創成」  
研究課題「光渦が拓く超解像スピソジェット技術」

## 研究終了報告書

研究期間 2019年10月～2025年03月

研究代表者:尾松 孝茂  
(千葉大学 大学院工学研究院 教授)

## § 1 研究実施の概要

### (1) 実施概要

多様な粘度を示す液膜に光渦を照射すると、液膜が自転しながら光渦の中心に向かって集まり、極細の連続的な物質の流れへと構造化することを発見した。この現象をスピンジェット現象と呼ぶ。スピンジェット現象を活用したダイレクトプリント技術をここでは、光渦レーザー前方転写法 (Optical Vortex Laser Induced Forward Transfer, OV-LIFT) と呼ぶ。

プリンタブルエレクトロニクスで用いられている金あるいは銀ナノインク(金属ナノ微粒子直径~150nm)を OV-LIFT のドナーとして用いてマイクロパターニングを行った。ドナー液膜の粘度は金ナノインクで水の 10~10,000 倍、銀ナノインクは 10,000 倍に相当する。

金・銀ナノインクともに、光源に光渦を用いるとナノ微粒子が充填した良好な円形ドットが形成されること、光渦の全角運動量を大きくするとドットがより真円に近づくことを実証した。ドットは熱処理などをしなくとも十分な電気伝導度を示す。現時点での**最小ドット径~9 μm**(通常のインクジェット技術による印字サイズ~20 μm の半分以下)、**位置精度~5μm** が達成できている。

磁性体(フェライト)ナノインクをドナーに用いた場合、光渦の位相特異点に対応する部分に数ミクロン直径の微小単結晶(電子線回折像からスピナル構造を確認)を超解像印刷、さらには、2 次元パターニングできることを発見した。この**微小単結晶の直径は光渦の集光径の 1/7 程度**である。ガウスビームや軸対称偏光(光渦と同様に円環強度分布を有する)では決してできない、これらの高精細でかつ革新的なパターニングは、プリントド・ナノフォトニクスの進展に大きく寄与するものである。

さらには、窒素固定、太陽電池、バイオ燃料などの素材として注目を集めているシアノバクテリアのグリセロールと水の混合分散液をドナーとして OV-LIFT でガラス基板に転写した。特筆すべき点は、転写したドット中の**シアノバクテリア生存率が 90%**に達することである。一方、ガウスビームによる転写では、シアノバクテリアの生存率は~60%程度と低い。これらの結果から、バイオプリンティングにおける OV-LIFT の優位性は明らかである。

OV-LIFT に用いる光源のパルス幅をスピンジェット現象のタイムスケールよりはるかに短いパルス幅~130ps まで圧縮した。この場合、レーザーはスピンジェット現象のトリガーとしてしか機能しない。円環強度分布を持つ光渦では発生したキャビテーションバブルは比較的短時間で成長をやめて収縮し始める。その結果、圧縮圧力が液膜に働き、ジェットを吐出する。このことは、超高速時間分解イメージングの結果とも整合する。一方、ガウスビームはドナー液膜の過剰な局所過熱を誘導するため、キャビテーションバブルが急速に成長し、ブリストアを破碎してしまう。その結果、スピンジェット現象は起こらない。このように**キャビテーション過程の違いがスピンジェット現象の起源**であることが明確になった。

さらに、ピコ秒パルスレーザーを数ナノ秒遅延させたバブルパルス光源を構成した。ダブルパルス照射 OV-LIFT で発生するスピンジェットの直径は、単一パルス照射時の~1/3 程度と極細であり、スピンジェット現象の超解像性を飛躍的に向上させることが分かった。現在のところ、現象のメカニズムは不明であるが、プリント性能を飛躍的に向上させる新発見である。そこで、キャビテーションのプロセスを含む LIFT 過程のシミュレーションモデルを構築し、スピンジェット形成という現象の再現に成功している。

この他、ペロブスカイト結晶・マイクロレーザーのパターニング、新奇光渦モードの発生などで成果を得た。

### (2) 顕著な成果

#### <優れた基礎研究としての成果>

##### 1. OV-LIFT 過程の数値解析シミュレーション。

概要:OV-LIFT に用いる光源のパルス幅をスピンジェット現象のタイムスケールよりはるかに短いパルス幅~130ps まで圧縮した。この場合、レーザーはスピンジェット現象のトリガーとしてしか機能しない。円環強度分布を持つ光渦では発生したキャビテーションバブルは比較的短時間で成長をやめて収縮し始める。その結果、圧縮圧力が液膜に働き、ジェットを吐出する。このことは、超高速時間分解イメージングの結果とも整合する。一方、ガウスビームはドナー液膜の過剰な局所過熱を誘

導するため、キャビテーションバブルが急速に成長し、ブリスターを破碎してしまう。その結果、スピンジェット現象は起こらない。このようにキャビテーション過程の違いがスピンジェット現象の起源であることが明確になった。

さらに、ピコ秒パルスレーザーを数ナノ秒遅延させたバブルパルス光源を構成した。ダブルパルス照射 OV-LIFT で発生するスピンジェットの直径は、単一パルス照射時の $\sim 1/3$  程度と極細であり、スピンジェット現象の超解像性を飛躍的に向上させることが分かった。現在のところ、現象のメカニズムは不明であるが、プリント性能を飛躍的に向上させる新発見である。

この実験事実を踏まえ、キャビテーション過程を含む OV-LIFT のシミュレーションモデルを構築し、スピンジェット現象の再現に成功した。現在、論文執筆中である。

## 2. OV-LIFT におけるキャビテーション過程の可視化。

概要: 光渦パルス照射後に起こるキャビテーションの初期過程を市販の高速度カメラよりもはるかに高い時間分解能で可視化することに成功した。光渦が創るキャビテーションバブルは円環である。そのため、ガウスビームと異なり、バブルの時間発展は光渦の位相特異点方向に向かっても起こる。その結果、スピンジェットが形成されることを数ナノ秒の時間分解能で直接観測した。現在、論文執筆中である。

## 3. 光スキルミオンの物質転写。

概要: ポアンカレ球上に表現されるすべての偏光(ストークスベクトル)を二次元に投影したものを光スキルミオンと呼んでいる。光スキルミオンは磁気スキルミオンと同じく Neel、Bloch、Anti などの形状があり、光の準粒子状態として注目を集めているが、未だ物質との相互作用を積極的に観測した研究例は少ない。光スキルミオンを発生するレーザー技術を開発するとともに、光スキルミオンを偏光感受性があるアゾポリマーに照射した。その結果、光スキルミオンの持つメビウスの輪のような位相構造がレリーフの凹凸として転写できることを発見した。(*Optica* **11**, 769-775 (2024), *APL Photonics* **9**, 046104 (2024), *ACS Photonics* (in press), *Laser and Photonics Review* (in press))

### < 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

#### 1. OV-LIFT による超解像単結晶の転写。

概要: フェライト系磁性ナノインクを OV-LIFT によってガラス基板に転写すると、磁性インク中のフェライトナノ微粒子が焼結し、スピナル構造を持つ単結晶として転写されることを発見した。また、単結晶の直径は、光渦の集光ビーム径の  $1/7$  以下で超解像性を示すこともわかった。現在、転写された単結晶の最小径は現在  $2\mu\text{m}$  であるが、光渦の集光度を上げることでサブ  $\mu\text{m}$  の単結晶も転写できる可能性がある。さらに、この単結晶は光渦の軌道角運動量の向きに従い、捩じれた螺旋構造を示すこともわかった。この単結晶化は、光渦が誘導する  $\sim 1\text{MPa}$  レベルのキャビテーション圧縮圧で起こり、本質的には材料を選ばない。今後、磁性ナノインク以外の事例を探索する。

#### 2. OV-LIFT による高精細金属ナノインクの転写。

概要: プリントブルエレクトロニクスで標準使用されている金属ナノインクを OV-LIFT でガラス基板に転写すると、インクに分散されている金ナノ微粒子が焼結し、転写したドットがアニール処理なしでも十分な電気伝導度を示すことが分かった。この効果は、プリントブルエレクトロニクスデバイス開発の後工程を大幅に簡略化できる可能性がある。また、印刷されたドットは均一な円であり、その直径は光渦の集光ビーム径より小さい。最小転写ドット径は現在  $9\mu\text{m}$  であるが、光渦の集光度を上げることで数  $\mu\text{m}$  のドットも転写できる。ドットの位置合わせ精度も  $\sim 5\mu\text{m}$  と高精細な転写が可能である。

#### 3. OV-LIFT によるシアノバクテリアの転写。

概要: OV-LIFT を用いると、光合成活性を有するシアノバクテリアのグリセロール分散液を高生存率( $\sim 90\%$ )、高精度( $\sim 5\mu\text{m}$ )、高分解能( $\sim 36\mu\text{m}$ )でシアノバクテリアをガラス基板上に転写できることが分かった。ガウスビームを用いる通常の LIFT で得られる値(生存率 $\sim 60\%$ 、精度 $\sim 14\mu\text{m}$ 、分解

能~45 $\mu\text{m}$ )に比べて、これらの値ははるかに良好である。また、高い生存率を裏付けるデータとして、転写したシアノバクテリアの個体数は、40 日間で 2.5 倍まで増殖した。今後、OV-LIFT がバイオプリンティングの適用可能であることを示す有効な結果であるとともに、シアノバクテリアを活用したデバイス応用への展開も期待できる。

### <代表的な論文>

1. A. Kaneko, M. Iwata, R. Wei, K.-i. Yuyama, T. Omatsu, “Using optical vortex laser induced forward transfer to fabricate a twisted ferrite microcrystal array,” *APL Materials* **12**, 061116 (2024).

概要:フェライト系磁性ナノインクを OV-LIFT によってガラス基板に転写すると、磁性インク中のフェライトナノ微粒子が焼結し、スピナル構造を持つ単結晶として転写されることを発見した。また、単結晶の直径は、光渦の集光ビーム径の 1/7 以下で超解像性を示すこともわかった。現在、転写された単結晶の最小径は現在 2 $\mu\text{m}$  であるが、光渦の集光度を上げることでサブ $\mu\text{m}$  の単結晶も転写できる可能性がある。さらに、この単結晶は光渦の軌道角運動量の向きに従い、捩じれた螺旋構造を示すこともわかった。この単結晶化は、光渦が誘導する~1MPa レベルのキャビテーション圧縮圧で起こり、本質的には材料を選ばない。今後、磁性ナノインク以外の事例を探索する。

2. R. Wei, H. Kawaguchi, K. Sato, S. Kai, K. Yamane, R. Morita, K.-i. Yuyama, S. Kawano, K. Miyamoto, N. Aoki, T. Omatsu, “High-definition direct-print of metallic microdots with optical vortex induced forward transfer,” *APL Photonics* **9**, 036108 (2024).

概要:プリンタブルエレクトロニクスで標準使用されている金属ナノインクを OV-LIFT でガラス基板に転写すると、インクに分散されている金ナノ微粒子が焼結し、転写したドットがアニール処理なしでも十分な電気伝導度を示すことが分かった。この効果は、プリンタブルエレクトロニクスデバイス開発の後工程を大幅に簡略化できる可能性がある。また、印刷されたドットは均一な円であり、その直径は光渦の集光ビーム径より小さい。最小転写ドット径は現在 9 $\mu\text{m}$  であるが、光渦の集光度を上げることで数 $\mu\text{m}$  のドットも転写できる。ドットの位置合わせ精度も~5 $\mu\text{m}$  と高精細な転写が可能である。

3. K.-i. Yuyama, H. Kawaguchi, R. Wei, T. Omatsu, “Fabrication of an array of hemispherical microlasers using optical vortex laser-induced forward transfer,” *ACS Photonics* **10**, 4045-4051 (2023).

概要: OV-LIFT により転写したレーザー色素を含有する高粘度有機溶媒のマイクロドットが WG モードでレーザー発振することを実証した。自在に二次元配列できるマイクロレーザーアレイは、新しい光源として有効である。また、OV-LIFT が誘導するキャビテーション過程(ガウスビームが誘導するキャビテーションバブルに比べ、バブルそのものがはるかに小さく、かつ、急速に収束する)の観測にも成功し、OV-LIFT のメカニズムを明らかにする重要な結果が得られた。

## § 2 研究実施体制

(1)研究チームの体制について

1. 研究チームの体制について

### ①「千葉大学」グループ

研究代表者:尾松孝茂(千葉大学大学院工学研究院 教授)

分担者:宮本克彦(千葉大学大学院工学研究院 准教授)

研究項目

- ・多波長光渦光源の開発
- ・OV-LIFT 技術の確立
- ・新奇デバイスの創成

### ②「北海道大学」グループ

主たる共同研究者:山根啓作(北海道大学大学院工学研究科 准教授)

分担者:森田隆二(北海道大学大学院工学研究科 教授)

研究項目

- ・特殊光渦光源の開発
- ・超高速単一ショット時間分解イメージング技術の開発

### ③「大阪大学」グループ

主たる共同研究者:川野聡恭(大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

分担者:田村 守(大阪大学大学院基礎工学研究科 助教)

研究項目

- ・スピンジェット現象の流体力学的解明
- ・スピンジェット現象に立脚した OV-LIFT を MEMS 化する方法論の提案

### ④「大阪公立大学」グループ

主たる共同研究者:柚山健一(大阪公立大学理学部化学科 講師)

研究項目

- ・マイクロレーザアレイなどのデバイス開発
- ・ペロブスカイト単結晶などのアレイ構造を作製する方法論の提案

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

#### 【国内研究者ネットワーク】

令和4年度科学研究補助金学術変革領域研究 A「光の螺旋性が拓くキラル物質科学の変革」(領域代表 尾松孝茂)が採択された。千葉大学を中心に分子科学研究所・大阪大学・大阪公立大学・北海道大学・東北大学などの計画研究チームと連携しながら、光渦の角運動量による物質科学を中心とした研究拠点を形成している。また、令和2年に立ち上げた光渦研究会では、放射光やテラヘルツ波などの異分野研究者との交流による新しいアイデア発掘に尽力している。

#### 【産業界共同研究ネットワーク】

複数の企業から社会人博士、研究員を受入れ、共同研究を実施している。また、シリコンフォトニクス用プリント技術指導などの依頼も受けている。さらに、OV-LIFT 技術の社会還元のための技術移転・技術指導を担当する合同会社 Structured Light を創業し、代表社員に就任した。

#### 【海外研究ネットワーク】

国際ネットワークの強化を狙い、2014 年より、Optics & Photonics International Congress (OPIC)の国際会議として Optical manipulation and structured materials conference(OMC)をパシフィコ横浜において主催してきた。毎年、100 名近い参加者があり、うち海外からの参加者は 30%を超える。OMC 国際会議は来年 2023 年には 10 周年記念開催を迎えた。また、2017 年より、SPIE Optics + Photonics の国際会議として Molecular and Nanophotonic Machines, Devices, and Applications (SPIE)を主催してきた。

さらに、国立陽明交通大学・台湾との Joint Workshop on Structured Light and Matters、アデレード大学・豪州との Joint Symposium on Structured Light for Life、千葉大学-亜細亞大学校(韓国)との Joint Symposium などを毎年実施している。

また、これまでに数多くの国際共同研究(英国・ポーランド・スペイン・ドイツ・インド・中国)を実施あるいは予定し、国際ネットワークを拡充している。