

光放射圧下の分子の拡散挙動：
蛍光相関分光法とブラウン動力学シミュレーションによる検討

(阪大院基礎工・阪大極量セ) 伊都将司、問谷直希、宮坂博

【序】 コヒーレントな光を液中の粒子に照射した際、粒子には分極（双極子）が誘起され、この双極子と光電場との相互作用により粒子には力（光放射圧）が働く。この光放射圧を利用した光ピンセット技術は、一般にマイクロメートルサイズの細胞、微粒子操作に用いられているが、ナノ粒子や高分子にも光放射圧は有効的に作用することが示されている [1-3]。我々は光と分子・ナノ粒子との力学的相互作用の定量的理解を目指し、蛍光相関分光法（FCS）による光放射圧下での分子の局所的な濃度や拡散速度の測定を行ってきた。しかしながら、粒子を球形と仮定する従来のシンプルな理論をこのような分子系の実験結果の解析にそのまま適用することはできず、また捕捉用レーザー光の吸収に伴う溶液の温度上昇等も存在するため定量的な議論は困難である。そこで光放射圧ポテンシャル下における分子の拡散を蛍光相関分光法でモニターすると共に、実際の実験系を計算機シミュレーションで再現し、それらの結果を比較することで光放射圧による捕捉効果を検討している。

【実験・シミュレーション】 実験では、光トラッピング条件下において、捕捉用レーザー光の集光スポット内の蛍光分子の並進拡散挙動を蛍光相関分光法を用いて測定し、観測領域内に分子が留まる平均時間（平均滞在時間）、平均分子数の光強度依存性を得た。

シミュレーションにおいては、分子の並進拡散をブラウン動力学法により再現した。ランジュバン方程式から導かれる方程式(1)によって、時間 τ 経過したときの分子の位置がランダム変位と摩擦係数および外部力によって表すことができる。ランダム変位は正規分布に従うため、0 から 1 までの一様乱数を 2 つ用いて表すことができ、繰り返し計算させることにより粒子拡散を再現した。

$$r(t+\tau) = r(t) + \frac{1}{\xi} \eta(t) + \Delta r^B \quad (1)$$

放射圧ポテンシャルの形状は光強度分布を反映するためガウシアン型であると考え、ポテンシャル内で分子が受ける放射圧の大きさは、分子の存在する位置におけるポテンシャルの導関数から計算した。このようなポテンシャル場中を並進拡散する蛍光分子が、励起光の光強度分布に依存した確率で光子を放出し、放出された光子を 200 ns

の bin 時間で計数するとして実験系を再現し、得られた光子数の時間変化から自己相関関数を計算した。

【結果・考察】 図1に示すように、放射圧存在下においてはポテンシャルの深さに依存した蛍光相関波形の変化が見られた。このとき、放射圧ポテンシャルの増加と共に溶液の局所温度も上昇するとしてシミュレーションを行った。得られた相関波形を解析することで、平均滞在時間と平均分子数の放射圧ポテンシャル深さ依存性を得た(図2)。その結果、温度上昇の効果により分子の拡散速度が上昇するため平均滞在時間は僅かに減少し、一方分子数は増加した。これと同様の傾向が、非共鳴条件下において数十個の塩基対から成る1本鎖DNAの水溶液で観測されており、定性的にはあるが実験結果を再現できていると考えられる。講演では、他のパラメーターに対する依存性とともにより詳細な実験結果・シミュレーション結果を示し、双方を比較しながら分子系に作用する光放射圧の大きさや有効性について考察を行う。

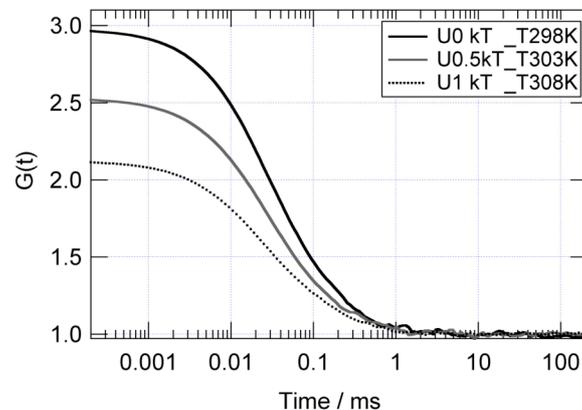


図1 シミュレーションにより得られた放射圧ポテンシャル中の分子の蛍光相関波形。

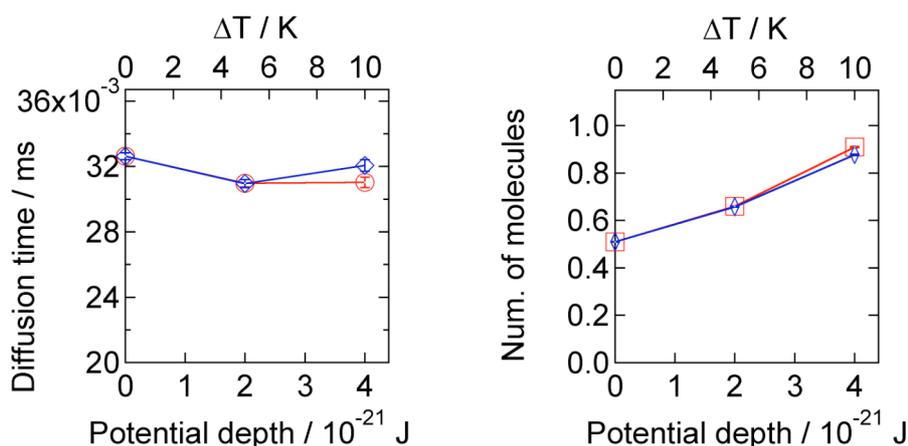


図2 光吸収による温度上昇を伴う系における分子数(右)と平均滞在時間(左)の放射圧ポテンシャル(レーザー光強度)依存性。

【文献】

[1] J. Hofkens et al. *Langmuir* (1997) 13, 414-419, [2] Ito et al. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 482 (2002), *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, L241 (2007), [3] Masuo et al. *J. Phys. Chem. B* 109, 6917 (2005).