



# 光で実現する革新的結晶作製技術の創成

高橋秀実 Hozumi TAKAHASHI

筆者らのグループでは、短パルスレーザーが誘起する形態変化現象（レーザーアブレーション）と集光レーザービームによる物質捕捉現象（光トラッピング）を外部刺激として用いた結晶化制御法を開発してきた。本稿ではこれまでにやってきた研究のうち、レーザーアブレーションによる氷の結晶化の高速顕微イメージングおよび光トラッピングによるL-システイン結晶の多形制御について解説する。

## はじめに

医薬品や半導体など、我々の身の回りは結晶であふれている。実は、結晶材料の力学的・電氣的・光学的・薬学的な性質は、材料そのものの化学構造のみならず、結晶のサイズ・形状・品質・多形（結晶内での原子・分子の配列の仕方）にも強く依存する。したがって、高い性能を有する結晶材料を作製するためには、結晶化の精密制御が必要不可欠である。

この課題に対し筆者らのグループでは、レーザー光の「集める・並べる・壊す」といった工作的作用を外部刺激として応用した結晶化制御法の開発を進めてきた。具体的には、短パルスレーザーが誘起する形態変化現象（レーザーアブレーション）と、集光レーザービームによる物質捕捉現象（光トラッピング）の2つの光技術を結晶化制御に応用させてきた。本稿では、筆者が近年報告してきた成果について解説する。

## レーザーアブレーションによる結晶化制御

レーザーアブレーションとは、物体にレーザーを照射した際に、ある閾値以上のエネルギーで引き起こされる巨視的な形態変化現象のことである。具体的には、液体中における衝撃波やバブルの発生、固体にお

ける構成物質の放出とエッチングなどを指す（図1A）。

筆者のグループでは、これら形態変化現象を結晶化のトリガーとして応用することで、結晶化過程を時空間的に制御できることを見いだしてきた<sup>1-9)</sup>。例えば、過冷却水中にパルスレーザーを集光照射してバブルを局所的に発生させることで、集光点近傍から氷の結晶を強制的に作製できることを見いだした（図1B）<sup>1)</sup>。そこで、レーザーの照射タイミングと高速カメラの撮影タイミングを同期させることで、氷の結晶化の様子をマイクロ秒・マイクロメートルの時空間分解能で観察することに成功した（図1C）。これにより、様々な環

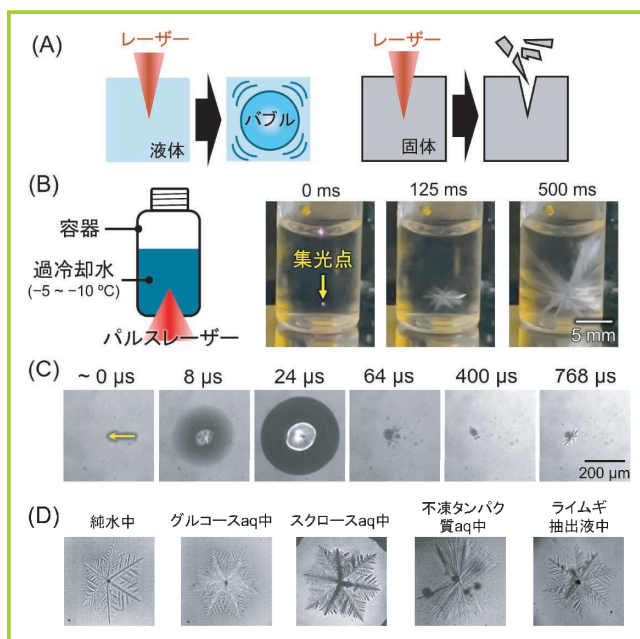


図1 (A) レーザーアブレーションの概念図。(B) 氷晶化挙動の代表例。(C) 氷晶化過程の高速イメージング（黒色球体はバブル）。(D) 様々な液中での氷晶

Adapted with permission from Ref. 1). Copyright (2023) American Chemical Society.

たかはし・ほずみ

大阪大学大学院工学研究科 助教

〔経歴〕2024年大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了、博士（工学）。同年日本学術振興会特別研究員PD（大阪大学）、25年より現職。〔専門〕レーザー加工、光マニピュレーション、結晶成長。〔趣味〕居酒屋めぐり。

E-mail: h.takahashi@eei.eng.osaka-u.ac.jp



境下における水の結晶の形態や成長速度を詳細に観察・計測することも実現した (図 1D)。

水の結晶成長の高速観察に加え、溶液のレーザーアブレーションによって析出する結晶の多形を制御できることも見いだしている<sup>2,3)</sup>。また、レーザーアブレーションによって結晶を局所破壊することで、結晶成長を促進させられることや<sup>4)</sup>、種結晶を単離できること<sup>5)</sup>、さらには多形転移を強制的に誘起させられることも報告してきた<sup>6,7)</sup>。これらの結果は、レーザーアブレーションによって所望の形状・構造を有する結晶を作製できる可能性を示唆している。

### 光トラッピングによる結晶化制御

高い開口数のレンズを用いてレーザービームをきつく集光照射することで、集光点にナノ～マイクロメートルサイズの物体を捕捉・凝集することができる。この光トラッピング技術は 2018 年にノーベル物理学賞を受賞しており、これまで細胞の 3 次元操作や種々の化学分析に応用されてきた。

一方筆者らのグループでは、本光技術を溶液に応用することで、溶質を捕捉・凝集して結晶を作製できることを見いだしてきた (図 2A)<sup>10,11)</sup>。本稿では、2 種のレーザー光源 (連続発振, パルス) を組み合わせることで、結晶多形および結晶数を制御した成果について解説する<sup>11)</sup>。試料として L-システインを用いた。L-システインは常温常圧下において、準安定多形の  $\alpha$  形と

安定多形の  $\beta$  形の 2 種が水溶液中から形成し得る。当該研究では、L-システインの“未”飽和水溶液に連続発振レーザーを集光照射して光トラッピングしたところ、準安定多形だけを選択的に作製できることを見いだした (図 2B)。ラマン分光計測の結果から、準安定多形の選択的核形成のメカニズムとしては、光トラッピングによって溶質濃度が極めて高められること (飽和濃度の 2 倍以上) に起因すると結論付けた。

一方、パルス時間幅が約 100 fs ( $100 \times 10^{-15}$  s)、繰返し周波数が 80,000,000 pulse/s の高繰返しフェムト秒レーザーを光源に用いて光トラッピングしたところ、溶液のレーザーアブレーションに由来したバブルの発生が起こったのちに (図 2C, 1665 s)、安定多形の結晶が析出した (図 2C, 1675 s)。さらに、析出した結晶はフェムト秒レーザーによって破壊されて種結晶が形成し、それらが成長することで最終的に多結晶状になった (図 2C, 1680 s)。安定多形の形成メカニズムとしては、溶液のレーザーアブレーションによるバブル発生によって (図 1A)、濃度が高まる前に結晶が強制的に析出させられることに起因すると考察した。

また、連続発振レーザーと高繰返しフェムト秒レーザーを組み合わせることで、結晶の数も制御できることを見いだした。具体的には、フェムト秒レーザーの照射によって安定多形が析出した直後、連続発振レーザーに切り替えた (図 2D)。この操作により、析出した結晶がフェムト秒レーザーによって破壊されて多結晶化することを未然に防ぎ、安定多形の単結晶を作製することに成功した。このように、光トラッピングでは結晶多形や結晶数を制御することができるため、所望の結晶材料の作製に有効であることが示唆される。

### おわりに

以上のように、レーザー光の工的作用を駆使することで、結晶化過程を精密に制御できる可能性が示されてきた。したがって、一連の結晶化過程をレーザーによって一括的に制御することで、従来法では作製困難な結晶材料を創製できると期待される。

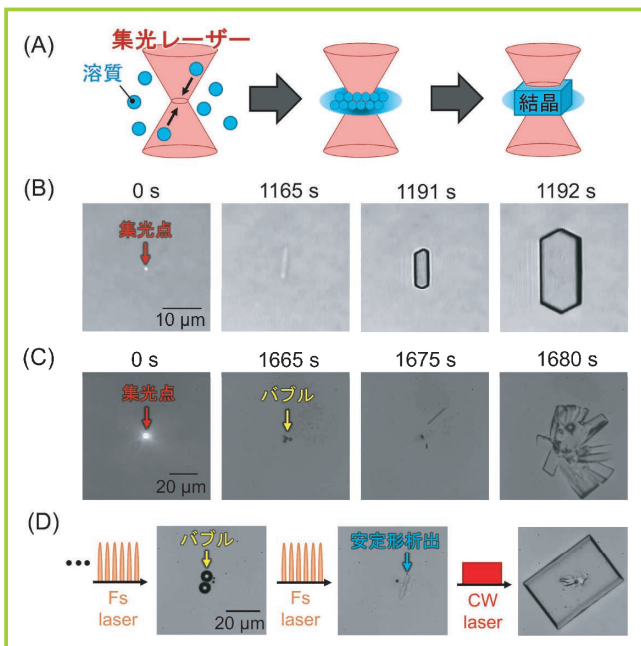


図 2 (A) 光トラッピング誘起結晶化の概念図。(B) 連続発振 (CW) レーザーおよび (C) 高繰返しフェムト秒 (fs) レーザーによる L-システインの結晶化挙動。(D) CW レーザーと高繰返し fs レーザーの組み合わせによる安定多形の単結晶の作製  
Adapted with permission from Ref. 11). Copyright (2025) Springer Nature.

- 1) H. Takahashi et al., *J. Phys. Chem. Lett.* **2023**, 14, 4394.
- 2) H. Takahashi et al., *J. Phys. Chem. C* **2024**, 128, 11046.
- 3) H. Takahashi et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2025**, 27, 16067.
- 4) H. Takahashi et al., *J. Phys. Chem. C* **2021**, 125, 8391.
- 5) H. Takahashi et al. *J. Phys. Chem. C* **2023**, 127, 14005.
- 6) H. Takahashi et al., *J. Phys. Chem. Lett.* **2024**, 15, 180.
- 7) H. Takahashi et al., *Cryst. Growth Des.* **2024**, 24, 10032.
- 8) H. Takahashi et al., *Appl. Phys. Express* **2021**, 14, 045503.
- 9) H. Takahashi et al., *J. Phys. Chem. C* **2025**, 129, 8346.
- 10) H. Takahashi et al., *J. Photochem. Photobiol. A* **2024**, 456, 115845.
- 11) H. Takahashi et al., *Commun. Chem.* **2025**, 8, 156.