

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」

平成 17 年度採択研究代表者

山下 幹雄

(北海道大学大学院工学研究科 教授)

「極限光電場波形制御による新光量子技術の創出」

1. 研究実施の概要

本研究の最終的なねらいは以下の通りである。①近赤外・可視域から紫外域に渡る極短光パルスの電場波形制御技術と②モノサイクル域光の高出力短パルス化技術・計測技術を開発すること。加えて、それらの技術の応用として、③XUV・X線域のアト秒パルス技術および④超高速光異性化反応などを利用した量子制御による遺伝子発現レーザー可逆制御の手法を開拓することである。

2. 研究実施内容

上記のねらいを実現するために、北海道大学チームと名古屋大学チームとが分担しあって18年度(2年目)は以下の4つの研究を進めた。

1. 極限光電場波形の制御技術の開発

主に2つの研究を行った。第1に前年に引き続き、超広帯域スペクトル位相のフィードバック自動補償の可能性を実験・シミュレーションの両面から検討した。その結果、M-SPIDER信号の解析にウェーブレット変換を用いて、強い非線形チャープ光・複雑なスペクトル構造を持つパルス光・複雑なスペクトル位相を持つパルス光・オクターブを超える超広帯域光に対して、自動補償が実現できることがわかった。第2に、これまでになかった紫外域から近赤外域(300-1200 nm)に渡る極限光電場波形制御用の空間光変調器(SLM)を開発するため、新しい液晶材料の光位相変調特性を明らかにした。すなわち、試作した1ピクセル液晶SLMの複屈折率分散・透過特性・時間応答特性・印可電圧特性・矩形波交流電圧周波数特性・印可電圧パルス幅特性・光位相変調波長依存性を把握する実験を行った。その結果、紫外域まで動作する648ピクセルSLMの設計試作に必要なパラメータである最適印可交流電圧周期・最大印可電圧値・最大位相変調量が決定できた。

2. モノサイクル域光パルスの高出力短パルス化技術・計測技術の開発

第1に、さらなる短パルス化を目指してAr充填ホローファイバー中の誘起位相変調(IPM) + 自己位相変調(SPM)により広がった超広帯域光(450-975 nm)を、試作したSLM・4f光学系 + M-SPIDER から成るフィードバック位相補償器を用いてチャープ補償する、光パルス圧縮

実験を行った。その結果、単一光パルスとしては世界最短の、2.6 fs・1.3 サイクル・1.4 GW・3.6 μ J・1 kHz 繰り返しのモノサイクル域光パルスの発生・計測に成功した。第2に、高出力化を目指して、初の試みとして、モノサイクル域光の直接増幅法の実験的検討に着手した。すなわち、角度分散・ノンコリニア・パラメトリック増幅(AD・NOPA)の基礎実験を行い、1 段目の増幅として 550-1000 nm 域の増幅を確認した。第3に、新しい高効率極限光パルス発生法として、高次 CARS 法を提案し基礎実験を行った。実現に向けた第1段階の実験として、設計試作した凹面鏡・回折格子・円筒鏡対からなる光学装置により、波長に依存して角度分散する高次 CARS 光(500-700 nm)の角度分散補償が可能であること、およびその補償後の単一ビームの M-SPIDER 計測が可能であることを確認した。

3. アト秒 XUV・X 線パルス技術の開拓

高次高調波(HH)法によるアト秒 XUV パルス発生の励起光源として用いるために、内壁金属コートホローファイバーを利用した光パルス圧縮実験を行った。その結果、本ファイバーの低伝播損失により、CEP(搬送波・包絡波位相)が安定化されたサブ TW(0.13 TW)・5.2 fs・800 nm・1 kHz くり返し高出力パルス光源を開発した。さらに、これをいかした新しいアト秒パルス計測法の基礎実験に着手した。

4. 遺伝子発現過程の超高速量子制御技術の開拓

①極限光技術からのアプローチ

DNA ハイブリダイゼーションのコヒーレント量子制御ために超高速光異性化反応を利用する。このために必要な AzD(para-COOH-azobenzene/methanol)の吸収帯が 300-500 nm にあるので、量子制御の励起光源用として、320-460 nm 広帯域・50 fs・1.4 μ J・1 kHz くり返しパルスレーザーシステムを開発した。これをいかして、320 から 460 nm の範囲で波長を可変にした同一波長ポンププローブ過渡吸収実験をトランス体とシス体に対して行った。共に全波長範囲で2成分指数関数減衰(トランス体; $\tau_1=300$ fs (350 nm)、2.2 ps (380 nm)、1.3 ps (440 nm)、 $\tau_2=6.5$ ps (350 nm)、15 ps (380 nm)、11 ps (440 nm); シス体; $\tau_1=1.1$ ps (350 nm)、11 ps (380 nm)、350 fs (440 nm)、 $\tau_2=7.1$ ps (350 nm)、120 ps (380 nm)、2.9 ps (440 nm))が観測され、 S_1 状態と S_2 状態の境界域(S_1 状態の高振動準位)で著しく τ_1 、 τ_2 が長くなることを確認した。これは、既に指摘されているこの S_1 高振動準位から、2つの光異性化過程のうちのローテーションチャンネルが著しく生じることと対応していると推察される。また、313 nm CW ランプ光をモニター波長として、トランス体→シス体(シス体→トランス体)光異性化収率を、フェムト秒励起光源の波長を変えることにより測定し、定性的にはランプ励起と同様な収率の波長依存性を確認した。さらに、このフェムト秒紫外域の整形パルス波形が測定できる M-SPIDER および ZAP-SPIDER 計測を開発した。

②生物化学的手法からのアプローチ

DNA の大きな特徴は相補鎖が自発的に会合するという超分子性にある。この二重鎖形成(=ハイブリダイゼーション)は遺伝子発現など DNA が関わる多くの生命現象に関与している。名古屋大学チームでは、アゾベンゼン導入DNAを用いたハイ

ブリダイゼーションの効率的な光制御により、遺伝子発現の光制御を目指している。

本年度は17年度の構造解析結果に基づき、アゾベンゼンの化学修飾によるハイブリダイゼーションの効率的な光制御を目指した。アゾベンゼンの様々な位置をメチル基で修飾したところ、オルト位修飾でハイブリダイゼーションの効率的な光制御が可能なることを見出した。特に二つのオルト位(2',6'位)それぞれをメチル基で修飾した2',6'-ジメチルアゾベンゼンを導入したDNAは、これまでの無置換のアゾベンゼンと比較して *trans-cis* 光異性化による融解温度の変化が3倍向上することを見出した。NMRによる構造解析から、*trans*-2',6'-ジメチルアゾベンゼンでは導入したメチル基と上下の塩基対とのスタッキング相互作用で二重鎖が安定化されることが判明した。一方 *cis*-体ではメチル基の立体障害で隣接する塩基対形成が大きく阻害されるため融解温度が大きく低下することが、コンピューターを用いた分子モデリングから示唆された。さらに興味深いことに、この2',6'-ジメチルアゾベンゼンは高効率光制御のみならず、*cis*-体の熱安定性も従来の無置換型と比較して約10倍改善されることを見出した。

3. 研究実施体制

(1) 山下 幹雄「北海道大学」グループ

研究項目

- ・ 極限光電場波形の制御と、それを活かしたアト秒パルス(XUV・X線域)およびモノサイクル域光(近赤外・可視・紫外域)発生さらには遺伝子発現コヒーレント量子制御の研究

(2) 浅沼 浩之「名古屋大学」グループ

研究項目

- ・ DNAハイブリダイゼーションの高効率光スイッチング技術とその応用

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- M. Yamashita, K. Yamane, and R. Morita, "Quasi-automatic phase-control technique for chirp compensation of pulses with over-one-octave bandwidth — Generation of few- to mono-cycle optical pulses", IEEE J. Select. Top. In Quantum Electron. 12, 213-222, 2006.
- E. Matsubara, K. Inoue, and E. Hanamura, "Dynamical symmetry breaking induced by ultrashort laser pulses in KTaO_3 " J. Phys. Soc. Jpn. 75, 024712, 2006.
- 山下幹雄, 山根啓作, 森田隆二, 「モノサイクル域光パルス圧縮」, 応用物理、第76巻、第2号、p.154-159, 2007年.
- 山根啓作, 山下幹雄, 「キャリアエンベロープ位相安定化モノサイクル光の発生」,

光学会誌, 第 36 卷, 第 2 号, p.88-90, 2007 年.

- E. Matsubara, K. Yamane, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Generation of 2.6 fs optical pulses using induced-phase-modulation in a gas-filled hollow fiber”, *J. Opt. Soc. Am. B* 24, 2007, in press.
- E. Matsubara, T. Naoi, T. Kito, E. Haraguchi, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Generation of sub 3-fs optical pulses using induced phase modulation in an Ar-gas-filled hollow fiber”, *Ultrafast Phenomena XV*, (Springer, Berlin, 2007), in press.
- K. Narita, M Adachi, R. Morita, and M. Yamashita, “Complete automatic phase compensation for a-few-cycle pulses”, *Ultrafast Optics V*, (Springer, Berlin, 2007) , in press.
- A. Iwasaki, N. Nakagawa, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Ultrafast dynamics and coherent control of DNA-Azobenzene molecules – application of latest ultrafast laser technology”, *Next Generation of Photonics and Media Technology*, J. Yoshihara and H. Sasabe (eds.), (Matsuura Printing Co., Chitose, Japan, 2007), in press.
- H. Kashida, H. Asanuma, M. Komiyama, “Insertion of two Pyrene moieties to Oligodeoxyribonucleotides for the efficient detection of insertion/deletion polymorphisms”, *Chem. Commun.* 2006, 2768-2770, 2006.
- H. Asanuma, X. G. Liang, H. Nishioka, D. Matsunaga, M. Liu, M. Komiyama, “Synthesis of azobenzene-tethered DNA for reversible photo-regulation of DNA functions: hybridization and transcription”, *Nature Protocols*, 2, 203 – 212, 2007.