

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540436

研究課題名(和文)フェムト秒レーザー波形整形による光受容蛋白質における光反応制御

研究課題名(英文)Optimal reaction control of femtosecond shaped pulses for photoactive proteins

研究代表者

兼松 泰男 (Kanematsu, Yasuo)

大阪大学・産学連携本部・教授

研究者番号：00211855

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：光と物質の相互作用を強め、非線形光学作用を有効に活用することを目指し、光パルスを構成する角振動数成分の位相を制御することで、合成されるパルス形状を変化させて、強く、かつ、早い光に対する物質の応答を引き出すための方法を探った。

光を照射することによって物質の屈折率変化を引き起こす、光カー効果の高効率、超高速応答を示す現象を見だし、また、パルス形状の最適化の高速化に関する研究を実施した。

研究成果の概要(英文)：Aiming at finding a new way of realizing enhanced non-linear optical effects, a method for controlling the light and matter interaction has been investigated on the basis of phase modulation of optical frequency components which synthesizes shaped pulses in order to the fast and strong response to the light pulses.

Strong-and-fast optical Kerr phenomena, which is originated from the refractive index change by the irradiation of shaped light pulses, have been observed for the first time. Several methods of shortening the time to establish the optimized adaptive modulation change of shaped light pulse has been investigated.

研究分野：化学物理

キーワード：非線形光学 コヒーレント光 超高速光応答 光カー効果 二光子励起蛍光

1. 研究開始当初の背景

(1) フェムト秒光パルスを用いたコヒーレント制御に関しては、光合成系におけるエネルギー移動制御への応用、さらに、光受容蛋白における反応制御など、凝縮系への展開が現実のものとなり、特定の振動モードの選択励起など、メカニズムに切り込んだ研究も現れてきており、将来への展開が期待される。

(2) しかしながら、コヒーレント制御を実現する手法の主流は、遺伝的アルゴリズムなどを使ってパルス波形の最適化パラメータを決めていく、いわば、ブラックボックス的戦略である。非常に広いスペクトルを持つ光パルスを構成する各々の振動成分に対して、位相と振幅を変調することで、さまざまなパターンを実現し、系のダイナミクスを最も良くコントロールするパターンを見つけていくが、このパターンの必然性についての物理的考察が、一般的に困難である。

2. 研究の目的

(1) 光による蛋白質の機能を制御することを目指し、光反応制御の最新の手法、フェムト秒光パルス波形整形によるコヒーレント制御法を導入する。適応制御型、すなわち、反応物収量をモニターし、パラメータを最適化するアルゴリズムによって、パルス波形の最適化を図る方法ではなく、蛋白質ダイナミクスに関する物理的な考察の可能なアプローチを確立することを本研究の目的とする。

(2) 蛋白質は、その構造均一性、反応系の孤立性、準安定状態の安定性などを考えると、むしろ、コヒーレント制御の優れたターゲットだと考えることができる。少数の主要な自由度によって、反応ダイナミクスが支配されている可能性もある。

(3) 光受容蛋白は、光刺激により、発色団における構造変化から蛋白質全体の構造変化へとシステムとして機能を果たすモデル系と見ることができる。しかも、局所的な電子状態変化、分子構造変化を、蛋白質全体の变化につなげていくことが可能である。この際に、電子状態との相互作用モードに着目し、かつ、局所的な分子振動モードと、全体的な低振動数モードの二群を視野に入れて、限定されたモードに関するパラメータ空間でのコヒーレント制御を研究する。

(4) パラメータ空間を小さくすることで、物理的モデル描像を描きやすくなるし、モデル計算との比較を実施することが可能になる。

(5) 以上の当初目的に従い、次章3.(1)に記載する研究方法を予定していた。しかしながら、初年度の予備実験の結果、ターゲット

ト光受容蛋白質が予想に反し光反応性を示さないことがわかり、なおかつ、最適化時間を短縮化するための装置の構成部品が調達できないことから、計画を大幅に変更した。

(6) その結果、当初目的の遂行の基盤となる研究として、最適化制御の高速化手法の開発と非線形光学現象における共鳴過程のコヒーレント制御による効果増強の実現、とりわけ、共鳴媒質を用いた超高速、高効率光カーシャッターを開発を目的とすることとした。

3. 研究の方法

(1) フェムト秒光パルスをスペクトルおよび時間変調して、光受容蛋白に照射することで、光サイクルを誘起し、準安定状態の収量をコントロールする。光サイクルをモニターし、光パルス変調のパラメータ変化との相関を研究する。光スペクトログラム法によりパラメータ空間を制限した場合と、フィードバックアルゴリズムを用いて、パラメータ最適化を行う場合との比較実験を行う。**【当初計画】**

(2) 最適化制御の高速化手法の開発を行う。

フェムト秒パルス波形整形に、図1に示す従来型の位相スペクトル変調を用い、チタンサファイアレーザーの基本波 800 nm パルスの波形整形により、最適化を行う。位相変調には、空間位相変調器浜松ホトニクス社製 LCOS-SLM を用いた(反射型位相変調器のため、実際の光学系は、図1を位相変調器面で折り返した形になる。)二光子蛍光の増大をモニターとして、励起波形整形光パルスの最適化を図る。その際、位相スペクトル変調パターンを制限することで、最適化する自由度を制限し、収束の高速化を図る。

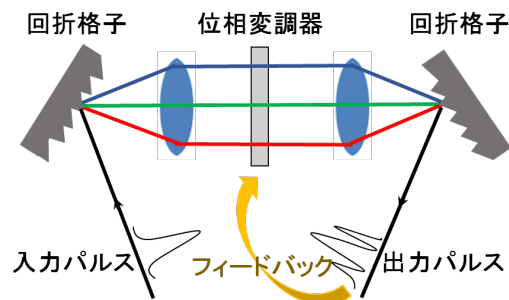


図1. 波形整形光学系

波形整形光学系では、入力光パルスが回折格子でスペクトル分解され、各周波数成分が空間位相変調器上に結像され、それぞれ位相変調、すなわち、光学距離の変化が与えられる。位相変調器の素子面はピクセルに分割されており、ピクセルごとの位相変調量は、印加電圧によってコントロールされる。

最適化のために用いたアルゴリズムのフローチャートを図2に示す。

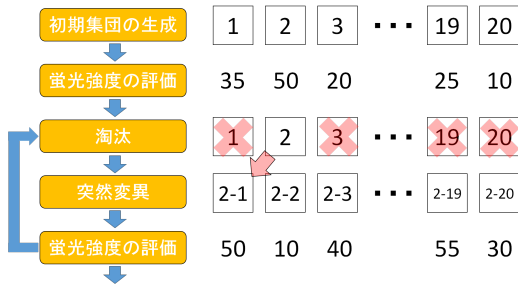


図2. 最適波形の導出に用いた遺伝的アルゴリズムのフローチャート

(3) 共鳴媒質を用いた超高速、高効率光カーシャッターを開発する。

高速性と高効率性のトレードオフ関係を超克するため、ポンプ光に対し共鳴条件を満たすカー媒質の巨大な三次非線形光学応答を利用する。その際、同時に光吸収が発生するために、励起状態の緩和時間、ナノ秒程度のプローブ光は透過し続けることになり、超高速なゲート機能は得られない。しかしながら、ポンプ光の適当な波形整形を行い、励起直後に脱励起させるコヒーレント制御により共鳴媒質の応答速度を速めることが可能であると考えられる。そこでカー媒質として共鳴媒質を用いるとともに、ポンプ光による共鳴型カー媒質のコヒーレント制御を行うことを目指した。

図3に実験配置を図示する。

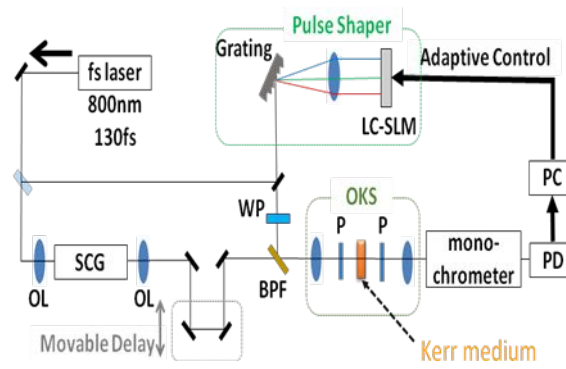


図3. 波形整形パルス光カー効果最適化実験配置

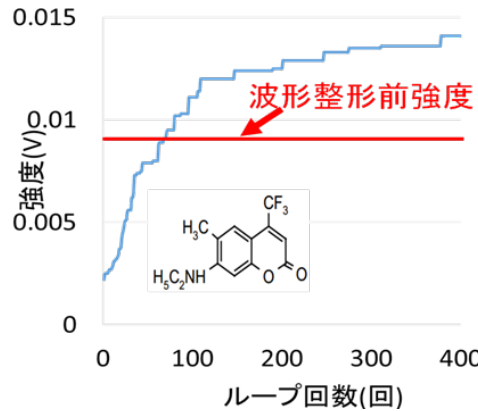
増幅された繰り返し 250kHz のチタンサファイアレーザーからの光をスプリットし、一方を波形整形に引き入れ、反射型空間変調器からの戻り光をゲート光としてカー媒質へ照射する。もう一方の光は白色光を発生し、

非共鳴領域の光をフィルターで選択して、プローブとしてカー媒質を直交させた偏光子ではさんだ光学系を通し、透過光強度を測定する。空間位相制御のため位相スペクトルの変調パターンを遺伝的アルゴリズムで生成し、適応制御を行った。

4. 研究成果

(1) 最適化制御の高速化手法の開発を目指した研究を行い、正チャープによる二光子励起蛍光の最適化を見だし、また、位相スペクトルの分割幅の最適化により制御時間の短縮が行えることを見いだした。

二光子蛍光を最大化する位相変調スペクトルパターンを見出すために、遺伝的アルゴリズムにより、蛍光強度をモニターしつつ、パターンを変化させていく。初期状態はランダムに電圧を印加している。蛍光強度は、ループ(蛍光強度モニター、パターン選択、パターン変更、蛍光強度モニター...)の進



展に従い増大し、一定値に到達する(図4)。

図4 最適化に伴う、蛍光強度変化

蛍光強度が増大し最大値に到達し、位相スペクトルパターンの変化がなくなった状態での、空間位相変調器の素子面印加電圧マップ画像を、ピクセルに相当する周波数を横軸に、印加電圧を示す画像輝度を縦軸にして、図5に示す。

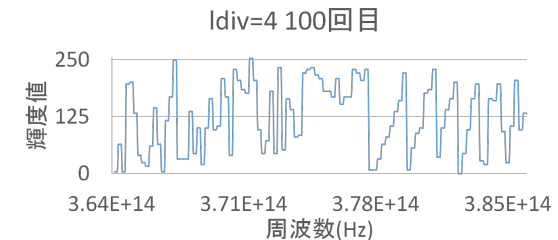


図5 位相変調スペクトル(補正前)

図上、低周波数側の半分程度の領域は、ループ回数を経ても、定まらず、蛍光強度には影響を及ぼさない。右側の領域では、周波数

増大と共に加えられた連続的な変化が 2 を超えるところで飛びが起こるため、これを補正して、滑らかな変化として表し、図 6 に示した。

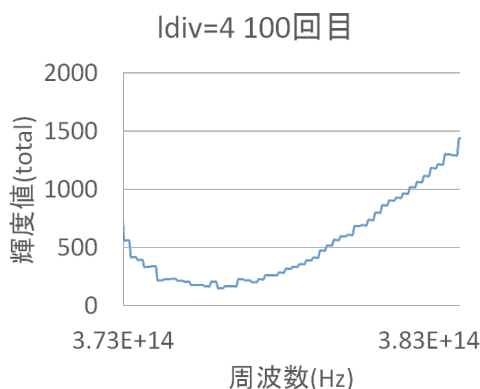


図 6 . 位相変調スペクトル(補正後)

現在使用している位相変調素子は二次元で、位相スペクトルを変化させる方向には 792 ピクセルである。これを 2 ピクセル、3 ピクセル、4 ピクセルとバンドル化することにより、バンドル前、ループ回数を上げて、最適化に至らず、長時間を費やしていたが、4 ピクセルのバンドル化で、400 回ループ 3 時間程度での最適化を行うことができた。

しかしながら、最適な位相変調パターンの探査をする上で、3 時間の最適化収束時間は長すぎる。その半分は、画像プログラムのハンドリング時間である。これを高速化するために、グラフィックスを扱うためのゲーム機から派生したグラフィックス専用ボード搭載 PC を用い、グラフィックプロセッシングの汎用化である GP-GPU と関連プログラムの導入を行っている。並列サンプリングの採用と併せて、ソフトウェアを用いて実現する最適化制御の高速化に、現在、取り組んでいる。

(2) 共鳴媒質を用いた超高速、高効率光カーシャッターを開発に向けて、色素溶液の吸収に共鳴する光をゲート光として用い、これを波形整形することで高速性と効率性を両立させることを目指している。

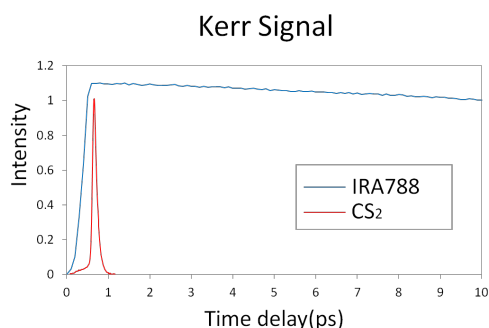
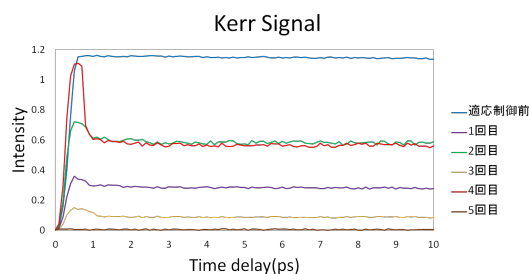


図 7 .カー効果の比較

カー媒質として、ゲート光は共鳴するが、カーシャッターの窓となる波長領域では透明である色素の溶液を選択した。 10^{-4} M のジクロロメタン中 IRA788 色素溶液を用いて、カー効果を測定したところ、図 7 に示すように、同じ実験配置における CS₂ のカー効果と同程度の強度で、かつ、長寿命成分を反映したカー効果を観測した。色素分子濃度を勘案すれば、3 桁から 4 桁大きな非線形光学効果が引き起こされていることがわかる。

さらに、遅延時間を変化させ、カー効果により、プローブ光の透過が最大となるゲート光とプローブ光の重なる位置、および、一定の時間遅延後となるプローブ位置での透過強度比として、ゲート光の波形整形を行った予備的な実験結果を図 8 に示す。



高速成分が認められたが、波形整形の最適化へ到達せず、カー強度自体が減少してしまう現象が生じており、現在、モニター手法を含め、研究を継続している。

5 . 主な発表論文等

[学会発表](計 2 件)

森本健太、福神純平、甘文、兼松泰男、「波形整形した超短波ルス光を用いた多光子過程の遷移制御」、日本物理学会、第 70 回年次大会、2015 年 3 月 22 日

福神純平、兼松泰男、日本物理学会、「波形整形した超短波ルス光を用いた高効率光カーシャッターの開発」、第 70 回年次大会、2015 年 3 月 22 日

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

兼松泰男 (KANEMATSU YASUO)

大阪大学・産学連携本部・教授

研究者番号: