

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21158

研究課題名（和文）光の量子揺らぎまで見えるホモダイン検波型フォトサーマル顕微鏡

研究課題名（英文）Photothermal microscope using balanced homodyne detection

研究代表者

衛藤 雄二郎（Eto, Yujiro）

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50600003

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：光は、ハイゼンベルグの不確定性原理に由来する量子力学的な揺らぎを持つ。コヒーレント状態のレーザー光は、その揺らぎがポアソン分布に従い、光計測ではショット雑音の起源となる。一方で、この光の持つ量子揺らぎも有用な使い方ができる可能性がある。本研究の目的は、量子光学の分野で発展してきた量子揺らぎの検出技術や制御技術を利用して、量子揺らぎの自由度を活かした新しい光計測を開発することである。本研究では、光強度揺らぎの計測への応用として、バンチングによる2光子励起蛍光の増強を実証した。また、強度揺らぎの新しい制御法として、関連のある強度揺らぎを異なる周波数モードへと転写する実験にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、パラメトリック下方変換を利用して、コヒーレントなレーザー光よりも大きな強度揺らぎやモード間に関連のある揺らぎを作り出した。そして光計測における揺らぎの新しい価値を探索した。ここで利用したパラメトリック下方変換過程は、パラメトリック発生器やスーパーコンティニューム光源のような波長可変光源において広く利用されている非線形光学過程である。そのため本研究はこれまで波長可変光源として用いられてきた光源に、揺らぎという機能を加え、光計測の更なる可能性を拓くことに繋がると期待される。

研究成果の概要（英文）：Light has quantum fluctuations derived from Heisenberg's uncertainty principle. Coherent state of light has fluctuations that follow a Poisson distribution and cause shot noise in the optical measurements. On the other hand, quantum fluctuations of light may also have useful uses. In this research, we aim to find a new way to utilize quantum fluctuations in optical measurements. As an application of intensity fluctuation of light, we have demonstrated enhanced two-photon excited fluorescence by bunching of light. As a new control method for intensity fluctuations, we also succeeded to transfer correlated intensity fluctuations to different frequency mode.

研究分野：光計測

キーワード：光バンチング パラメトリック下方変換 ツインビーム 2光子吸収 ラマン散乱

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光計測において、光プローブの持つ揺らぎは通常はノイズとなる場合が多い。しかしながら、例えば確率共鳴現象では揺らぎが信号を増強させる役割を果たす。そのため、光の持つ揺らぎも使い方によっては、“サンプルの情報を抜き出す”、“信号を増強させる”などの恩恵をもたらす可能性がある。

光は、ハイゼンベルグの不確定性原理に由来する量子力学的な揺らぎを持つ。コヒーレント状態のレーザー光は、その揺らぎがポアソン分布に従い、光計測ではショット雑音の起源となる。一方で、この光の持つ量子揺らぎも有用な使い方ができる場合がある。例えば、揺らぎが増幅するような過程を観測したい場合には、揺らぎ自体が情報のキャリアとなりえる。また、光と物質の非線形な相互作用においては、揺らぎが瞬間強度を実効的に増幅し、相互作用を増強する作用をもたらす場合がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、量子光学の分野で発展してきた量子揺らぎの検出技術や制御技術を利用して、量子揺らぎの自由度を活かした新しい光計測を開発することである。

具体的な研究としては、光の直交位相振幅を検出できる平衡型ホモダイン検出と生命科学の分野で利用されているフォトサーマル顕微鏡の融合可能性に関する研究を実施した。次に、増強された光量子揺らぎを用いた生体観測用の非線形光学顕微鏡に関する研究を実施した。

3. 研究の方法

平衡型ホモダイン検出法を用いたフォトサーマル顕微鏡

平衡型ホモダイン検出とは、信号光と局部発振光 (LO) との干渉を利用した位相敏感な検出法である。そのため、平衡型ホモダイン検出を顕微鏡システムに融合するためには、被測定光である散乱光と空間的にマッチした LO 光を準備し、それらの位相差を安定に保つことができるイメージング装置を構築する必要がある。これらの課題の解決のために、本研究では散乱光と LO 光が同軸伝播するイメージング系を提案し、その実装可能性について研究を実施した。

光量子揺らぎによる非線形光学顕微鏡

パラメトリック下方変換光を励起光として用い、2光子吸収や非線形ラマン散乱などの非線形光学効果を誘起する。それによって、強度揺らぎによる2光子励起蛍光や誘導ラマン散乱光の増強を実証する。2光子吸収や2次高調波発生のような光と物質の非線形な相互作用において、励起光の強度揺らぎはその効率を増強させる作用をもたらす。本実験で使用する真空場をシードとしたパラメトリック下方変換光源では、コヒーレント光の持つ光強度揺らぎよりも大きな強度揺らぎを持つ光を作り出すことができる。

定量的には、2光子励起の効率は励起光の2次のコヒーレンス度 $g^{(2)}(0)$ に比例し、 $g^{(2)}(0)$ は揺らぎの大きさを表す量として捉えることができる。例えば、コヒーレント状態のレーザー光では、 $g^{(2)}(0)$ が1であり、それよりも揺らぎが大きな熱光源では2となる。ここで $g^{(2)}(0)$ が1を超える性質を光バンチングと呼ぶ。光バンチングによる2光子励起の増強を実証するための直接的な方法は、 $g^{(2)}(0)$ が1のコヒーレント光を用いて、その結果と比較することである。しかしながら、パルス励起のパラメトリック下方変換によって生成される光と同じスペクトルや時間波形を持つコヒーレント光を準備することは、実際上困難である。この課題を克服するために、本実験では2光子吸収溶液を用いた $g^{(2)}(\tau)$ 測定を行った。つまり、 τ を相関時間よりも十分に大きくした場合には、 $g^{(2)}(\tau)=1$ となるため、 $g^{(2)}(\tau)$ 測定によってコヒーレント状態を使用した場合に得られる2光子励起光蛍光の量を見積もることが可能となる。

非線形光学効果による強度揺らぎの転写

スーパーコンティニューム光源やパラメトリック発生器のような波長可変光源では、時間的にインコヒーレントな光を励起光とした非線形光学過程を伴う場合がある。そのため、最終的な光の出射効率に、時間的にインコヒーレントな光の持つ強度揺らぎが大きな影響を与える可能性がある。本研究では、波長変換過程によって強度揺らぎがどのように変換され、それが変換効率にどの程度の影響を与えるのかに関して、実験的な研究を実施した。具体的には、パラメトリック下方変換過程によってツインビームを生成し、その後ツインビームの和周波発生を行った。そして、ツインビームと和周波発生光の片割を使い2度目の和周波発生を行う事で、ツインビーム間の強度揺らぎ相関が和周波発生光にも転写されているかを確認した。

4. 研究成果

本研究項目に関しては、散乱光と LO 光間の位相差を安定に保つための新しいイメージング装置を提案し、さらにその提案手法を実現するための具体的な装置構成に関して検討を行った。

散乱光と LO 光間の位相差を安定に保つために、図1のような中空の $\lambda/2$ 板を利用したイメージング系を提案した (図1a)。ここではまず提案手法に関して説明する。図1aの左から光を照

射する。ここでサンプルを透過した光を LO 光として使用する。透過光は、レンズで絞られ、中空 $\lambda/2$ 板の真ん中を通る (図 1b)。つまり偏光は変化しない。一方散乱光は、 $\lambda/2$ 板を通過し偏光が 90 度回転する。本方式では、同軸を保ったまま、微弱な散乱光と LO 光の偏光を直交させることができる。そのため、相対位相を安定に保ったまま平衡型ホモダイン検出を行うことができる。この光をビームスプリッターで分岐後 CCD カメラに照射して、ホモダインイメージングを実現する。

本提案手法を実現するためには、図 1 (b)に示すような、加工が可能な波長板を準備する必要がある。研究開始当初は、基板状の波長板を加工するという方法を検討したが、加工精度の問題や費用が高価になるという課題が生じた。この課題を解決するために、膜状のポリカーボネート樹脂製の波長板を利用する手法を検討した。樹脂製の波長板は、膜厚が 350 ミクロン程度であり、自在な加工が可能である。そのため、ポリカーボネート樹脂製の波長板を使用し、図 1 のような中空 $\lambda/2$ 板の作成を行った。今後はこの $\lambda/2$ 板を使い、同軸でのホモダインイメージングの実証を目指していく。

2 光子励起蛍光の増強に関する実験結果を図 2 に示す。図 2 左は、パラメトリック下方変換光源から出射されるシグナル光とアイドラー光の波長を表している。パラメトリック下方変換過程では、非線形光学結晶の温度を変えるとことで、位相整合波長が変化し、出射波長を変えることができる。本研究では、2 光子蛍光溶液として、緑色蛍光タンパク (GFP) 溶液を用いており、2 光子吸収波長のピークは 927nm である。

そのため、シグナル光のピーク波長が 927 nm になるように、結晶温度を変化させた。 $g^{(2)}(\tau)$ 測定では、このシグナル光を 2 光子過程を利用した自己相関測定器に入射する。ここで、2 光子吸収媒質には GFP 溶液を用い、マイケルソン干渉計の片方のアームを変位させながら、2 光子励起蛍光を測定する。得られた結果から見積もった $g^{(2)}(\tau)$ が図 2 右である。この結果から、約 1.9 倍程度の増強が得られていることが分かる。

さらに、パンチング効果を持ったシグナル光が、2 光子イメージングを行うための十分な光強度を有していることを示すために GFP を発現させたマウス脳スライス 2 光子吸収イメージングを行った (図 3)。10 秒の撮影時間で約 $400 \mu\text{m} \times 400 \mu\text{m}$ の 2 光子画像を得ることに成功した。

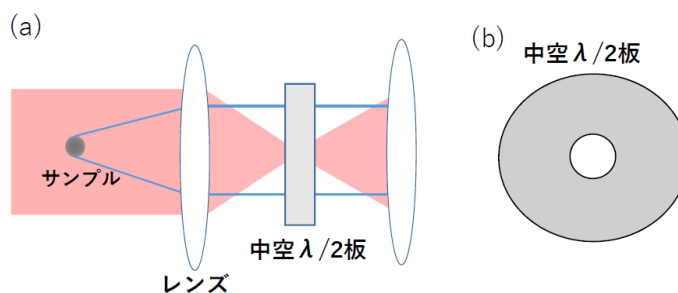


図 1 : (a) 提案するホモダインイメージング。
(b) 中空 $\lambda/2$ 板

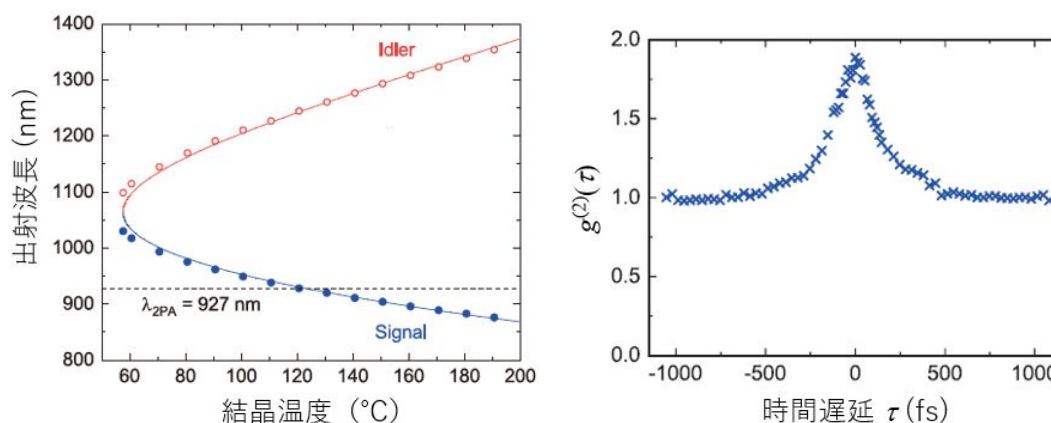


図 2: パラメトリック下方変換光源の出射波長の結晶温度依存性 (左)
 $g^{(2)}(\tau)$ の測定結果 (右)

本研究では、強度揺らぎに相関のある 2 つのビームを用いて和周波発生過程を行った。そして、和周波光とツインビーム間に相関が生成されることを確認することに成功した。実験では、まずピーク波長が 960 nm と 1193 nm の強度揺らぎに相関のあるツインビームを生成する。このツインビームを励起光として、BBO 結晶による和周波発生を行う事で 532 nm の和周波発生光を生成した。生成された和周波発生光とツインビームとの間に相関が生み出されていることを確認するために、960nm のツインビームの片割と 532 nm 和周波発生光を励起光として 2 段目の和周波発生を行った。960nm の光と 532 nm の光に遅延差をつけない場合、大きな遅延差をつけた場合に比べて、2 段目の和周波発生の効率が 1.2 倍程度増強された。このことは、ツインビーム

の片割と1段目の和周波発生光の間に相関が作り出されたことを表している。

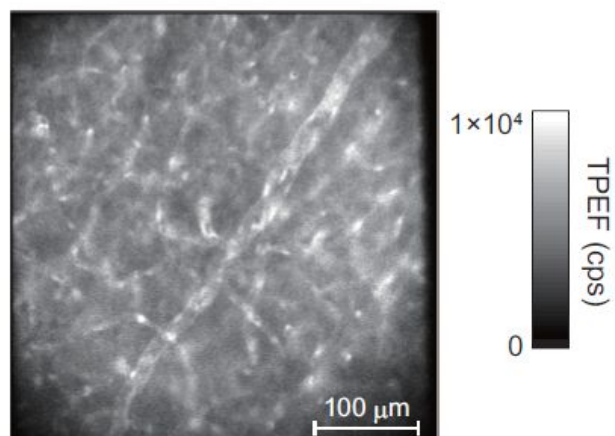


図3:GFP マウス脳スライスの2光子イメージング

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Eto Yujiro	4. 巻 14
2. 論文標題 Enhanced two-photon excited fluorescence by ultrafast intensity fluctuations from an optical parametric generator	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 012011 ~ 012011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abd674	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Eto Yujiro	4. 巻 14
2. 論文標題 Locally controlled two-photon excited fluorescence by correlated ultrafast intensity fluctuations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 022003 ~ 022003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abdac7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Eto Yujiro, Hirano Takuya	4. 巻 60
2. 論文標題 Effect of cascaded nonlinear phase shift on pulsed second-harmonic generation using periodically poled waveguide: a comparison of experimental and numerical results	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 052001 ~ 052001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abf49e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Eto Yujiro, Nuriya Mutsuo	4. 巻 1
2. 論文標題 Enhanced two-photon excited fluorescence from green fluorescent proteins by ultrafast fluctuations in intense light pulse	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Continuum	6. 最初と最後の頁 2539 ~ 2539
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OPTCON.470622	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 衛藤雄二郎	4. 巻 8
2. 論文標題 超高速な強度揺らぎによる緑色蛍光タンパクからの2光子励起蛍光の増強	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 フォトニクスニュース	6. 最初と最後の頁 126 ~ 130
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 衛藤雄二郎
2. 発表標題 超高速な強度ゆらぎを活用した非線形光学顕微鏡
3. 学会等名 量子生命科学会 第2回大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 衛藤雄二郎
2. 発表標題 超高速な光強度揺らぎを活用した非線形光学顕微鏡
3. 学会等名 超高速光エレクトロニクス(UFO)研究会 第5回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 衛藤雄二郎
2. 発表標題 光量子揺らぎの制御と非線形光学顕微鏡への応用
3. 学会等名 レーザー学会第43回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------