

## 研究課題別事後評価結果

### 1. 研究課題名: 極限光電場波形制御による新光量子技術の創出

### 2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

山下 幹雄(北海道大学 大学院工学研究科 教授)

主たる共同研究者

浅沼 浩之(名古屋大学 大学院工学研究科 教授)

### 3. 研究実施概要

本プロジェクト目標の第一は、紫外・可視・近赤外に渡る超広帯域コヒーレント光を発生させ、①その全帯域に渡って光電場位相・振幅を制御し、②モノサイクル域光を発生・計測すること、③ついでその高出力化をはかることであった。第二は、そのモノサイクル高出力性を活かして、④理論・実験の両面からアト秒XUVパルスの発生・計測への応用域、およびその光電場制御性を活かして、⑤光応答性DNAの光異性化反応の解明・量子制御と⑥遺伝子発現の光制御への新応用域を開拓することであった。

第一の極限光技術の開発については、①誘起位相変調法による、オクターブを越えたスペクトル(450-975 nm)の単一モノサイクル光の発生(2.6 fs, 1.3 サイクル: 可視・近赤外で世界最短パルス)、②および2オクターブを越えたスペクトル(270-1200 nm)の高出力光発生(860  $\mu$ J $\cdot$ 1 kHz: 1.5 fs $\cdot$ 0.65 サイクル $\cdot$ 0.6 TW)のTLパルスに対応: 世界最高出力超2オクターブ光)、③高効率を特徴とする新しい多段コヒーレント・アンチストークス・ラマン法(330-720 nm のオクターブを越えるスペクトル)による極短光パルスの発生(13 fs)、④角度分散光パラメトリック増幅によるオクターブを越える超広帯域光増幅(500-1350 nm: 世界最大の増幅帯域幅)、⑤2オクターブを越える帯域で光電場の位相・振幅制御を可能にする新液晶空間光変調器の開発(300-1600 nm: 世界最大の紫外までの変調帯域幅)、⑥2オクターブを越える超広帯域光の新パルス波形計測(330-1360 nm: スペクトル位相の世界最広帯域計測; 唯一のサブサイクルパルス波形計測装置)に成功した。

第二の応用域の開拓については、①モノサイクル(MC)と2 サイクル(TC)光電場励起では、高調波XUVスペクトル構造・スペクトル位相・パルス波形構造・アト秒パルス幅(MC で $\sim$ 65 as, TC で $\sim$ 145 as: 後者は既実験と一致)のすべてに関して、著しく異なることが計算機解析により明らかにされた。この違いは、高調波アト秒パルス発生が本質的に励起光電場の半サイクル現象であることに起因している。②さらに、MC光電場励起では、搬送波包絡波位相・高調波スペクトル域・励起光強度・励起光波長の選択による高調波自身のイントリンシック位相分散の最小化を行うことで、チャープ補償することなく(補償法はない) 40 as 台XUVパルス発生が可能であることがわかった。③現アト秒計測法では測定困難な超短時間域のパルス波形計測問題の解決法とその実験手法(アト秒SPIDER法)を提示した。④電子のアト秒ダイナミクスの研究の第一歩として、発生させた高調波XUVパルスの2光子吸収によりHeの2電子励起状態を初めて観測した。

さらに⑤光励起で一重鎖(s)・二重鎖(d)可逆反応制御が可能な光応答性DNA に用いられるアゾベンゼン誘導体に対して、紫外可視域でフェムト秒過渡吸収信号を測定し、その複雑なふるまいが、提案したレート方程式解析により、説明できることを明らかにした。その結果、生成異性体信号の同定、励起光パルス当たりの光異性化率、異性体生成時間(数ps)などの超高速光異性化過程が明らかにされた。⑥加えて、400 nm 以下で反応する光応答性DNA(AzD-DNA)の超高速光異性化過程を明らかにし、励起光パルス当たりの光異性化率がAzD > AzD-(s)DNA > AzD-(d)DNA の順に小さいこと、AzD-DNAのS2励起状態の寿命が著しく短く(60 fs(s), 30 fs(d))これはDNA塩基からAzDへの分子内電子移動によることが初めて示された(異性体生成時間も数ピコ秒と非常に速い)。

一方、遺伝子の光制御については(名大担当)、⑦光応答性DNAの分子設計と合成を行い、DNA 二重鎖の配列特異性を失うことなくアゾベンゼンを多数導入することによって、二重鎖の形成と解離の完全な光制御を実現した。またアゾベンゼンを化学修飾することで、シス体の熱異性化の抑制にも成功した。⑧DNA エンザイムの光制御を行い、RNA 切断能を持つDNA エンザイムの光応答性DNA を結合することで、RNA 切断の光照射による可逆的on-off制御を実現した。⑨光応答性プロモーターによる転写反応の光制御を行い、上記アゾベンゼンをRNA ポリメラーゼのプロモーターに導入することで、転写反応の可

逆的光制御と無細胞翻訳系で緑色蛍光性タンパク質発現の光制御を実現した。

#### 4. 事後評価結果

##### 4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

本研究プロジェクトにおいて、極限光制御技術の開発については、(a) 超オクターブ光(450-975 nm)によるモノサイクル光の発生(2.6fs, 1.3 サイクル)、これは可視・近赤外光では世界最短。(b) 多段 CARS 光の光波合成による 330-720nm、13fs,  $\mu$ J 光の発生、(c) 光電場制御では、300-1200nm の2オクターブを越える帯域での位相・振幅制御可能な液晶空間光変調器(UV-NIR LC-SLM)を開発(世界最大の変調帯域幅)(d) 3オクターブを越える(330-1360nm)超広域光波のパルス波形観測(世界最大の帯域)など世界トップレベルの研究成果をあげている。

また、極限光制御技術の応用として、(a) アト秒短パルス化およびアト秒時間分解計測(共に計算機解析)、およびヘリウム2電子励起状態の観測に成功。(b) 光応答性 DNA の光異性化反応、二重鎖の形成・解離の制御、遺伝子発現の光制御などの研究を実施して、成果を出している。

さらには、パルス測定のアト秒 spider、角度分散型 NOPA など新規の装置を取り入れ、当初計画では想定されていなかった新たな展開もあり、よい成果を得ている。

研究成果の公開であるが、原著論文発表 36 件、口頭発表 125 件と多く、外部発表等は優れていると判断される。特に、名古屋大学浅沼グループはインパクトファクターの高い雑誌に論文を多数発表している点は特筆に価する。

一方で、優れた技術開発がなされていることは評価できるが、知的財産権の出願および活用に向けた取り組みについては特許出願が少ない点は残念である。

本研究プロジェクトは上述のとおり世界初となる数多くの成果が得られており、研究代表者のリーダーシップは優れていると判断されるが、専門が異なる名古屋大学との連携がより強化されていればさらなる成果が期待されたかもしれない。

##### 4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

本研究プロジェクトは、可視から近赤外におけるモノサイクル光の発生、300-1200nm の2オクターブを越える液晶空間光変調器(UV-NIR LC-SLM)の開発とこれを用いた光電場制御など、極限光制御では世界をリードする優れた研究成果をあげてきた。

今後は、光応答性 DNA の超高速光異性化反応の解明と量子制御への展開、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の開発、遺伝子発現の光制御の実現といった新領域への展開が期待される。

すでに述べたように、モノサイクル光の発生、超広帯域スペクトル光の制御など、本研究プロジェクトで開発された光制御技術は世界トップレベルである。しかし、現状では、これらの技術を用いて何か新しい物理現象が解明できるのか、あるいは何か新たなモノが作り出されるのかなど、応用が明らかでないために、社会的なインパクトは大きいとは言えない。

##### 4-3. 総合的評価

本研究は、超オクターブ光の発生・操作・計測技術、具体的には、高出力光発生、光増幅、光電場位相・振幅制御、光電場スペクトル位相計測、チャープ補償に関する極限光技術を開発すると共に、こうした極限

光技術の新領域への展開として、光応答性 DNA の超高速光異性化反応の解明と量子制御への展開、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の開発、遺伝子発現の光制御の実現などを目指したものである。特に、極限光技術に関しては、世界初となる成果が数多く得られており、研究領域の趣旨にてらして、十分な成果が得られていると判断される。一方で、極限光技術の新領域への展開については、今後の成果が待たれるところである。