

# 研究報告書

研究課題名：「時空間波形制御技術の開発と微小空間領域での非線形分光計測への応用」

研究期間：平成20年10月～平成24年3月

研究者：太田 薫

## 1. 研究のねらい

分光法は光の性質（振幅や位相、偏光）を利用し、周波数軸に分散したスペクトルを測定することで、物質材料や生命組織の微視的構造やダイナミクスを調べることができる重要な計測手法の一つである。微小空間領域での局所的な構造ダイナミクスの追跡や化学反応などの制御には時間分解能だけではなく、空間分解能も重要である。しかし、パルス光の時間、空間領域の両方の性質を極限にまで生かす波形制御技術やそれを利用した非線形分光法は未開拓のままである。本研究では超短パルス光の振幅や位相を時間、空間領域で同時に波形制御する新規かつ革新的手法の開発を行う。このことにより、時間領域で波形制御した超短パルス光の空間的なビームプロファイルを自由自在に制御することができる。さらに、我々が得意とする非線形分光法と融合することにより、微小空間領域での分光計測への可能性を追求する(図1)。

超短パルス光の波形制御技術はこれまで、時間領域で任意のプロファイルを持つ光を生成することを目的として発展し、化学反応や緩和過程のコヒーレント制御などの研究に応用されてきた。このような実験では、対象とする試料は透明で散乱が少なく、パルス光の時間的な性質が大きく変わらないことが前提条件であった。一方、パルス光の空間領域での波形制御技術は光の波面を正確に制御、補償することを目的として発展し、顕微分光でのイメージのコントラストの向上などに応用されている。しかし、このような手法を用いても、生体組織といった不透明試料の深部を高分解能で観測するには不十分であった。

本研究では、波面の空間的な歪みの補正とパルス光の時間特性の最適化を同時に行うといった手法の確立だけではなく、光が直進しないような散乱体中で、ある特定の場所に光を時間的、空間的に局在化させるといった課題にも挑戦する。超短パルス光の性質を時空間で積極的に操ることができれば、パルス光の特性が大きく変化し、これまでの分光手法が全く使えない状況に

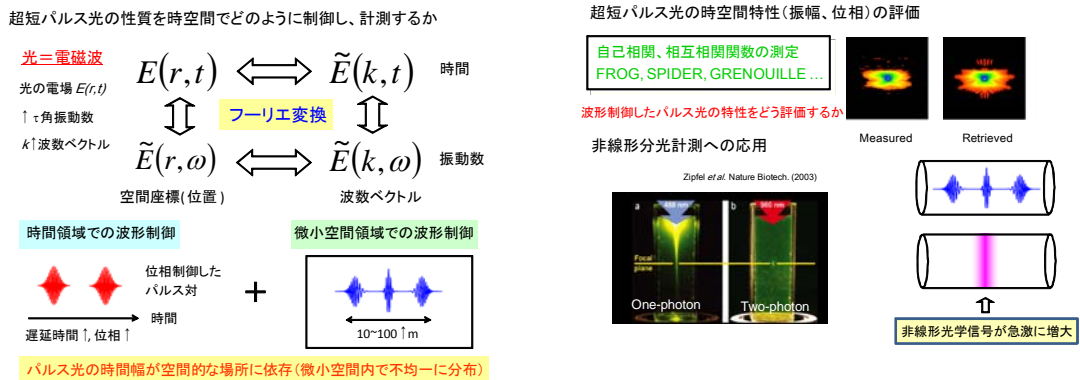


図1 研究計画の概要

においても、様々な現象を観察できる可能性が広がる。本研究では、新たに装置構築、開発から行い、異分野からのアイデアを積極的に取り入れることにより、初めて、実現が可能となるような方法論の開発に重点を置いている。

## 2. 研究成果

### 波長可変超短パルス光源システムの構築

研究を遂行するための光源として、フェムト秒チタンサファイアレーザーを導入し、非同軸光パラメトリック増幅器(NOPA)の構築を行った(図 2)。高出力かつパルス光の上質な空間モードを得るため、白色光シードで 2 個の BBO 結晶を用いた 2 段増幅による光学配置を用いた。その結果、500-700 nm で 10 μJ 以上の可視光を安定に発生させることができた。得られたパルス光のスペクトルを計測し、スペクトル幅 40-50 nm であることがわかった。出力パルス光の時間特性を評価したところ、その時間幅が 15-18 fs 程度であった。さらに、超短パルス光の時空間制御の可能性とその限界を調べるため、NOPA の改良を行い、スペクトル幅を 100 nm 以上に広げることができた。このような超短パルス光では、図 1 のフーリエ変換の関係から明らかのように、時空間特性の相関が重要となる。そのため、両者が絡んだ波形制御が必要となり、本手法の特色を最大限に活かすことができる。

広帯域光パラメトリック増幅器の概要

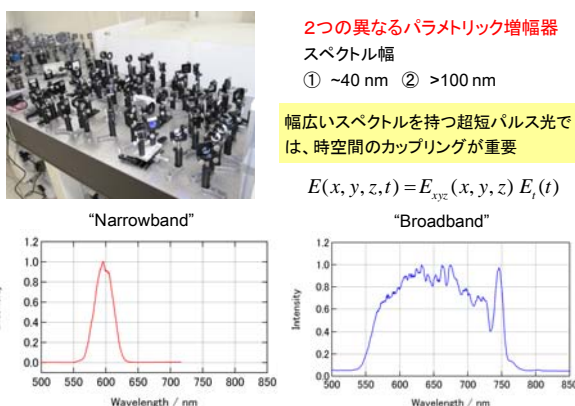


図 2 本研究で構築した波長可変超短パルス光源と光源から発生させたパルス光のスペクトル

### 時間領域での波形制御装置の構築と波形制御装置を用いた超短パルス光の時間特性の評価

1次元液晶空間変調器を用いた時間領域での波形制御装置を立ち上げた。レンズなどの色収差による影響を避けるため、円筒ミラーを用いた反射光学系をベースとした波形制御装置を構築した。周波数分解光ゲート法(FROG)や波形制御装置を用いた多光子パルス列干渉法(MIIPS)の計測系を構築し、パルス光の特性評価を行った。FROG法やMIIPS法により、光パラメトリック増幅器で発生させたパルス光の振幅と位相を同時に決定することができた。特に、MIIPS法では波形制御装置により、パルス光の振幅、位相の制御と計測を同時に行うことが可能となる(図 3)。波形制御装置では、パルス光の最適化だけでなく、任意のパルス列を生成させることができるので、長時間の位相安定性を維持

波形制御装置を用いた超短パルス光の時間特性の評価

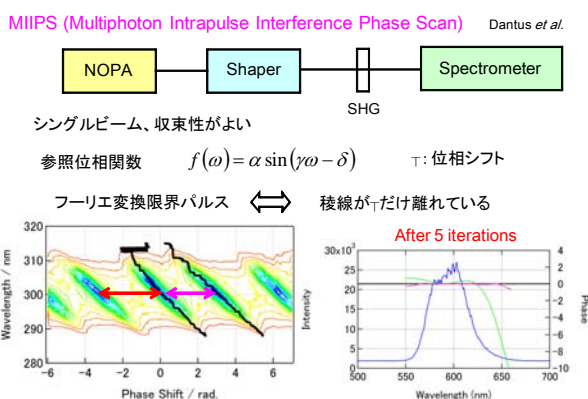


図 3 MIIPS 法による超短パルス光の特性評価とその計測例

した状態で、非線形光学信号の計測が可能となる。

### 空間領域での波形制御装置の構築とレーザー光の波面歪みの補償と制御

2次元液晶空間変調器を用いた空間領域での波形制御装置の構築を行った。また、空間的なビームの特性を評価するため、CCD カメラを用いた画像計測系の立ち上げも行った。ここでは、当初予定していたシャックハルトマン波面センサーによる計測ではなく、2次元液晶空間変調器を用いた波面計測系を構築した。この計測系により、試料位置での波面歪みの計測と補償、制御を同時に行うことが可能となった(図4)。非線形光学効果を利用した分光法と組み合わせることにより、時空間分光計測の分解能や信号雑音比の大幅な向上が期待できる。

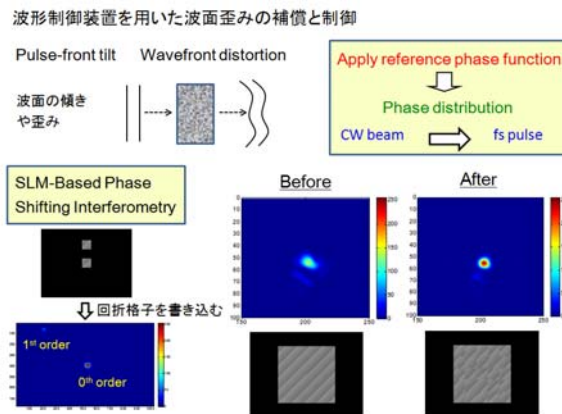


図4 波形制御装置を用いた波面歪みの制御：ここでは、空間変調器の画面を25区画に分け、2区画に回折格子を書き込む。1次の回折光の干渉を観測し、その位相差を決定する。各区画の位相を最適化することにより、波面の歪みが補正することができる。

### 散乱体透過条件下でのレーザー光の時空間制御

光学的に均一な場合と異なり、散乱体透過、反射条件下では超短パルス光の時空間特性は大きく変化し、その波面はスペckル状(斑点の集まり)になる。このため、高い時間、空間分解能での分光計測が不可能となる。このような状況においても、パルス光をある一点に集光し、時空間特性を最適化することができれば、これまでの分光手法が適応困難な状況においても様々な現象が観測でき、計測や制御の守備範囲が飛躍的に広がることが予想される。ここでは、2次元液晶空間変調器の位相をランダムに変化させ、多変数の効率的な最適化を行うことにより、ある特定の場所に光を局在化させることができた(図5)。さらに、散乱体での光伝搬の時間反転対称性を利用した伝送行列(Transmission matrix)法による時空間制御法による実験を行い、レーザー光を任意の異なる場所に短時間で局在化させることに成功した(図6)。今後は、時空間特性が絡みあう状況での波形制御法の方法論の確立と分光、イメージ計測の手法の開発を行っていきたい。

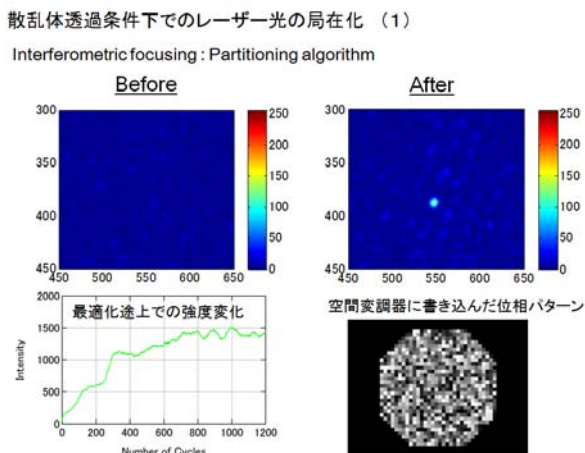


図5 散乱体透過条件下でのレーザー光での局在化：図右下のように、空間変調器の画面を880区画に分け、位相をランダムに変化することにより、特定の場所での強度が最大となるように、各区画の位相を最適化する。



### 散乱体透過条件下でのレーザー光の局在化 (2)

Measurement of transmission matrix 行列サイズ 1024 × 1024

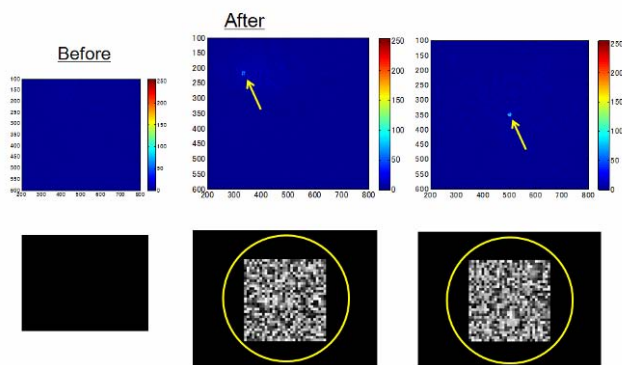


図 6 散乱体透過条件下でのレーザー光での局在化 : 図下のように、空間変調器の画面を 1024 区画に分け、各要素が 0 と  $\pi$  で構成されるアダマール基底行列を書き込む。その際の散乱画像を計測することにより、伝送行列を計算する。伝送行列の逆行列を求めることにより、特定の場所にレーザー光を局在化させることができる。

### 3. 今後の展開

近年、超短パルス光の利用はその特徴的な性質を生かし、基礎科学の分野だけではなく、ライフサイエンス分野での非線形光学効果を利用したイメージング分光法へと急速にその対象を広げている。そのため、細胞組織を取り出すことなく、生体内で非破壊的に観測できる手法の開発が多方面から望まれている。特に多光子顕微鏡によるイメージ計測では、励起に近赤外領域のパルス光を用いるため、散乱の影響が小さくなり、不透明試料の深部を観測できることといった利点を有している。しかし、深さ方向の分解能は依然として、ミリメートルオーダーで、表面近傍での状態が明瞭に観測されるのみであった。

今後は、本研究で開拓してきた方法論と非線形分光計測を融合し、従来では測定不可能であった対象への応用や展開を追求していきたい。現状では、波面の歪みは素早く補正することができるが、散乱体透過条件下での光の局在化には 30 分から 1 時間程度の計測時間が必要である。そのため、計測中に散乱条件が変化しないことが前提である。生体組織への展開を考えた場合、高速で波形制御を行う必要がある。また、散乱体透過条件下で光をある 1 点に集中させるだけではなく、画像を短時間で計測することができれば、レーザー光や試料部を走査せずにイメージングを行うことが可能となる。本研究で展開してきた方法論はまだ発展途上であるものの、超短パルス光の伝搬制御といった基礎的な光学の問題だけではなく、光源の先端的な利用と制御技術、計測法が融合することによって、バイオや医療といった様々な分野での応用展開が期待できる。

### 4. 自己評価

本研究では、時空間領域での超短パルス光の波形制御技術の開発と微小空間領域での線形分光計測への応用という目的で研究を開始した。当初の計画では、計算機プログラムを利用した光ビームパターンを微小空間に投影し、時間領域での波形制御と組み合わせて、非線形分光計測を行う予定であった。研究で用いる波長可変超短パルス光源や時間領域での波形制御装置を自作したため、研究期間の前半、立ち上げにかなりの時間を要した。最近、類似の手法を光遺伝学への応用した例などが報告され、その有用性が示されている。しかし、空間分解能は

回折限界で決まるため、“光の利用“という観点での手法の斬新性はないと考えた。そこで、時空間領域で複雑に絡みあった超短パルス光の特性をどのように評価し、制御するかという課題に方向転換した。この場合、時間領域と空間領域の波形制御を単純に組み合わせれば、実現できるというわけではなく、光が複雑な様相を示す媒質中をどのように伝搬するかを正面からとらえ、それを制御に活かすかという多くの基礎的な問題を含んでいる。このため、これまでの分光手法が全く使えない状況においても波形制御法と組み合わせることで実現できるという可能性が拡がり、様々な分野への応用が期待できる。方向転換後、超短パルス光の波面の歪みを計測、制御し、その時空間特性を最適化することが目標であったが、より複雑な散乱体透過条件下での超短パルス光の局在化というテーマにも挑戦することができ、一定の道筋がつけられたのは大きな成果であった。これは当初の計画では予定しておらず、全く別の可能性や方向性を示めすことができたと考えている。今後は、方法論の開拓を含め、非線形分光計測や制御への展開に力を注いでいきたい。本研究では、新たに実験装置を立ち上げ、異分野からのアイデアを積極的に取り入れて、課題の解決に挑んでいくというものであった。これまでとは全く異なる方法論や考え方を一から勉強せねばならず、順調に進んだとはいえないが、さきがけ研究でなければ挑戦できなかった課題に取り組み、超短パルス光の利用に対する新たな方向性を見出すことができたと考えている。

## 5. 研究総括の見解

パルス波形を制御することにより光化学反応の収率を向上させる研究、高次の非線形分光により超精密に励起状態分子の構造ダイナミクスを調べる研究を超えて、動的計測と分光を融合した微小領域の分光計測技術を開拓することを目指した。基礎的な課題で、広い知識、高度な技術が要求され、数々の実験的難題に出くわしたが、最終的には時間領域と空間領域で波面各部の位相制御を実現することにより、複雑な散乱体透過条件下での超短パルスの局在化を図る技術開発に一つの突破口を見出した。それを可能にしたのは、論文化をむやみに求めずに次の科学技術の種を探索することをよしとする、さきがけ研究の枠組みであり、太田研究者が発想をうまく転換したところに研究展開の秘密がある。まだ道半ばであるが、今後の大いなる発展に期待したい。

## 6. 主な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

なし

### (2) 特許出願

なし

### (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物等)

学会発表

Kaoru Ohta

“Development of spatio-temporal pulse-shaping technique and its application to nonlinear optical spectroscopy in microscopic region”

Academia Sinica & JST Joint Workshop on “INNOVATIVE USE OF LIGHT AND NANO/BIO MATERIALS”, Taipei, Taiwan, May 26-27, 2011

依頼講演

太田 薫

「非線形分光法による凝縮系でのダイナミクスの研究と超短パルス光の波形制御、計測法への展開」

強光子場科学研究懇談会講演会 神戸大学、平成 23 年 6 月 24 日