

News Release

2010年11月1日

国立大学法人 京都大学

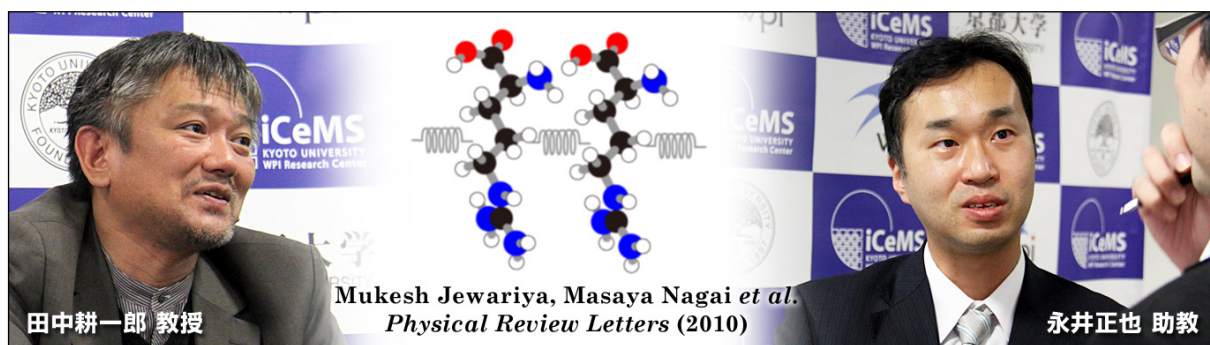
独立行政法人 科学技術振興機構

熱を加えずに結晶を柔らかくすることに成功 ～高強度テラヘルツ電磁パルスで分子ネットワーク操作が可能に～

国立大学法人 京都大学（総長 松本紘）は、テラヘルツ電磁パルス（※1）と呼ばれる新しい光を物質に照射することで、1兆分の1秒の短い時間で結晶中の分子を大振幅で揺さぶり、熱平衡状態では実現できないような分子変位を実現することに世界で初めて成功しました。実験結果は結晶が実効的にやわらかくなったことを意味するもので、さらに強いテラヘルツ電磁パルスによって高効率で結晶を融解させることを示唆します。これは熱による反応を起こすことなく新しい分子間のネットワークやたんぱく質などの巨大分子の立体配位を操作できることを示しています。したがって、化学合成における反応促進や、創薬における有機分子結晶の精製での活用が考えられます。

一般に強電場を物質中の結晶に加えると、結晶内の分子が持つ電荷分布に応じて分子配置を変化させることができます。しかし、電子レンジのように強い電場を定常的に加えると、緩和による熱が生じてしまい、分子配位を精密に操作することはできません。また高強度の光でも分子運動を起こせますが、光の電場の1周期は非常に短い（100兆分の1秒）ために効率よく分子を動かすことはできません。そこで京都大学 物質－細胞統合システム拠点（iCeMS＝アイセムス）の田中耕一郎教授、京都大学 大学院理学研究科 永井正也 助教（JST さきがけ研究者兼任）、ムケシュ・ジェワリヤ博士（元 京都大学 大学院理学研究科）らは、熱の影響が無視でき高効率で分子を大きく揺り動かすためには、1兆分の1秒の時間だけ強電場を連続的に加えることが必要だと考えました。これまで、この研究グループでは超短光パルスレーザーを誘電体結晶に照射することで発生するテラヘルツ電磁パルスの開発を行っており、1兆分の1秒の時間だけ100kV/cmを超える電場を持続させるパルスの発生に成功しています。そしてこの高強度のテラヘルツ電磁パルスをアミノ酸多結晶に照射し、結晶中を分子が非常に大きな振幅で振動していることを観測しました。このような運動は量子力学的には振動に起因する量子準位の梯子を何段も駆け上がると解釈でき、実験結果から数十段ものステップの駆け上がりを実現したと考えることができます。通常の光では数段しか駆け上がれないことを考えると、テラヘルツ電磁パルスを用いて初めて成功したと言えます。

今回の成果はJST 戦略的創造研究推進事業、日本学術振興会学術創成プロジェクト「動的相スイッチ機構を内在する有機電子材料の開拓と非平衡物性科学への展開」（研究代表 田中耕一郎 教授）、および京都大学グローバルCOEプログラム「普遍性と創発性から紡ぐ次世代物理学」によるものであり、米国東部時間2010年11月11日に米国物理学会誌 *Physical Review Letters*（電子版）で公開される予定です。



田中耕一郎 教授

Mukesh Jewariya, Masaya Nagai et al.
Physical Review Letters (2010)

永井正也 助教

1. 研究の背景と経緯

レーザーが誕生して以降、光で分子や固体の状態を制御する研究は光化学反応や結晶構造制御への応用の観点から非常に盛んに行われてきました。例えば分子内の振動を高強度の超短光パルスで大振幅に駆動させると原子や分子間の平均距離が大きくなって解離してしまい、新しい分子状態への移行を促すことができます。この衝撃力によって大振幅の分子振動が引き起こされる様子は、量子力学的には図1に示すように振動に起因する量子準位を何ステップも駆け上がることに対応しています。このような現象はその様子から「量子準位の梯子の駆け上がり」と呼ばれています。この際に量子準位間の間隔の逆数の時間（1兆分の1秒）の周波数の電場成分を全て含むことが重要です。このような研究は中赤外光を用いて行われており、最先端の超短光パルス技術を駆使することで数段の量子準位の梯子の駆け上がりが観測されています。

物質の性質を変えるような分子の運動は、より周波数の低いテラヘルツ領域の分子振動が効果的です。テラヘルツ周波数は300 GHzから10 THzの周波数帯を指し、物性を司る様々な現象が観測される大変魅力的な領域です。多くの研究者が現在も盛んにテラヘルツ領域の分子の運動を調べています。しかし、これまでは高強度の光源がなく、大振幅で分子の運動を駆動することができなかったことから、光パルスを使った分子を揺る研究がこれまで行われてきました。しかし大振幅の運動を引き起こす効率がそれほど大きくない上に、予期せぬ熱緩和の影響が生じてしまうため、狙った分子の運動を引き起こすことが容易ではありません。そこで、あらかじめ分子運動を効率よく引き起こすように電場波形を制御すれば、高効率に大振幅で分子を揺り動かせるのではないかと考え、テラヘルツ電磁パルスが最適な電磁パルス光源であることを見出しました。

2. 研究内容

本研究グループでは、これまでに超短光パルスレーザーと誘電体結晶を用いたテラヘルツ電磁パルスの発生に関する研究を行っていました。そこで実証実験では1兆分の1秒の時間に100kV/cmもの電場を持続させるパルスを用いました。試料としてアミノ酸であるL-アルギニンの微結晶をポリエチレンで固めたペレットを用いました。この物質は1.1THzに分子間振動に起因する吸収が見られ、温度とともに吸収ピークが低周波数側に単調にシフトする様子が観測されています。分子間振動は分子間距離に作用する運動であり、結晶の「融解」に直結するものです。したがってこのような温度依存性は結晶が温度を上げるとともに「やわらかくなる」ことを示しています。この分子間振動は比較的単純な非調和ポテンシャルで容易に説明することができます。

この結晶に高強度のテラヘルツ電磁パルスを照射しその応答を観測すると、分子間振動に起因するスペクトルが低周波数側に裾を引くような変化を観測しました。この温度変化は高温のときのスペクトル形状に似ています。しかし入射したテラヘルツ電磁パルスのエネルギーは1mW以下と非常に微弱であり、このようなスペクトル変化は熱によって生じたものと考えにくいです。むしろ、結晶が瞬間的に大きな力によって分子ごと大きくゆすられたため、分子間の結合が弱められたと解釈することができます。一般に分子の振動に関する運動は、量子力学的には振動に起因する量子準位の梯子をどのように駆け上がっていくかということで解釈します。そこで振動準位をどのように駆け上がったかを

検証した結果、数十段もの量子梯子の駆け上がりを実現したことが分かりました。通常の赤外光パルスでは数段しか駆け上がることができないことを考えると、実証実験で得られた応答は通常の光では実現できないほど結晶がやわらかくなったと解釈することができます。

3. 今後の展開

今回の実証実験ではさらに高強度のテラヘルツ電磁パルスを用いることで、熱を出さずに結晶を融解させることが可能であることを示唆しています。これは熱による反応を起こすことなく新しい分子間のネットワークやたんぱく質などの巨大分子の立体配位を操作できることを示しています。したがって化学合成における反応促進や創薬における有機分子結晶の精製での活用が考えられます。また大振幅で分子を揺することで生じる応答を調べることで、たんぱく質などの巨大分子の運動がどのように機能発現につながるのかを調べるすることができます。

用語解説

※ 1) テラヘルツ電磁パルス (THz=10¹²Hz)

1 ピコ秒=10⁻¹²秒の時間だけ電圧が定常的に生じる電磁パルスのこと。このようなパルスは伝送や信号処理が難しく、一般にテラヘルツ帯の電磁波として取り扱われる。テラヘルツ帯は300GHzから10THzの周波数の電磁波。光子エネルギーがmeVで分光学的には遠赤外線光と呼ばれる。この周波数帯はさまざまな物質・材料にとって重要なエネルギー領域に属することから、計測ツールとなることが期待されている。

参考図

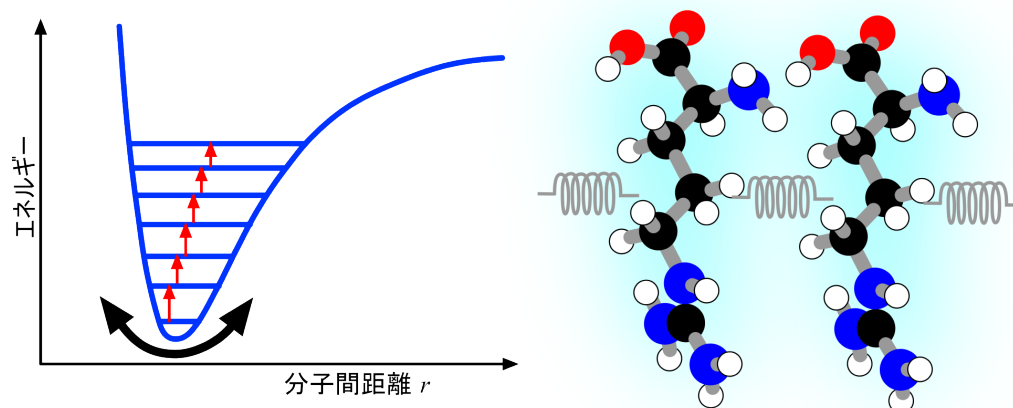


図 1 : 大振幅分子間振動の概念図。生体関連分子材料では分子間の振動を担うポテンシャルは非調和になっており、大振幅振動が起きると分子間の平均距離が広がって結晶が膨張しやわらかくなります。量子力学的にはポテンシャルに対応する量子準位を考え、その量子準位の「梯子」を高い準位まで一気に駆け上がることを意味します。今回の研究では量子準位間の間隔の逆数の時間 (1兆分の1秒) だけ電場を連続的に印加することで高効率に大振幅運動を引き起こすことができたと考えられます。

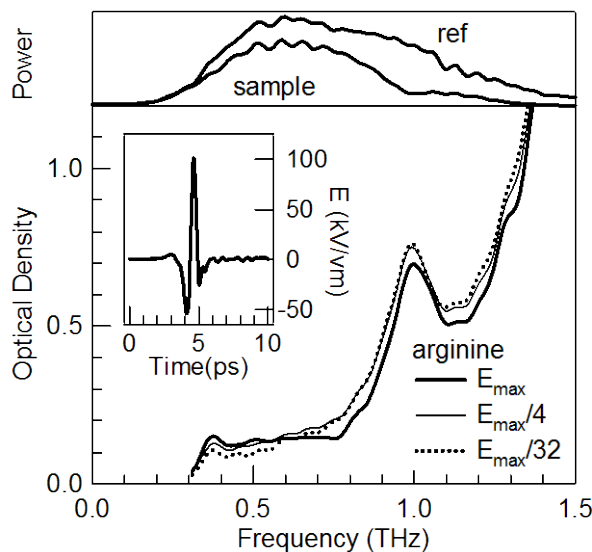


図2： 高強度 THz 電磁パルス（スペクトル形状を上、時間波形を挿図として）をアルギニン微結晶のペレットに照射した際の透過スペクトル。最大電場強度を上げると1THzの吸収が飽和し、代わって低周波数側に吸収の増大が観測される（Physical Review Letters Fig. 2 を抜粋）

論文名・著者名

“Ladder climbing on the anharmonic intermolecular potential in an amino acid microcrystal via an intense monocycle terahertz pulse”

Mukesh Jewariya, Masaya Nagai, and Koichiro Tanaka

問い合わせ先

田中 耕一郎（たなか こういちろう）

京都大学 物質－細胞統合システム拠点（iCeMS）教授

Tel: 075-753-3756 | Fax: 075-753-3757 | E-mail: kochan<at>icems.kyoto-u.ac.jp

永井 正也（ながい まさや）

京都大学 大学院理学研究科 助教

Tel: 075-753-3776 | Fax: 075-753-3757 | E-mail: mnagai<at>scphys.kyoto-u.ac.jp

飯島 由多加（いじま ゆたか）

京都大学 iCeMS 事務部 国際広報セクションリーダー

Tel: 075-753-9755 | Fax: 075-753-9759 | E-mail: yutaka-ijima<at>icems.kyoto-u.ac.jp

<JSTの事業に関すること>

河村 昌哉（かわむら まさや）

科学技術振興機構（JST）イノベーション推進本部 研究領域総合運営部

Tel: 03-3512-3531 | Fax: 03-3222-2066 | E-mail: crest<at>jst.go.jp