

研究課題別評価書

1. 研究課題名

単一分子分光による固体中の単一スピンの観測

2. 氏名

松下 道雄

3. 研究のねらい

核スピンは取り得る量子状態の数が限られているので、量子情報の格好の担い手になる。ところが、現在まで行われてきた室温の溶液の核磁気共鳴 Nuclear Magnetic Resonance (NMR)による量子論理演算は、多数のスピンが作り出す巨視的磁化の操作と観測から成り立っており、量子情報はアボガドロ数程度の膨大な数のスピンの集団が担っている。核スピンの利点を活かした本格的な量子論理演算を行うには、個々のスピンを操作し、その量子状態を観測する必要がある。これを実現する実験手法の一つとして、本研究は単一分子分光の技術を用いて低温固体中の一個の不純物イオンの発光を検出し、その核スピン状態を光遷移のゼーマン効果を利用して検出することを目指している。

4. 研究成果

本研究は個々のスピンの量子状態を知ることを目指しており、低温固体中の一個の核スピンに対して、その量子状態が変わらないうちに光でその状態を同定しようとするものである。具体的には、 LaF_3 結晶中にLaの 1/10000 程度混入させた Pr^{3+} の波長 478 nmの光遷移($^3\text{H}_4$ から $^3\text{P}_0$)を用いる。この遷移は磁場を加えたときの遷移エネルギーの変化が核スピン状態ごとに異なる。従って、あらかじめ一個の Pr^{3+} の発光しか検出しないような状況を作っておいた上で、どの波長の光でイオンが励起されて発光するかを調べればそのイオンの核スピンの量子状態が分かる。核スピンの量子状態が熱揺らぎによって変化してしまえば情報の担い手にならないので、測定は液体ヘリウム中で行う。

液体ヘリウム温度でイオン一個からの発光を検出することを目指して低温の顕微分光を始めるに当たり、先ず直面したのが対物レンズの問題である。試料に対する対物レンズの位置をしっかりと固定して試料からの微弱な発光をできるだけ大きな立体角で逃さず捉えるには、対物レンズを試料の直近に配置して液体ヘリウム中で使うことになる。市販の組みレンズは、材料の熱収縮によってレンズの相対配置が崩れてしまうなどのため液体ヘリウム温度では使うことができない。このため、球面収差を補正した単レンズを用いてきたが、本研究で励起に用いる波長 478 nmと検出する発光の波長 600 nm ではガラスの屈折率分散に起因する色収差が大

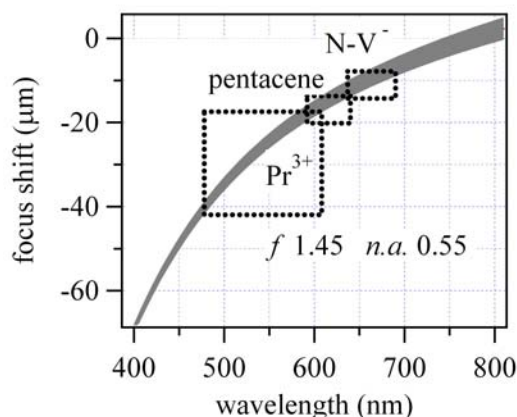


図1 単レンズ ($f = 1.45$ mm, $n.a. = 0.55$, 材質: CO550 glass)の焦点の色収差と被写界深度

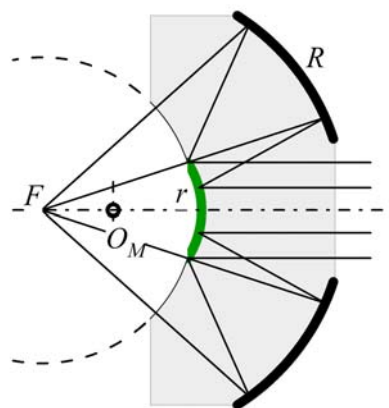


図2 一体成型反射対物レンズ

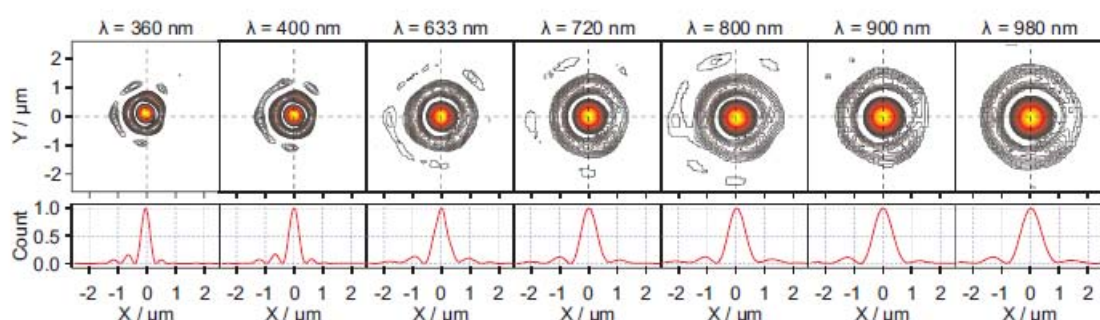


図3 $f = 2 \text{ mm}$ の一体成型反射対物レンズで撮った直径 100 nm のビーズの散乱像。レンズは液体ヘリウム中にあり、波長を変える間にレンズは全く動かしていない。

き過ぎて一枚のレンズでは両方を同時に扱うことができない。図1にこれまで対物レンズとして用いてきた非球面単レンズの焦点距離の波長依存性を示す。短波長になるほど波長依存性が強く、僅かな波長範囲でしか集光しない。図中の曲線の幅はそれぞれの波長における回折限界のスポットの奥行き、被写界深度をあらわす。回折スポットの中に入っていれば焦点を結ぶとみなせるが、スポットの大きさも波長に比例して短波長で小さくなる。改めて単一電子スピン遷移の観測が成功している二つの系を見てみると、励起波長が 590 nm 以上（橙から赤）と長波長で、励起波長と発光波長の差もおおよそ 50 nm と小さく、対物レンズの色収差は問題にならなかったことが分かる。

そこで我々はまず、色収差なく液体ヘリウム温度で使える対物レンズとして一体成型反射対物レンズを開発した[論文リスト 1]。国内の光学素子メーカーで試作を引き受けてくれる会社を探したところ数社見つかり、試行錯誤の後、最終的にこのうちの一社で完成にこぎつけることができた。製作した対物レンズを図2に示す。基本はCassegrainと俗称される、 O_M を共通の中心に持つ2枚の球面鏡から成る反射光学系である。冷却によってアラインメントが崩れるのを防ぐため、2枚の鏡は一塊の石英の内側に向けて作りこんである。光線が石英から出入りする界面は、屈折の影響を最小限にするために光線に垂直になっている。焦点 F は2枚の球面鏡の中心 O_M からちょうど焦点距離 f だけ離れている。焦点距離 f は2枚の球面鏡の曲率半径、 r と R の間には、

$$f : r : R = 1 : \sqrt{5} - 1 : \sqrt{5} + 1$$

という関係があり、最低次の球面収差がなくなるようになっている。

図2の対物レンズは基本的に反射光学系なので色収差は解決されている。最低次は消えているがまだ残っている高次の球面収差がレンズの開口数を制限している。収差は、回折限界のスポットサイズを超えなければ許容できる。回折スポットの大きさは波長に比例し、球面収差の大きさは幾何学的な光路のずれなのでレンズの大きさに比例する。このことから、より短波長で、より大きな開口数で使うにはレンズの大きさを小さくすればよいことが分かる[投稿中]。レンズの工作技術も確立してきたため、当初の半分の大きさの $f = 2 \text{ mm}$ のレンズを作ることができた。図3はこのレンズを用いて液体ヘリウム温度で撮影した直径 100 nm のビーズの散乱像である。レンズを全く動かさずに波長 360 nm から 960 nm まで使えることが分かる。レンズの特徴を活かして我々は最近緑色の蛍光を発するタンパク質 GFP の液体ヘリウム温度における二光子蛍光スペクトルの測定に成功した[論文リスト 3]。

5. 自己評価

研究期間中に、液体ヘリウム中で近赤外から紫外域まで使える対物レンズの開発に成功した[論文リスト 1]。当初の目標が、単一イオンの発光検出を利用した磁場中の単一核スピンの量子状態の観測であったことに照らし合わせると、光に関する部分の最大の技術的困難を克

服できたことになる。本来の目標に向けては、核スピンの制御と観測に関わる技術確立をしなければならぬ。たとえば、望み通りのゼーマン効果を生じさせるために、液体ヘリウム中の結晶試料に対して、顕微鏡の焦点にある一つの不純物サイトに 1000 ガウスのオーダーの磁場を特定の方向に 1,2 度の精度で加える技術、などが必要である。

一方開発した対物レンズは、低温の顕微分光の適用範囲を一気に可視の全域と紫外域に拡げるものである。液体ヘリウム温度で単一タンパク質の可視蛍光分光が可能であることを初めて示すことができた[論文リスト 3]。

6. 研究総括の見解

磁場中の単一核スピンの量子状態の観測を主たる目標としていましたが、最大のハードルを越えたようです。今後は、磁場の制御などの課題はあるものの着実に進むでしょう。その中で開発した低温の顕微分光用の対物レンズは世界オンリーワンであり、量子と情報の分野を超えた広い応用があり、すでに成果も出しています。この先の発展が楽しみです。さきがけ研究が有効に働いた好例と見ることができます。また、松下さんは優秀な若手をこの研究で育成しました。

7. 主な論文等

【A さきがけの個人研究者が主導で得られた成果】

①論文

1. S. Fujiyoshi, M. Fujiwara, C. Kim, M. Matsushita, A. M. van Oijen, and J. Schmidt, “Single-component reflecting objective for low-temperature spectroscopy in the entire visible region”, *Applied Physics Letters* 91 (2007) 051125.
2. H. Oikawa, S. Fujiyoshi, T. Dewa, M. Nango, and M. Matsushita, “How Deep Is the Potential Well Confining a Protein in a Specific Conformation? A Single-Molecule Study on Temperature Dependence of Conformational Change between 5 and 18 K”, *Journal of the American Chemical Society* 130 (2008) 4580.
3. S. Fujiyoshi, M. Fujiwara, and M. Matsushita, “Visible Fluorescence Spectroscopy of Single Proteins at Liquid-Helium Temperature”, *Physical Review Letters* 100 (2008) 168101.

②特許出願

なし

③受賞

なし

④著書

なし

⑤学会発表

1. 藤原 正規、藤芳 暁、松下 道雄, “一体成形反射型対物レンズの開発”, 分子構造総合討論会 2006, 2P112.
2. 藤原正規、藤芳暁、松下道雄, “一体成形反射型対物レンズを用いたヘリウム温度における散乱イメージング”, 日本物理学会 2007 年春季大会, 21aZB-13.
3. 藤原正規、藤芳暁、松下道雄, “1.5K で使える反射対物レンズの球面収差及び色収差の改善”, 日本物理学会第 63 回年次大会, 23pYD-5(2008).
4. 吉弘達矢、平野充遙、藤芳暁、松下道雄, “低温固体中の単一イオンの発光検出に向けた可視顕微分光システムの開発”, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 20pZA-5.

⑥招待講演
なし

【B その他の主な成果】

①論文
なし

②特許出願
なし

③受賞
なし

④著書
なし

⑤学会発表
なし

⑥招待講演
なし