

令和 5 年 5 月 25 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02658

研究課題名(和文) 試料を選ばない高速近接場光学顕微鏡の開発

研究課題名(英文) High-speed near-field optical microscopy with low restriction to samples

研究代表者

馬越 貴之 (Umakoshi, Takayuki)

大阪大学・高等共創研究院・講師

研究者番号：00793192

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：高速近接場光学顕微鏡は、金属探針の先端で生成した近接場光を高速に走査することによって、超解像光学イメージを高速取得できる超解像光学顕微鏡である。物理的に微小な近接場光を用いるため、超解像蛍光顕微鏡と異なり、様々な光計測法を組み込むことが特長の一つである。本研究では、様々な試料を観察できるように改良した高速近接場光学顕微鏡を新たに開発した。構築した高速近接場光学顕微鏡を用いて、先端材料や生体試料など様々な試料を様々な条件で観察した。また、反射型計測のための横照射系を構築し、その動作性を検証した。汎用性の高い高速近接場光学顕微鏡を実現するために、非常に有用な進捗と知見を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高速近接場光学顕微鏡は、従来の近接場光学顕微鏡を大幅に高速化した新規超解像光学顕微鏡である。様々な光計測法を組み込んで、試料をナノスケールで高速に観察できる。本研究結果は、高速近接場光学顕微鏡の汎用性が著しく高められることを示唆するものであり、様々な試料を高速近接場光学顕微鏡で観察できるようになれば、その優れた分析能を活かして多岐にわたる分野・領域に貢献できる。

研究成果の概要(英文)： The high-speed near-field optical microscopy is a super-resolution optical microscope capable of rapidly acquiring super-resolution optical images by swiftly scanning near-field light produced at the tip of a metallic probe. Utilizing physically tiny near-field light, unlike super-resolution fluorescence microscopes, one of its important features is its capability to incorporate various light measurement methods. In this study, we have developed an improved high-speed near-field optical microscope capable of observing various specimens. Utilizing the constructed high-speed near-field optical microscope, we were able to observe a range of samples, including advanced materials and biological samples under various conditions. Additionally, we constructed a side-illumination system for reflective measurements and verified its operability. These advancements have proved highly beneficial in realizing a versatile high-speed near-field optical microscopy.

研究分野：近接場光学

キーワード：近接場光学顕微鏡 高速原子間力顕微鏡

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近接場光学顕微鏡は、金属探針の先端で生成される微小な近接場光を用いて超解像光学イメージングを実現する顕微鏡法である[S. Kawata et al., *Nat. Photon.* (2013).]. 例えば、超解像蛍光顕微鏡と比べて、様々な光計測法で超解像イメージングを達成できるという特長を有する。さらに最近では、空間分解能の向上も著しく、サブナノオーダーの空間分解能が報告されるなど、その性能向上も著しい。他方で近年、本顕微鏡法に高速原子間力顕微鏡の高速探針走査技術を組み込んだ高速近接場光学顕微鏡が開発された[T. Umakoshi et al., *BBA Gen. Sub.* (2020).]. 空間分解能ではなく、時間分解能に対する新しいアプローチとして注目されている。高速に近接場光を走査することによって、高速近接場光学イメージングが可能になってきた。生体分子などのダイナミクスを高速に近接場光学観察できるポテンシャルを有する強力な顕微鏡である。しかしながら、光学的に透明で薄い試料しか観察できないなど、本顕微鏡を適用可能な試料に様々な制限があった。高速近接場光学顕微鏡の構成を様々な改良することによって、様々な試料を観察できるようになれば、様々な光計測法を融合できる特性と相まって、極めて汎用性の高い超解像光学顕微鏡を実現することができる。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、高速近接場光学顕微鏡の装置構成を改良することによって、様々な試料に適応可能な汎用性の高い高速近接場光学顕微鏡を構築することである。さらに、試料によって最適な計測条件を個別かつ網羅的に検証することも目的とした。

### 3. 研究の方法

高速原子間力顕微鏡ヘッドの構成を一から見直して再構築し、様々な試料に対応できるようにした。また、試料に対して様々な角度から入射光を導入できるように、横照射系も構築した。改良した高速近接場光学顕微鏡を用いて、カーボン材料や生体試料など様々な試料を観察した。入射光強度に対する耐性なども、高速原子間力顕微鏡観察を通して検証した。

### 4. 研究成果

様々な試料の観察に対応できるようにするため、一から新たに高速近接場光学顕微鏡を構築した。図 1(a) が新しく構築した高速近接場光学顕微鏡の全体像である。倒立型光学顕微鏡の上部に高速原子間力顕微鏡を設置し、光学定盤上に近接場光学顕微鏡用の光学系を配置した。図 1(b, c) に示すのが、構築した高速原子間力顕微鏡ヘッドと高速探針スキャナーである。高速原子間力顕微鏡は、カーボンナノチューブや脂質二重膜などを用いて、10 フレーム/秒で高速原子間力顕微鏡観察できることを確認した。構築した高速近接場光学顕微鏡は、高速原子間力顕微鏡の下方から金属探針先端に入射光を照射できるようになっている。また、スタンドアロンタイプの高速度原子間力顕微鏡であるため、数センチメートルスケールの比較的大型のサンプルも設置できる。本高速近接場光学顕微鏡を用いて、カーボンナノチューブや脂質二重膜など先端材料から生体試料まで観察できることを確認した。

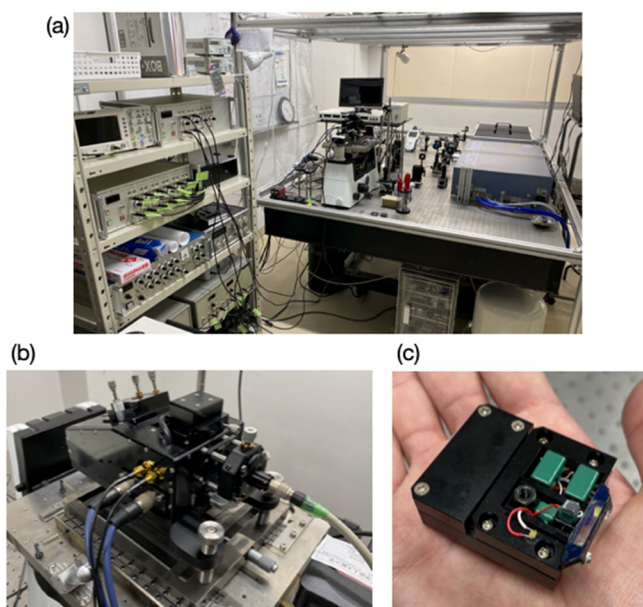


図 1. (a)構築した高速近接場光学顕微鏡の全体像  
(b) 高速原子間力顕微鏡 (c) 高速探針スキャナー

さらに、試料に合わせて様々な方向から入射光を導入できるように、横照射系も構築した(図 2)。レーザーをシングルモードファイバーを用いて横照射系に導入し、長距離動作対物レンズで探

針先端に集光できるようにした。本照射系は角度可変であり、任意の場所に設置できる仕様になっている。加えて、マイクロアクチュエータで照射位置を 3 次元的に精密に制御可能である。

また、本高速原子間力顕微鏡は、探針が高速に動くチップ走査型的高速原子間力顕微鏡である。従って、近接場光学計測時には、入射光も探針の動きに合わせて高速に走査する必要がある。そこで、 piezomirror scanner を自作し、探針トラッキングシステムを構築した。探針の動きと同期的に走査できるよう、ソフトウェアも開発した。ナノスケールの精度で、入射光と探針の動きを一致させられることを、光学計測を通して確認した。

この他にも、蛍光計測以外にも様々な光計測を実施できるように、種々のレーザーや分光器などを導入した。ラマン計測も可能になっており、ラベルフリーに様々な試料からの信号を取得できるようになっている。また試料

に応じて入射レーザー強度を最適化することも汎用性向上のためには重要である。特に生体試料において、入射レーザーパワーを変えながら高速原子間力顕微鏡で観察することによって、数 mW 以上のパワーで生体試料が劣化していく様子が観察された。その他の試料でも同様の計測を行い、種々の試料に最適な環境で高速近接場光学計測を実施できるようにしていきたい。

また、近接場光学顕微鏡の要である金属探針についても、高速走査用に独自開発した。高速近接場光学顕微鏡では、特殊なマイクロカンチレバーを用いる必要がある。マイクロカンチレバーに対して並行方向から金薄膜を真空蒸着することによって、図 3 に示すようにプラズモニックに有意な金属探針を作製することに成功した。

この他にも、信号の微弱な試料にも対応できるよう、極めて安定性の高いシステムの構築など、汎用性向上のため広範に技術開発を進展させることができた。引き続き、高速近接場光学顕微鏡の開発を進め、その汎用性を活かして様々な分野へ貢献できる顕微法へと進化させていきたい。

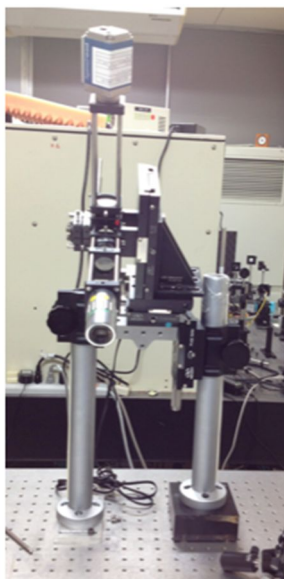


図 2. 構築した横照射系の全体像

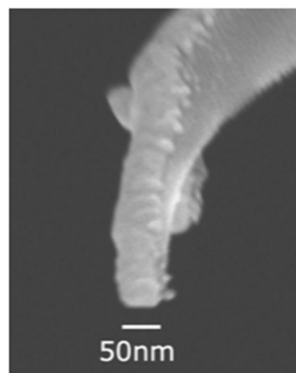


図 3. 開発したマイクロカンチレバー金属探針の電子顕微鏡像

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Kato Ryo, Umakoshi Takayuki, Verma Prabhat	4. 巻 125
2. 論文標題 Raman Spectroscopic Nanoimaging of Optical Fields of Metal Nanostructures with a Chemically Modified Metallic Tip	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 20397 ~ 20404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c04823	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 Moriyama Toki, Umakoshi Takayuki, Hattori Yoshiaki, Taguchi Koki, Verma Prabhat, Kitamura Masatoshi	4. 巻 6
2. 論文標題 Polarization Raman Imaging of Organic Monolayer Islands for Crystal Orientation Analysis	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 9520 ~ 9527
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.0c06313	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Taguchi Koki, Umakoshi Takayuki, Inoue Shota, Verma Prabhat	4. 巻 125
2. 論文標題 Broadband Plasmon Nanofocusing: Comprehensive Study of Broadband Nanoscale Light Source	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 6378 ~ 6386
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c11541	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 Umakoshi Takayuki, Kawashima Koji, Moriyama Toki, Kato Ryo, Verma Prabhat	4. 巻 12
2. 論文標題 Tip-enhanced Raman spectroscopy with amplitude-controlled tapping-mode AFM	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 12776
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-17170-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kato Ryo, Moriyama Toki, Umakoshi Takayuki, Yano Taka-aki, Verma Prabhat	4. 巻 8
2. 論文標題 Ultrastable tip-enhanced hyperspectral optical nanoimaging for defect analysis of large-sized WS <sub>2</sub> layers	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabo4021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abo4021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yadav Ravi, Umakoshi Takayuki, Verma Prabhat	4. 巻 12
2. 論文標題 Numerical characterization of optical properties of tapered plasmonic structure on a cantilever pyramidal tip for plasmon nanofocusing	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 085216 ~ 085216
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0106066	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Umakoshi Takayuki, Urakami Takumi, Kidoguchi Haruki, Yang Keishi, Verma Prabhat, Sato Hirofumi, Higashi Masahiro, Tsukamoto Ikuko	4. 巻 127
2. 論文標題 Raman Spectroscopic and DFT Study of COA-Cl and Its Analogues	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 1849 ~ 1856
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.2c08382	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 Umakoshi Takayuki	4. 巻 20
2. 論文標題 Near-field optical microscopy toward its applications for biological studies	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Biophysics and Physicobiology	6. 最初と最後の頁 e200011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2142/biophysico.bppb-v20.0011	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 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Takayuki Umakoshi, Koki Taguchi, and Prabhat Verma
2. 発表標題 Broadband plasmon nanofocusing: From fundamental studies to advanced applications
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 馬越貴之
2. 発表標題 近接場光を用いた先端ナノフォトニクス計測
3. 学会等名 第24回"光"機到来Qコロキウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takayuki Umakoshi
2. 発表標題 Near-field optical microscopy and its recent advances: high-speed imaging and broadband measurements
3. 学会等名 IMS-FHI Joint Seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takayuki Umakoshi, Yuika Saito, and Prabhat Verma
2. 発表標題 Plasmon-nanofocused broadband light source
3. 学会等名 JSAP-OSA joint symposia 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 馬越貴之
2. 発表標題 近接場光学顕微鏡の高速化 -生命ナノ動態をありのままに観察する光学顕微鏡を目指して-
3. 学会等名 日本放射線影響学会第63回大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takayuki Umakoshi, Koki Taguchi, Hiroshi Arata, and Prabhat Verma
2. 発表標題 Broadband nanolight source generated through plasmon nanofocusing and its applications
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022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
---------	---------