

令和元年6月14日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03765

研究課題名(和文)希土類イオンの単スピン状態の1イオン光検出

研究課題名(英文)Optical Detection of spin states of individual ions

研究代表者

松下 道雄(Michio, Matsushita)

東京工業大学・理学院・准教授

研究者番号：80260032

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：我々は、結晶中にある無数のイオン一つをそれぞれ1量子ビットずつに割り当てることで、量子ビットを高度に集積することを目指して、新しい系の探索と観察する光学顕微鏡の独自開発を10年にわたり続けてきた。当該研究では、Pr³⁺同士の三次元相対位置を決定する場合に、遷移双極子の向きにより、20-30 nmの系統誤差が生じることが分かった。そこで、三次元のすべての軸を高精度に決定することで、この系統誤差を補正する成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得た二つの顕微技術は、希土類イオンの量子論理演算だけでなく、物理、化学、薬学、医学に広く使える技術である。特に、薬学医学応用にとっても大きな可能性があると考えている。この技術を用いれば、細胞内部の個々の分子が分子解像度で観察できる可能性を持っている。本課題は終了したが、本研究を継続させると共に、こちらの研究も進めて行く予定である。

研究成果の概要(英文)：In the present project, we demonstrated two experimental techniques. First, we demonstrated a solid-immersion-lens (SIL) microscope to improve the resolution and the detection solid angle. We experimentally showed that by using the SIL, the resolution and the detection solid angle were improved by a factor of 2 and 3, respectively. Second, we demonstrated nanometer-accuracy fluorescence microscopy of individual two-color emitters. Depending on the orientation of the transition dipoles of the emitters with respect to the focal plane, their spots were spheroids whose major axes tilted from the axial direction. When acquired with the axial uncertainty of a conventional fluorescence microscope (700 nm), the tilt due to the dipole orientation caused a lateral shift of 20 nm. Improving the axial uncertainty to 18 nm enabled visualization of these two emitters with a 1-nm accuracy. The technique is necessary to accurately determine the 3D position of multiple rare-earth ions in crystal.

研究分野：低温顕微鏡

キーワード：1分子観察

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

量子論理演算における単一核スピン状態の光検出の必要性

量子演算が実現しているアボガドロ数個の分子を対象とした NMR 実験では、熱平衡にあるアンサンブルの磁化を観測している。核スピン状態のゼーマン分裂はたかだか 1 GHz であり、熱エネルギー $kT = 6$ THz に比べて、はるかに小さいため、全スピンの 10^{-5} 程度しか NMR 信号に寄与していない。量子演算の信号はさらに小さく、ビット数の増大と共に指数関数的に減少し、アンサンブルの熱揺らぎの中に埋もれてしまう。現実的な桁数の量子論理演算は、単一核スピン状態が観測できてはじめて原理的に可能になる。加えて、試料の扱いやすく、高度な集積化が可能な固体素子による量子演算が理想的である。

どのように LaF₃ 結晶中の Pr³⁺ が有望なのか。

LaF₃ 結晶中にドーブされた Pr³⁺ (Pr³⁺: LaF₃) では、核スピン状態間 ($I = 5/2$) の緩和時間が約 1 秒と量子演算をおこなうのに十分長く、その核スピン状態を光検出、操作できる系である。Pr³⁺ の電子基底状態 ³H₄ のゼロ磁場における核スピンの分裂は 8.5 MHz と 16.7 MHz である。Pr³⁺: LaF₃ を数 K に冷却すると、Pr³⁺ の ³H₄ → ³P₀ の電子遷移 (波長 478 nm、周波数 $\nu_{\max} = 627.327$ THz) の吸収線幅は、基底状態の核スピンの分裂より細くなるために、光学遷移の周波数の違いから任意の Pr³⁺ の核スピン状態を個別に遷移させることができる (光ポンピングと呼ばれる)。ラジオ波を使って核スピン状態を遷移させると、すべての Pr³⁺ を同時に遷移させてしまうのに対して、これは大きな利点である。このような特性から、個々の希土類イオンの光検出は、多ビット量子演算のための系として有望であり、理論的な研究も進んでいる。しかし、実際には、³H₄ → ³P₀ の電子遷移の寿命が 47 μ s と長く、1 個の Pr³⁺ から発光される単位時間あたりの光子数とその逆数以下に制限されるため、昨年まで、世界で誰も Pr³⁺ の 1 イオン検出に成功していなかった。そこで、申請者らは、この系に専用の低温顕微鏡を独自開発することで、LaF₃ 結晶中の Pr³⁺ の 1 イオン光検出に成功していた。

2. 研究の目的

古典コンピューターにおける論理演算の考え方を根底からくつがえす量子論理演算は、すでに少数の量子ビットであれば実現している。しかし、現実的な桁数の演算にはほど遠い。そこで、研究代表者らは、結晶中にある無数のイオン一つ一つをそれぞれ 1 量子ビットずつに割り当てることで、量子ビットを高度に集積することを目指し、新しい系の探索と観察する光学顕微鏡の独自開発を 10 年にわたり続けてきた。その結果、昨年春、ついに LaF₃ 結晶中にドーブされた Pr³⁺ を 1 イオンごとに光検出することに成功した。当該研究では、この成果を発展させ、①複数のイオンの核スピン状態を個別に光操作することで量子演算を実現する。②量子演算に用いる Pr³⁺ 同士の三次元相対位置を数 nm の精度で決定する方法論を確立し、Pr³⁺ 同士の相互作用を精密に分光測定することで、集積化された Pr³⁺ で実現可能な量子論理演算を評価することを目的とした。

3. 研究の方法

集積化された Pr³⁺ から正確な量子論理演算をおこなうための課題は、(1) 弱い信号をいかに効率良く検出するかと (2) 集積された Pr³⁺ の三次元空間位置を正確に知るかであった。このため、本研究では二つの方法を実行し、これに成功した。

4. 研究成果

半球レンズを用いた光検出[主要な論文5]

結晶の蛍光観察を行う際に問題になるのが、界面屈折の影響である。これは、実効的な検出の立体角を小さくし、奥行き方向の視野を十ミクロン程度に小さくしてしまう。これを回避するために、半球レンズを用いたクライオ蛍光顕微鏡を製作し、これらの問題が発生しないことを実験的に検証した[主要な論文5]。

双極子輻射による系統誤差の補正[論文投稿中]

量子ビットとして取り扱うことができる Pr³⁺間の距離は約十ナノメートルである。ところが、研究当初には想定していなかった系統誤差により、Pr³⁺間の距離が 20~50 nm 誤認してしまうことが分かった。そこで、研究の予定を変更し、この系統誤差の原因を距離 10 nm 離れた 2 色の色素の蛍光イメージを取ることで実験的に明らかに、補正方法を検討した。2 色の色素は剛直なロッド状分子である二本鎖 DNA (30 塩基対) に隔てられている。この色素の相対位置を従来の方法で測定すると、色素間の距離が 0~50 nm に分布した。さらに、色素の蛍光スポットを注意深く観察すると、色素の配向に応じて蛍光スポットの長軸が奥行き方向に対して斜めになっていた。これが系統誤差の原因であった。そこで、この系統誤差を補正したところ、正しい色素間の距離を測定することに成功した。色素の場合は配向がランダムであるが、Pr³⁺は結晶軸に対して並んでいるために、結晶軸を実験室系に合わせることでこの問題が無視できると考えており、顕微鏡の改良を進めている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

1. 田邊大明・資延 啓・近藤 徹・櫻井敦教・丸尾美奈子・島内明里・平野充遙・宇野真之介・神谷真子・浦野泰照・松下道雄・藤芳 暁

「Cryogenic Fluorescence Localization Microscopy of Spectrally Selected Individual FRET Pairs in a Water Matrix」

The Journal of Physical Chemistry B・122・P. 6906-6911・2018 年・査読有り

2. 古林 琢・本橋和也・若尾圭祐・松田 剛・喜井 勲・細谷孝充・林宣宏・定家真人・石川冬木・松下道雄・藤芳 暁

「Three-Dimensional Localization of an Individual Fluorescent Molecule with Angstrom Precision」

Journal of the American Chemical Society・139 号・P. 8990-8994・2017 年・査読有り

3. 小川 佳宏「Observation of bound and antibound states of two excitons in GaAs single quantum well by two-dimensional coherent spectroscopy」

PHYSICAL REVIEW B・95 号・201113(R)・2017 年・査読有り

4. 稲川博敬・虎谷靖泰・本橋和也・中村一平・松下道雄・藤芳 暁

「Reflecting microscope system with a 0.99 numerical aperture designed for three-dimensional fluorescence imaging of individual molecules at cryogenic temperatures」

Scientific Reports・5 号・P. 12833・2015 年・査読有り

5. Yuan, H.・Gaiduk, A.・Siekierzycka, J.R.・藤芳 暁・松下道雄・Nettels, D.・Schuler, B.・Seidel, C.A.M.・Orrit, M. 「Temperature-cycle microscopy reveals single-molecule conformational heterogeneity」

Physical Chemistry Chemical Physics・17 号・P. 6532-6544・2015 年・査読有り

〔学会発表〕(計 14 件)

1. 古林琢・松下道雄・藤芳暁「三次元分子解像度のクライオ1分子蛍光顕微鏡」
日本物理学会・2017年3月17日・大阪大学
2. 資延啓・田邊大明・藤芳暁・松下道雄「スペクトル選択クライオ超解像顕微法のための色素の探索」
日本物理学会・2017年3月17日・大阪大学
3. 古林琢・松下道雄・藤芳暁「生体分子の高精度3Dイメージングを目指したクライオ蛍光顕微鏡の開発」
日本化学会・2017年3月19日・慶應日吉キャンパス
4. 石井啓暉・古林琢・藤芳暁・松下道雄「クライオ1分子蛍光顕微鏡のための試料走査機構の製作」
日本物理学会・2017年9月23日・岩手大学
5. 古林琢・松下道雄・藤芳暁「クライオ1分子蛍光顕微鏡の高精度化に向けた技術開発」
日本物理学会・2017年9月23日・岩手大学
6. 松田剛・古林琢・松下道雄・藤芳暁「1分子の3次元位置をショットノイズ限界で測定可能な顕微法の光学シミュレーション」
日本物理学会・2017年9月23日・岩手大学
7. 資延啓・田邊大明・石井啓暉・松田剛・藤芳暁・松下道雄・藤芳暁「クライオ超解像蛍光顕微鏡の製作」
分子科学討論会・2017年9月15日・東北大学
8. 石田啓太・古林琢・松下道雄・藤芳暁「3次元点像分布関数を測定することによる分子レベル光イメージング；光学シミュレーション」
日本物理学会・2018年9月9日・同志社大学
9. 古林琢・石田啓太・松下道雄・藤芳暁「3次元点像分布関数を測定することによる分子レベル光イメージング；実験」
日本物理学会・2018年9月9日・同志社大学
10. 石井啓暉・虎谷泰靖・藤原正規・石田啓太・藤芳暁・松下道雄「高開口数かつ広視野のクライオ対物鏡」
分子科学討論会・2018年9月12日・福岡国際会議場
11. 石田啓太・藤芳暁・松下道雄「クライオ蛍光顕微観察における界面屈折に由来する収差の光学シミュレーションによる研究」
分子科学討論会・2018年9月12日・福岡国際会議場
12. 古林琢・石田啓太・藤芳暁・松下道雄「クライオ蛍光顕微鏡による二本鎖DNAの1分子分光イメージング」
分子科学討論会・2018年9月12日・福岡国際会議場
13. 富永波輝・松下道雄・藤芳暁「クライオ1分子顕微鏡の機械的安定化」
分子科学討論会・2018年9月13日・福岡国際会議場
14. 松田剛・古林琢・松下道雄・藤芳暁「生体内1分子イメージングのための三次元カメラの開発」
分子科学討論会・2018年9月13日・福岡国際会議場

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://info.phys.sci.titech.ac.jp/laboratory/matsushita.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：小川 佳宏

ローマ字氏名：Yoshihiro Ogawa

所属研究機関名：上越教育大学

部局名：大学院学校教育研究科

職名：准教授

研究者番号（8桁）：50372462

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。