

令和 6 年 4 月 24 日現在

機関番号：63903

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15119

研究課題名（和文）光誘起力顕微鏡によるナノスケールでの光ダイナミクスの可視化

研究課題名（英文）Visualization of optical dynamics at the nanoscale using photoinduced force microscopy

研究代表者

山西 絢介 (Yamanishi, Junsuke)

分子科学研究所・メゾスコピック計測研究センター・特別研究員

研究者番号：00846115

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究計画は、パルス光を用いた光誘起力顕微鏡観測を行うことにより、高い時空間分解能での物質の光学応答を観測することを目的としている。本研究では最初に、探針側面及び直下より光が導入可能な自家製の光誘起力顕微鏡の開発に成功した。しかしながら、パルス光を探針と試料に導入したところ当初の測定系では予想していなかった不安定な探針の動きを見せた。そのために本研究計画では試料の高次の分極率の観測の他に、分極率の非対角項に由来する双極子を光誘起力顕微鏡によって観測する発展的な取り組みを行った。その結果、物質のキラリティを反映する像をナノスケールで観測することに成功し、これまでにない測定が可能になった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究計画で開発した光誘起力顕微鏡は現存の装置の中で、最も高い信号雑音比を持つ。そのため、開発した光誘起力顕微鏡を用いて更なる観測を続けていくことで、今後明らかになっていないナノ光学の学理構築が進んでいくと考えられる。また、さらなる発展的な光誘起力顕微鏡の観測は、物質の様々な光応答を測定することが可能になり、化学的な材料や生体分子の評価にも応用することが可能になってくると考えられる。

研究成果の概要（英文）： The objective of this research project is to observe the optical response of materials with high spatial and time resolution by using pulse laser light for photoinduced force microscopy. In this study, we first succeeded in developing a home-made photoinduced force microscope in which light can be introduced from the side and just below the tip. However, when pulse laser light was introduced to the tip and the sample, the tip movement was unstable, which was not expected in the original measurement system. Therefore, in this research project, in addition to observing higher-order polarizabilities of the sample, we also tried advanced measurement to observe dipoles arising from the off-diagonal elements of polarizability using the photoinduced force microscope. As a result, we succeeded in observing images reflecting the chirality of materials at the nanoscale.

This measurement were previously not possible.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：光誘起力顕微鏡 光圧 ナノフォトニクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光学現象の各時間におけるダイナミクスをナノスケールで可視化することができれば、局所的に生じている光学応答の全体像を明らかにすることが可能になる。そういったナノスケールでの光学ダイナミクスの可視化は、学術的に未到達な領域というだけでなく、様々な実材料への応用も期待される。一方そのようなナノスケールの光学現象のダイナミクスを可視化するには、局所観測手法に時間分解測定を組み合わせた観測を実現する必要がある。

本研究では、ナノスケールでの局所観測手法である光誘起力顕微鏡を用いて、時間分解能観測に取り組む。一方で、光誘起力顕微鏡には、光照射による探針と試料の熱膨張による信号が、光誘起力の信号に混在してしまうという問題点が存在する。そのため、先行研究において時間分解測定技術であるポンプ・プローブ法を用いて、光誘起力顕微鏡による時間分解測定がなされたが、熱膨張の影響を取り除けておらず、信頼に値する測定結果も得られていない。その他の研究においても、光誘起力の検出自体を断念する流れとなってしまう。

一方、代表者はこれまで世界に先駆けて光誘起力と、探針と試料の熱膨張の信号の分離を実現する測定手法(ヘテロサイン FM 技術)を開発した。この測定手法を応用すれば、熱膨張の影響を受けずに光誘起力顕微鏡による時間分解測定も可能になると考えられる。さらに、ヘテロサイン FM 技術は光誘起力の検出感度を上昇させる特徴もある。これによって、一般に信号の検出感度が問題となる時間分解測定においても、十分な信号強度が得られることが期待される。また、ヘテロサイン FM 技術は代表者が独自に開発した最新の技術であり、本研究ではさらに世界的に先んじて応用開発を進めることが出来る。

2. 研究の目的

本研究の目的は、「ヘテロサイン FM 技術を導入したポンプ・プローブ法による時間分解光誘起力顕微鏡法を実現すること」と、それによって「単一分子や量子ドット内部の光励起、緩和過程をかつてないレベルの空間分解能と時間分解能で明らかにすること」である。

3. 研究の方法

本研究では、光誘起力顕微鏡にヘテロサイン FM 技術を導入したポンプ・プローブ法を用いることによって、高い空間と時間分解能での観測を実現する。この実現に必要なこととして、以下のことが挙げられる。

(1)ヘテロサイン FM 技術とパルス光が導入可能な光誘起力顕微鏡の構築

ヘテロサイン FM 技術は光誘起力の信号と、探針と試料の熱膨張による信号を分離することができる。しかし、ヘテロサイン FM 技術を用いた上でパルス光が導入できる光誘起力顕微鏡は、いまのところ存在しない。ここではまず探針側面及び直下より任意の光が導入可能な自家製の光誘起力顕微鏡の開発を行う。また、観測する力は通常的光誘起力顕微鏡の観測よりは小さな力であると予想されるため、高い信号検出感度を示す検出系の構築に取り組む。

(2)ヘテロサイン FM 技術のポンプ・プローブ法への導入

次にヘテロサイン FM 技術を時間分解測定のためのポンプ・プローブ法に導入し、熱膨張の効果を分離した時間分解測定手法を開発する。この方法は、ポンプ光とプローブ光の変調周波数の差周波が、ヘテロサイン FM 技術の変調になるようにすると実現できる。その後開発した手法によって、どれほど熱膨張の効果を様々な状況下で取り除けているか調査する。

(3)高い空間と時間分解能での光誘起力顕微鏡イメージング

(2)で開発した手法を用いて、時間分解光誘起力顕微鏡イメージングを行う。測定対象としては、量子ドット内の欠陥準位による発光や、単一分子の二光子励起過程などの光ダイナミクスを高い空間と時間分解能で可視化する。光源は主にパルス幅100フェムト秒の波長可変レーザーを用いる。

4. 研究成果

本研究では、高い安定性をもって高精度に光誘起力顕微鏡観測を行う必要がある。そのため本研究では最初に、探針側面及び直下より光が導入可能な安定で高精度な自家製の光誘起力顕微鏡の開発に取り組んだ。開発した光誘起力顕微鏡を図1に示す。開発した光誘起力顕微鏡は、光の強度変調されたレーザー光を照射できる設計となっている。開発した光誘起力顕微鏡の検出系の測定ノイズスペクトルを図2に示す。このノイズスペクトルはカンチレバーの熱振動ノイズと検出系ノイズの和としてあらわされ、一般に検出系ノイズが顕微鏡の性能を表す。本研究で開発した顕微鏡の検出系ノイズは図2の結果から計算して、おおよそ 19 fm/Hz だった。これは、光誘起力顕微鏡としては、世界最高の力検出感度であり、そのベースとなる原子間力顕微鏡としても、最高峰の力検出感度であった。

続いて、パルス光を探針と試料に導入した時の測定時の挙動を確かめた。パルス光を探針と試料に導入したところ当初の測定系では予想していなかった不安定な探針の動きを見せた。そのため試料の非線形な光学応答を観測するに至らなかった。

また、そのために本研究計画では試料の高次の分極率の観測の他に、分極率の非対角項に由来する双極子を光誘起力顕微鏡によって観測する発展的な取り組みを行った。円型金ナノ構造体を観測した結果、右回りと左回りの円偏光照射ごとの光誘起力顕微鏡像において、顕著な差が得られた(図3)。その空間分解能は数十 nm 程度にまで達しており、現存する円偏光応答を観測する顕微鏡として最高レベルの空間分解能が実現した。この技術の発展により、単一分子スケールでのキラリティ構造解析が今後実現すると期待される。

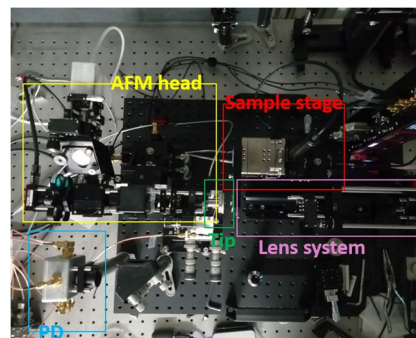


図1 自家製の任意の光が導入可能な光誘起力顕微鏡。

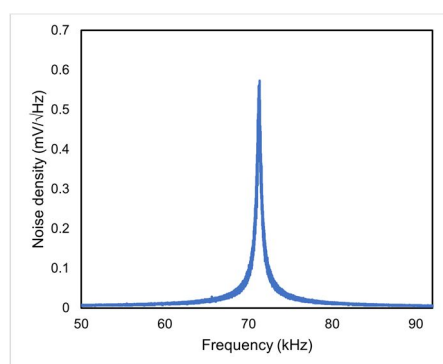


図2 自家製光誘起力顕微鏡ノイズスペクトル。

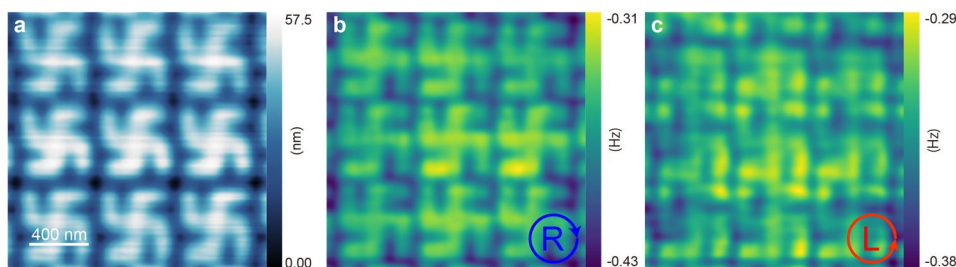


図3 円型キラリティな金ナノ構造体の円偏光光誘起力顕微鏡観測。a)凹凸像。b, c)右回りおよび左回り円偏光照射時の PiFM 像。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yamanishi Junsuke, Yamane Hidemasa, Naitoh Yoshitaka, Li Yan Jun, Yokoshi Nobuhiko, Kameyama Tatsuya, Koyama Seiya, Torimoto Tsukasa, Ishihara Hajime, Sugawara Yasuhiro	4. 巻 12
2. 論文標題 Optical force mapping at the single-nanometre scale	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-021-24136-2	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 Yamanishi Junsuke, Yamane Hidemasa, Naitoh Yoshitaka, Li Yan Jun, Sugawara Yasuhiro	4. 巻 120
2. 論文標題 Local spectroscopic imaging of a single quantum dot in photoinduced force microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 161601 ~ 161601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0088634	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 Yamanishi Junsuke, Ahn Hyo-Yong, Okamoto Hiromi	4. 巻 23
2. 論文標題 Nanoscope Observation of Chiro-Optical Force	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 9347 ~ 9352
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.3c02534	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2件（うち招待講演 1件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 山西 絢介、山根 秀勝、余越 伸彦、鳥本 司、石原 一、菅原 康弘
2. 発表標題 光誘起力顕微鏡法によるナノスケールでの光圧マッピング
3. 学会等名 第69回春季応用物理学会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山西 絢介、山根 秀勝、余越 伸彦、鳥本 司、石原 一、菅原 康弘
2. 発表標題 光誘起力顕微鏡による光圧分光マッピング
3. 学会等名 第82回秋季応用物理学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 石原 一、芦田 昌明、笹木 敬司、熊倉 光孝、尾松 孝茂、秋田 成司、庄司 暁、川野 聡恭、坪井 泰之、東海林 竜也、岡本 裕己、菅原 康弘、山西 絢介、内藤 賀公、李 艶君、伊都 将司、瀬戸浦 健仁、杉山 輝樹、細川 千絵、杉浦 忠雄	4. 発行年 2021年
2. 出版社 朝倉書店	5. 総ページ数 216
3. 書名 光圧	

〔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
---------	---------