

令和 2 年 6 月 7 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K19003

研究課題名（和文）光照射に伴う双極子を力として検出する近接場光学顕微鏡の単原子観察条件の研究

研究課題名（英文）Investigation of atomic resolution imaging conditions for near-field optical microscopy detecting optical dipole forces

研究代表者

菅原 康弘（Sugawara, Yasuhiro）

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：40206404

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：近接場光を高分解能に測定するために制限している因子を理論的・実験的に検討し、近接場光を力として高分解能に測定するための条件を求めた。次に、近接場光を力として高感度・高分解能に測定するため、近接場光学顕微鏡の様々な構成要素の低ノイズ化を実現した。具体的には、カンチレバーの変位検出計の高周波化と低ノイズ化を実現するとともに、カンチレバーの小振幅動作を実現し、力検出の高感度化・高分解能化を実現した。また、バックグラウンド光を低減した光照射系を実現した。さらに、近接場光の分布を原子スケールで超高感度・超高分解能に観察できることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子レベルでの物質と光との相互作用に関する科学は、学術的研究課題の宝庫である。本研究の成功により、従来の常識を覆す新しい物理現象や画期的な機能を発見できる可能性が高い。このような発見は、新しい概念に基づく新材料や新デバイスの創製につながると期待される。また、このような革新的な研究手法の出現は、光物性研究の仕方を質的に変える可能性がある。

研究成果の概要（英文）：We theoretically and experimentally investigated the factors that limit near-field light with high resolution, and found the conditions for high-resolution measurement with near-field light as a force. Next, in order to measure with high sensitivity and high resolution by using near-field light as a force, the noise reduction of various components of the near-field optical microscope was realized. Specifically, we realized a high-frequency and low-noise cantilever displacement detector, and realized a small-amplitude operation of the cantilever, achieving high sensitivity and high resolution of force detection. We also realized a light irradiation system with reduced background light. Furthermore, it was demonstrated that the distribution of near-field light can be observed at the atomic scale with ultra-high sensitivity and ultra-high resolution.

研究分野：走査型プローブ顕微鏡

キーワード：近接場光学顕微鏡 双極子力

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

物質近傍に局在する光(近接場光)を検出し、回折限界を超える光学顕微鏡を実現しようとする試みが行われてきた。しかし、先鋭化した光ファイバや金属探針を用いて近接場光を伝搬光に変換する方式では、原子分解能(0.2nm以下)での観察は困難であった。

これまで申請者は、力を用いて物質表面の構造を原子レベルで観察する原子間力顕微鏡に関する研究を推進し、力学的に原子種を同定できることなどを解明してきた。

最近、申請者は、物質表面に局在する光(近接場光)の強度分布を力として検出するという新しい概念の光学顕微鏡について研究を行っている(図1)。この顕微鏡では、物質表面への光照射により誘起される双極子と、これが原子間力顕微鏡の金属探針(力センサー)に誘起される双極子との間の双極子・双極子相互作用を力として検出する。この新しい概念の光学顕微鏡(光誘起力顕微鏡)で高分解能観察が可能かどうかを実験的に検討し、金(Au)薄膜表面に局在する近接場光をナノスケールの空間分解能で測定することに成功した。しかし、その画像化機構については、十分に理解されていない。

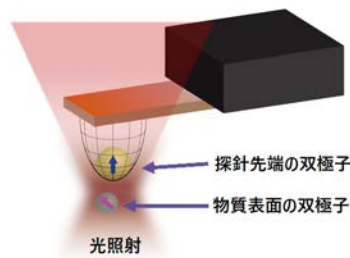


図1 力を検出する新しい近接場光学顕微鏡

2. 研究の目的

本研究は、「物質表面の個々の原子を原子分解能で観察可能な次世代の光学顕微鏡を開発すると共に、その原子分解能観察の機構を解明すること」を目的とする。

具体的課題は、以下の3点である。

- 1) 光誘起力を原子分解能で観察するための条件を理論的・実験的に明らかにする。
- 2) 光誘起力を高感度・高分解能に測定するため、様々な構成要素を低ノイズ化する。
- 3) 光誘起力がどのように画像化されるかを理論的・実験的に明らかにし、その画像化機構を検討する。

3. 研究の方法

平成30年度(2018年度)は、まず、近接場光を高分解能に測定するために制限している因子を理論的に検討し、近接場光を力として高分解能に測定するための条件を求めた。次に、近接場光を力として高感度・高分解能に測定するため、近接場光学顕微鏡の様々な構成要素の低ノイズ化を実現する。具体的には、カンチレバーの変位検出計の高周波化と低ノイズ化を実現する。また、カンチレバーの小振幅動作を実現し、力検出の高感度化・高分解能化を実現する。さらに、バックグラウンド光を低減した光照射系を実現する。

令和元年度(2019年度)以降は、まず、近接場光を力として高分解能に測定するための条件を実験的に検討する。次に、近接場光の分布を原子スケールで超高感度・超高分解能に観察できることを実証する。試料表面としては、原子レベルで清浄で平坦な表面が容易に得られる金表面や、その上に吸着させた量子ドットを取り上げる。さらに、量子ドットが、近接場光の3次元分布としてどのように撮像されるかを理論的・実験的に検討し、画像化機構を解明する。

4. 研究成果

1) 近接場光の最適観察条件の理論的検討

近接場光を高感度・高分解能に測定するために制限している因子を理論的に検討し、近接場光を力として高分解能に測定するための条件を求めた。具体的には、物質表面への光照射により誘起される双極子と原子間力顕微鏡の金属探針に誘起される双極子との間の双極子・双極子相互作用を力として高感度に検出するための変換効率を検討した。また、カンチレバーの変位検出計の雑音、カンチレバーの熱振動による雑音、カンチレバーのバネ定数や振動振幅などの測定条件の影響を検討した。

2) カンチレバーの変位検出計の低ノイズ化

近接場光を高感度に測定するため、カンチレバーの変位検出計(光てこ方式変位検出計)の低ノイズ化を実現した(図2)。具体的には、現有の変位検出計では、光路間の干渉により検出感度が制限されているので、コヒーレント長の長い光源を利用することにより干渉による影響を低減し、変位検出計の低ノイズ化(30fm/√Hz以下のノイズ密度)を実現した。

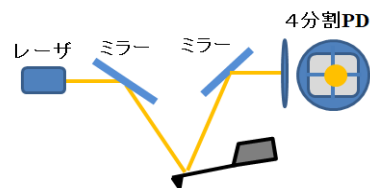


図2 変位検出系

3) 力検出の超高感度化・超高分解能化

近接場光による力を高感度・高分解能に測定するため、ばね定数が大きく、共振周波数の高いカンチレバー ($k=2,000\text{N/m}$, $f=2\text{MHz}$) を導入した (図3)。このようなカンチレバーを導入することにより、カンチレバーの熱振動が減少し、力の検出感度が向上する。また、小振動振幅 (0.1nm 程度) での動作により、探針・試料間の相互作用時間が長くなり、力の検出感度が一桁以上向上し、空間分解能も向上する。

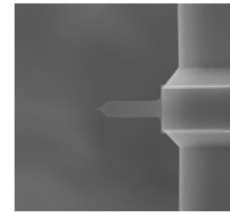


図3 小型で堅いカンチレバー

4) バックグラウンド光を低減した光照射系の実現

顕微鏡探針を物質表面に接近させ、探針・物質表面間を強度変調された光で照射し、カンチレバーの周波数シフトに現れる変調成分をロックインアンプで検出することにより、近接場光を測定する (図4)。近接場光を高分解能に検出するためには、バックグラウンド光を低減した光照射系を実現することが重要である。そこで、様々な光学素子の不要反射が極限まで低減するように光照射系を改良した。

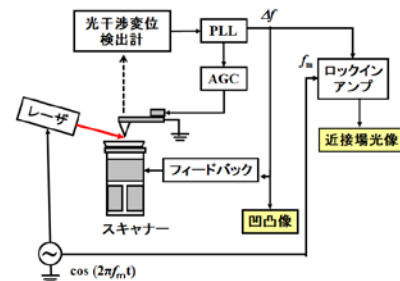


図4 近接場光分布の測定方法

5) 光熱効果の影響を除去できるヘテロダイ周波数変調法を開発

強度変調したレーザー光をナノ物質に照射し、探針に働く力の変調成分を測定する方法では、ナノ物質と原子間力顕微鏡の探針の両方にレーザー光が照射されてしまうため、光誘起力だけでなく、光熱効果によるカンチレバーの熱振動によるみかけの力も一緒に検出されてしまう。そこで、光熱効果による見かけの力を除去し、光誘起力だけを分離測定する方法として、ヘテロダイ技術と周波数変調法に基づく方法 (ヘテロダイ周波数変調法) を開発した (図5)。この方法では、カンチレバーの1次の共振モードの周波数シフトを検出し、ばね定数が小さい1次の共振モードを利用するため、光誘起力に対する検出感度が向上する。また、周波数変調法を用いるため、高感度に力検出が可能となる。

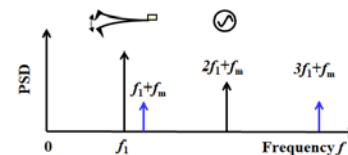


図5 ヘテロダイ

周波数変調法

6) 近接場光の最適観察条件の実験的検討

近接場光を最も高感度に測定するための条件を実験的に検討した。具体的には、光誘起力の探針・試料間距離依存性 (図6) を測定し、数値計算により、様々なカンチレバーの振動振幅に対する光誘起力の探針・試料間距離依存性を導出した。この距離依存性に対して信号対雑音比を求め、最も感度の良くなる振動振幅を求めた。

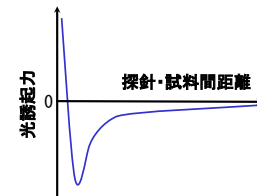


図6 光誘起力の探針・試料間距離依存性

7) 近接場光学顕微鏡の原子分解能観察の実証

光誘起力顕微鏡の光の波長を 660nm と 520nm として ZAIS 量子ドットに働く光誘起力を測定した。原子間力顕微鏡像では、2つのナノ楕円体とナノロッドからなるダンベル構造が明瞭に観察された (図7 (a))。他方、光誘起力像では、ZAIS 量子ドットの両端のナノ楕円体とナノロッドの光誘起力が、波長に依存して大きく変化した。波長 660nm の場合、光吸収は、ナノロッドではかなり小さく、ナノ楕円体でわずかにあるだけであるが、光誘起力像では、ナノ楕円体とナノロッドのコントラストに大きな差が表れた (図7 (b))。波長 520nm の場合、ナノ楕円体の光吸収は、ナノロッドの光吸収よりもかなり大きい、光誘起力像では、ナノ楕円体とナノロッドのコントラストに大きな差はなかった (図7 (c))。こ

これらの結果は、光誘起力は、光吸収には起因せず、分極率の実部に由来する勾配力に起因することを示唆している。

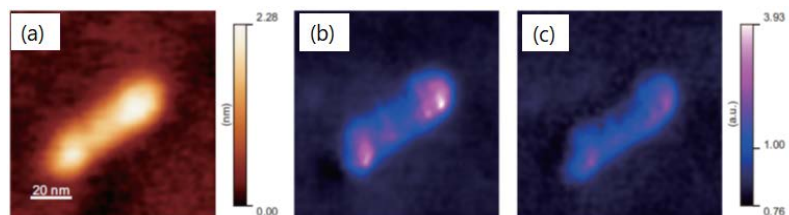


図7 (a)半導体量子ドットの原子間力顕微鏡像。半導体量子ドットの(b)波長 660 nm と (c) 波長 520 nm に対する光誘起力顕微鏡像。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Y. Adachi, H. F. Wen, Q. Zhang, M. Miyazaki, Y. Sugawara, L. Kantorovich, I. Stich, Y. J. Li	4. 巻 16
2. 論文標題 Tip-induced Control of Charge and Molecular Bonding of Oxygen Atoms on the Rutile TiO ₂ (110) Surface with Atomic Force Microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 6917-6924
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsnano.9b01792	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 該当する

1. 著者名 J. Yamanishi, Y. Naitoh, Y. J. Li and Y. Sugawara	4. 巻 9
2. 論文標題 Heterodyne Frequency Modulation Technique in Photoinduced Force Microscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Appl.	6. 最初と最後の頁 024031(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevApplied.9.024031	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13件（うち招待講演 8件/うち国際学会 10件）

1. 発表者名 菅原康弘
2. 発表標題 ケルビンプローブ力顕微鏡(KPFM)による半導体表面における原子スケール表面電位計測の進展
3. 学会等名 日本物理学会第75年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yasuhiro Sugawara and Yan Jun Li
2. 発表標題 Kelvin Probe Force Microscopy with Atomic Resolution
3. 学会等名 Nanoscience and Graphene Nanotechnology 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Sugawara and Yan Jun Li
2. 発表標題 Separation of Atomic-Scale Spin Contrast on NiO(001) by Magnetic Resonance Force Microscopy
3. 学会等名 International Conference and Expo on nanotechnology and Nanomaterials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Junsuke Yamanishi, Masaaki Tsuji, Yoshitaka Naitoh, Yan Jun Li, and Yasuhiro Sugawara
2. 発表標題 Specromicroscopic Observation in Photoinduced Force Microscopy under Ultrahigh Vacuum
3. 学会等名 The International Symposium on Plasmonics and Nano-photonics (iSPN2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Sugawara and Yan Jun Li
2. 発表標題 Separation of Atomic-Scale Spin Contrast on NiO(001) by Magnetic Resonance Force Microscopy (MRFM)
3. 学会等名 The 12th International Symposium on Test and Measurement (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Sugawara and Yan Jun Li
2. 発表標題 Atomic-Scale Spin Imaging on NiO(001) by Magnetic Resonance Force Microscopy (MRFM)
3. 学会等名 The 8th International Conference on Nanoscience & technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Sugawara and Yan Jun Li
2. 発表標題 Separation of Atomic-Scale Spin Contrast on NiO(001) by Magnetic Resonance Force Microscopy (MRFM)
3. 学会等名 The collaborative conference on Materials Research (CCMR) 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sugawara
2. 発表標題 Scanning probe microscopy for functional materials
3. 学会等名 The 7th Summer Course and Workshop on "Emergent Functional Matter Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Yamanishi, Y. Naitoh, Y. J. Li, and Y. Sugawara
2. 発表標題 Photoinduced Force Microscopy Imaging Using Heterodyne-FM Technique
3. 学会等名 Optical Manipulation and Structured Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Yamanishi, Y. Naitoh, Y. J. Li, and Y. Sugawara
2. 発表標題 Spectroscopic Imaging of Quantum Dots in Photo-induced Force Microscopy
3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Sugawara, H. F. Wen, Y. Naitoh, and Y. J. Li
2. 発表標題 Atomic Resolution Imaging of Topography, Surface Potential and Dipole Moment on TiO ₂ (110) Surface with Double-OH Defects
3. 学会等名 The 7th Multifrequency AFM Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山西絢介、内藤賀公、李艶君、菅原康弘
2. 発表標題 超高真空光誘起力顕微鏡法による高分解能観測
3. 学会等名 第66回応用物理学春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山西絢介、内藤賀公、李艶君、菅原康弘
2. 発表標題 ヘテロダイナミクス方式光誘起力顕微鏡
3. 学会等名 第66回応用物理学春季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

大阪大学大学院工学研究科精密科学・応用物理学専攻 応用物理学コース ナノ物性工学領域
<http://nanophysics.ap.eng.osaka-u.ac.jp/>

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
--	---------------------------	-----------------------	----