

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600013

研究課題名(和文)力検出を用いた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) Measurement conditions of atomic-resolution optical imaging in near-field scanning optical microscopy using the force detection

研究代表者

菅原 康弘 (SUGAWARA, YASUHIRO)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40206404

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：光の回折限界を越える原子分解能の光学顕微鏡を開発しようとする試みが行われてきた。しかし、これまで光の場の原子分解能観察は実現されていない。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。この顕微鏡では、原子間力顕微鏡の力センサーである半導体探針を近接場光の中に挿入し、半導体探針の先端に電子・正孔対を生成させ、その結果生じる半導体探針先端の表面電位(光起電力)を力として検出する。本研究では、近接場光を原子分解能で観察するための条件を理論的・実験的に明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Atomic-resolution optical imaging that overcomes the diffraction limit of light is a challenging task. However, atomic-resolution imaging of the optical field has not yet been achieved. Recently, we investigate the high-resolution imaging of the optical near-field on a surface using the force detection. In this method, the surface photovoltage of the silicon tip apex induced by the optical near-field on the surface is measured by the force between the tip and the surface. Here, we clarified the measurement conditions for the atomic-resolution optical imaging.

研究分野：ナノ構造科学

キーワード：ナノプローブ 走査プローブ顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

回折限界を越える高分解能な光学顕微鏡を開発しようとする試みが行われてきた。具体的には、光照射により物質に誘起された分極がその近傍につくる電磁場、すなわち、物質近傍に局在する光(近接場光)を検出し、高分解能な光学顕微鏡を実現しようとするものである。しかし、先鋭化した光ファイバや金属探針を用いる従来の方式では、原子分解能(0.2nm以下)での観察は実現されていない。

これまで申請者は、過去20年以上にわたり、引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先駆的な研究を推進し、力学的に原子種を同定できることなどを明らかにしてきた。

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、原子間力顕微鏡の力センサーである半導体探針を近接場光の中に挿入し、半導体探針の先端に電子・正孔対を生成させ、その結果生じる半導体探針先端の表面電位(光起電力)を力として検出する。この方式は、従来の方式で問題となっていた光の伝搬損失や集光損失がほとんどないため、近接場光分布を原子分解能で測定できる可能性が高い

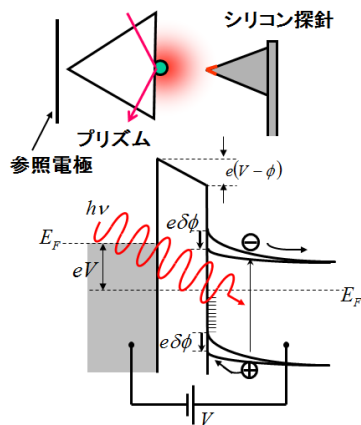


図1 力を用いて近接場光を検出する新しい光学顕微鏡

2. 研究の目的

本研究は、「物質表面の個々の原子や分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ともに、その最適な観察条件を解明すること」を目的とする。

具体的研究課題は、以下の2点である。

- (1) 近接場光を力として高感度・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。
- (2) 近接場光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。

光の回折限界を打ち破る光学顕微鏡のアイデア自体は、20年以上前に提案されているが、未だ原子分解能には到達していない。本研究では、原子分解能の光学顕微鏡を開発するという、これまで誰も成し得なかった究極の高い目標に挑戦する。

本研究では、物質近傍に局在する光(近接場光)を力として検出という、独創的なアイデアを用いる。この方式は、従来の方式で大きな問題となっていた光の伝搬損失がほとんどないため、高感度化が容易であるという特長を持っている。また、非常に先鋭な半導体探針を使用できるため、高分解能化にも優れている。

申請書は、微弱な力を高感度・高分解能に検出するための技術開発を長年推進してきた。原子間力と静電気力の画像化に関しては、既に原子分解能観察を達成している。本研究では、これらの優れた技術を利用する。

3. 研究の方法

- (1) 近接場光の最適観察条件の理論的検討
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る。
 - (2) カンチレバーの変位検出計の高感度化
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(光ファイバ干渉計)の低ノイズ化を実現する。
 - (3) カンチレバーの小振動動作・高周波化による高感度化・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、カンチレバーの小振動動作・高周波化を実現する。
 - (4) バックグラウンド光を低減した光照射系の実現
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。
 - (5) 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する。具体的には、周波数シフト曲線に対する信号対雑音比を求め、最も感度の良くなる観察条件を求める。
- ### 4. 研究成果
- (1) 近接場光の最適観察条件の理論的検討
近接場光を高分解能に測定するために制限している因子として、近接場光から力への量子変換効率や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、カンチレバーのバネ定数や振動振幅などを取り上げ、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。

(2) カンチレバーの変位検出計の高感度化

既存の変位検出計（光干渉計）（図2）では、光源のモードホップノイズにより検出感度が制限されているので、半導体レーザに高周波変調を重畳することによりモードホップノイズを低減し、変位検出計の低ノイズ化を実現した。

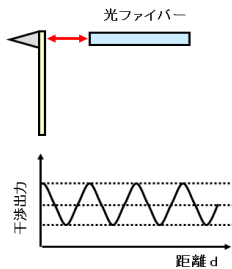


図2 カンチレバーの変位検出計

(3) カンチレバーの小振動動作・高周波化による高感度化・高分解能化

従来のカンチレバー（ばね定数 $k=40\text{N/m}$ 、共振周波数 $f=150\text{kHz}$ ）に比べて、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（図3）小振動振幅（ 0.1nm 程度）での動作を実現する。この結果、探針・試料間の相互作用時間が長くなることにより、周波数シフトが増大し、力の検出感度が一桁以上向上するとか。同時に、短距離力に対する感度が向上し空間分解能も向上する。

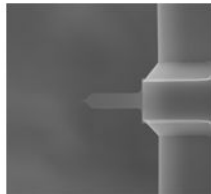


図3 小型で堅いカンチレバー

(4) バックグラウンド光を低減した光照射系の実現

光学レンズやプリズム表面での不要反射が極限まで低減するように既存の装置の照射光学系を改良した。なお、照射光源としては、既存の青色半導体レーザ（波長 440nm ）を使用した。

(5) 近接場光による力の高精度測定の実現

振幅変調された光をカンチレバー先端に照射し、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、近接場光成分を測定する（図4）。ここでは、試料表面の結晶構造と近接場光分布とを完全に分離できることを実証した。

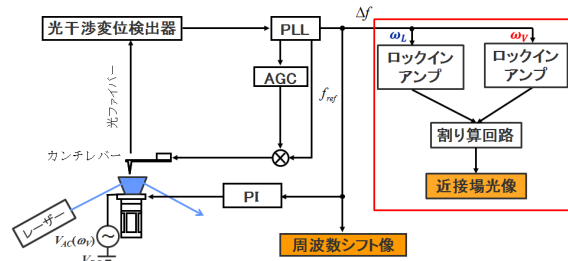


図4 表面構造と近接場光分布の分離測定

(6) 近接場光の最適観察条件の実験的検討

まず、周波数シフト曲線（周波数シフトの探針・試料間距離依存性）を測定し、次に、これを数値計算により力曲線に変換し、さらに、様々な振動振幅に対する周波数シフト曲線を導出する。この周波数シフト曲線に対する信号対雑音比を求め、最も感度の良くなる観察条件を求めた。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 9 件）

J. Yamanishi, T. Tokuyama, Y. Naitoh, Y. J. Li and Y. Sugawara, “Distance Dependence of Atomic-Resolution Near-Field Imaging on the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001) Surface Based on the Surface Photo-Voltage of a Silicon Probe Tip”, Nano Research, 査読有, 9(2), 530–536, 2016.

DOI: 0.1007/s12274-015-0934-4

Y. Sugawara, J. Yamanishi, T. Tokuyama, Y. Naitoh, and Y. J. Li, “Atomic-Resolution Imaging of the Optical Near Field Based on the Surface Photovoltage of a Silicon Probe Tip”, Phys. Rev. Appl., 査読有, 3, 044020(1-6), 2015.

DOI: 10.1103/PhysRevApplied.3.044020

〔学会発表〕（計 8 件）

Y. Kinoshita, S. H. Lee, Y. Naitoh, Y. J. Li, and Y. Sugawara, “Atomic Manipulation and Force Spectroscopy on Cu(110)-O Surface with Low Temperature FM-AFM”, The JSPS UK-Japan Symposium on Atomic and Molecular Manipulation: Force and Tunnel Current in Scanning Probe Microscopy, December 15-16, 2015, Nottingham, U.K. (Invited talk).

Y. Sugawara, J. Yamanishi, Y. Naitoh and Y. J. Li, “Atomic Resolution Imaging of Photon-induced Force on the Sapphire $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001) Surface”, The International Symposium on Recent Trends in Analysis Techniques for Functional Materials and Devices, December 3-4, 2015, Osaka, Japan (Invited talk).

Y. Sugawara, “Atomic-scale Imaging of Electronic properties of the Surface by Electrostatic Force Microscopy”, The EMN (Energy, materials, Nanotechnology) Bangkok Meeting 2015, November 10-13, 2015, Bangkok, Thailand (Invited talk).

J. Yamanishi, Y. Naitoh, Y. J. Li, and Y. Sugawara, “Atomic-resolution imaging of topography and optical near-field on the sapphire α -Al₂O₃ (0001) surface”, 2015 Collaborative Conference on 3D & Materials Research, BEXCO, Busan, Korea, July 16, 2015 (Invited talk).

J. Yamanishi, Y. Naitoh, Y. J. Li, and Y. Sugawara, “Atomic-resolution Imaging of Topography and Optical Near-field on Insulating Surface”, The 3rd China-Japan Symposium on Nanomedicine, Institute of Basic Medical Science, Beijing, China, July 20, 2015 (Invited talk).

Y. Sugawara, “Atomic-resolution Imaging of the Optical Near-field Using Photon-induced Force”, World Congress and Expo of Nanotechnology and Materials Science, April 13-15, 2015, Dubai, UAE (Invited talk).

Y. Sugawara, L. Kou, R. Kanbarashi, H. F. Wen and Y. J. Li, “Surface Potential Measurement of TiO₂(110) by Using Atomic Force microscopy (AFM)/Kelvin Probe Force Microscopy (KPFM)”, Collaborative Conference on 3D & Materials Research, June 24, 2014, Incheon, Korea(Invited talk)

Y. Sugawara, S. Yamada, M. Furukawa, T. Tokuyama, J. Yamanishi, Y. Naitoh, and Y. J. Li, “Atomic resolution Imaging of Optical Near-field on the Au(111) Surface Using Force Detection”, The 2nd Japan-China Symposium on Nanomedicine, Hiroshima, Japan, May 17, 2014 (Invited talk)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://nanophysics.ap.eng.osaka-u.ac.jp/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

菅原 康弘 (SUGAWARA, Yasuhiro)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：40206404