# 科学研究費助成事業 研究成果報告書



平成 29 年 5 月 23 日現在

機関番号: 14401

研究種目: 挑戦的萌芽研究 研究期間: 2015~2016

課題番号: 15K13382

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機構の研究

研究課題名(英文)Study of the mechanism of the single atom observation with near-field optical microscopy using the force detection

#### 研究代表者

李 艶君(Li, Yanjun)

大阪大学・工学研究科 ・准教授

研究者番号:50379137

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文):本研究は、「力検出を用いた近接場光学顕微鏡の超高感度化・超高分解能化を実現するとともに、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。 研究成果として、まず、近接場光学顕微鏡の超高感度化・超高分解能化を実証した。また、 サファイア表面を用いた画像化機構を検討した。その結果、最表面のアルミニウム原子が輝点として画像化されていることが分かった。、サファイア表面のアルミニウム原子が近接場光の3次元分布としてどのように撮像されるかを理論的・実験的に検討した。この結果は、近接場光像として、表面原子の電場に対する分極率の変化が主に画像化されることを示唆している。

研究成果の概要(英文): In this study, our purpose is to realize the high sensitive and high resolution optical imaging with near-field scanning optical microscopy using photon-induced force detection, and to elucidate mechanism of the imaging with atomic resolution. As a result, we demonstrated atomic resolution imaging of the near-field on the -Al203 (0001) surface of a prism. The surface aluminum atoms were imaged as bright spots. We investigated the spatial distribution of the near-field by scanning at different tip-sample distances and found that the atomic corrugation of the near-field signal was observed at greater distances than that of the atomic force microscopy signal. This result suggests that the optical image is imaged by a change of the polarizability for the electric field of the surface atom.

研究分野: 走査型プロップ顕微鏡

キーワード: near-field optical microscopy imaging AFM

### 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。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。この新しい概念の光学顕微鏡で原子 分解能観察が可能かどうかを実験的に検討 し、世界で初めて、サファイア( -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)表 面に局在する近接場光を原子分解能で測定 することに成功した。しかし、得られた画像 はまだ不鮮明であり、そのため原子分解能観 察の画像化機構を議論するには至っていな い。

#### 2. 研究の目的

本研究は、「力検出を用いた近接場光学顕微鏡の超高感度化・超高分解能化を実現するとともに、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。具体的研究課題は、以下の3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) 原子レベルで平坦なサファイア表面を取り上げ、その表面のアルミニウム原子(AI) がどのように撮像されるかを理論的・実験的に検討し、画像化機構を検討する。
- (3) 表面に吸着した分子の電子軌道が近接場 光分布にどのように影響するかを解明する。

これまで近接場光の検出は、その場の中に 先端の鋭い探針を挿入し、散乱によって近 接場光を伝搬光に変換し、その光強度を測 定することで行われてきた。探針としては、 先鋭化が容易で散乱光を効率よく導波・集 光できる光ファイバや散乱効率の高い金 属探針が用いられている。しかし、これら の方式では、探針先端の先鋭化と光検出感 度の向上は限界に来ていた。近接場光を力 として検出する本方式は、新たなプレーク スルーである。

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。

# 3.研究の方法

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。次に、試料表面としてサファイア( $\alpha$ -Al $_2$ O $_3$ )表面を取り上げ、その表面のアルミニウム原子(AI)が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) 近接場光学顕微鏡の超高感度化・超高分 解能化の実証

物質表面の構造と局在する近接場光の強度 分布を原子スケールで高感度・高分解能に観察できることを実証する。ここで、試料としては、原子的に平坦なサファイア( -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)表面を取り上げる(図1)。なお、この観察には原子レベルで清浄で平坦な(0001)表面を用いる必要があるが、バルクのサファイアを超高真空中で加熱することにより準備する。

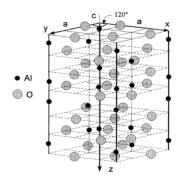


図1 サファイアの構造

# (2) サファイア表面を用いた画像化機構の 検討

試料表面として原子レベルで平坦なサファイア表面を取り上げ、その表面のアルミニウム原子(AI)が近接場光の3次元分布として

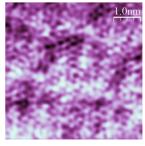


図2 サファイア表面の近接場光像

どのように撮像されるかを理論的・実験的に検討した(図2)。その結果、最表面のアルミニウム原子が輝点として画像化されていることが分かった。この結果は、近接場光像として、表面原子の電場に対する分極率の変化が主に画像化されることを示唆している。

# 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 12 件)

E. Arima, H. Wen, Y. Naitoh, <u>Y. J. Li</u>, and <u>Y</u>. Sugawara, "Development of Low Temperature Atomic Force Microscopy with an Optical Beam Deflection System Capable of Simultaneously Detecting the Lateral and Vertical Forces", *Rev. Sci. Instrum.*, 查読有, 87, 093113(1-6), 2016.

L. Kou, <u>Y. J. Li</u>, T. Kamijyo, Y. Naitoh and Y. Sugawara, "Investigation of the surface potential of  $TiO_2$  (110) by frequency-modulation Kelvin probe force microscopy" *Nanotechnology*, 查 読 有 27505704 (1-7) (2016).

http://dx.doi.org/10.1088/0957-4484/27/50/505704

有馬英司、内藤賀公、<u>李艶君</u>、菅原康弘、 "原子レベルで表面磁性を可視化する強 磁性共鳴を用いた磁気交換力顕微鏡の 開発"、表面科学, 査読有, 37(9), 416-421, 2016.

Y. J. Li, S-H. Lee, Y. Kinoshita, Z-M Ma, H. Wen, H. Nomura, Y. Naitoh, and Y. Sugawara, "Growth Models of Coexisting p(2×1) and c(6×2) Phases on Oxygen-Terminated Cu(110) Surface Studied by Noncontact Atomic Force Microscopy at 78 K", *Nanotechnology*, 查読有, 27, 205702(1-7), 2016.

DOI:10.1088/0957-4484/27/20/205702

J. Yamanishi, T. Tokuyama, Y. Naitoh, <u>Y. J. Li</u> and Y. Sugawara, "Distance Dependence of Atomic-Resolution Near-Field Imaging on the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) Surface Based on the Surface Photo-Voltage of a Silicon Probe Tip", *Nano Research*, 查読有, 9(2), 530-536, 2016.

DOI: http://doi.org/10.1063/1.4978755 Eiji Arima, Huanfei Wen, Yoshitaka Naitoh, Y. J. Li, and Yasuhiro Sugawara

"Development of low temperature atomic force microscopy with an optical beam deflection system capable of simultaneously detecting the lateral and vertical forces"

Review of scientific instruments, 査読有, 87,093113,2016.

DOI: http://dx.doi.org/10.1063/1.4962865

<u>Y. J. Li</u> Y. Naitoh, Y. Sugawara, and I. Stich, "Atomic Force Microscopy identification of

Al-sites on ultrathin aluminum oxide film on NiAl(110)", *Nanotechnology*, 查読有, 27 505705(1-5), 2015.

DOI:10.1088/0957-4484/26/50/50570

Y. Sugawara, J. Yamanishi, T. Tokuyama, Y. Naitoh, and <u>Y. J. Li</u>, "Atomic-Resolution Imaging of the Optical Near Field Based on the Surface Photovoltage of a Silicon Probe Tip", *Phys. Rev. Appl.*, 查読有, 3, 044020(1-6), 2015.

DOI: 10.1103/PhysRevApplied.3.044020

L. Kou, Z. M. Ma, <u>Y. J. Li</u>, Y. Naitoh, M. Komiyama, and Y. Sugawara, "Surface potential imaging with atomic resolution by frequency-modulation Kelvin probe force microscopy without bias voltage feedback", *Nanotechnology*, 查読有, 26, 195701(1-7), 2015.

### DOI:10.1088/0957-4484/26/19/195701

E. Arima, S. Takada, K. Isoyama, I. Tokuda, Y. Naitoh, <u>Y. J. Li</u>, S. Yoshimura, H. Saito, H. Nomura, R. Nakatani and Y. Sugawara, "Magnetic Force Microscopy Using Tip Magnetization Modulated by Ferromagnetic Resonance", *Nanotechnology*, 查読有, 26, 125701(1-6), 2015.

DOI:10.1088/0957-4484/26/12/125701

J. Bamidele, S. H. Lee, Y. Kinoshita, R. Turanský, Y. Naitoh, <u>Y. J. Li</u>, Y. Sugawara, I. Stich and L. Kantorovich, "Vertical atomic manipulation with dynamic AFM without tip change via multi-step mechanism", *Nature Communications*, 查読有, 5, 4476(1-7), 2014.

DOI: 10.1038/ncomms5476

J. Bamidele, R.Turansky, S. H. Lee, Y. Naitoh, <u>Y. J. Li</u>, Y. Sugawara, I. Stich and L. Kantorovich, "Image formation and contrast inversion in noncontact atomic force microscopy imaging of oxidized Cu(110) surfaces", *Phys. Rev. B*, 查読有, 90, 035410(1-7), 2014.

DOI: 10.1103/PhysRevB.90.035410

## [学会発表](計 10 件)

 $\underline{Y.~J.~Li}$ , H. F. Wen, and  $\underline{Y.~Sugawara}$ , "The investigation of local dipole moment on  $TiO_2(110)$  surface by electrostatic force microscopy", The Asia-Pacific Symposium on Solid Surfaces & Cross-Strait Symposium on Solid Surfaces, Dr. Poe Lecture Hall, Institute of Atomic and Molecular Sciences Academia Sinica,. November 13 ~ 16, Taipei, Taiwan, 2016 (Invited talk).

 $\underline{Y.~J.~Li}$ , "Investigation of Pd nanoparticles on  $Al_2O_3/NiAl(110)$  surface under CO gas condition by AFM/KPFM", "The 4th Japan -

China Symposium on Nanomedicine, 12-13, May, Kyushu Institute of Technology, Japan, 2016 (Invited talk).

<u>Y. J. Li</u>, "NC-AFM Identification of Different Al Atoms on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/NiAl(110) Surface", The EMN (Energy, materials, Nanotechnology) Bangkok Meeting 2015, November 10-13, 2015, Bangkok, Thailand (Invited talk).

<u>Y. J. Li</u>, "Simultaneous AFM/STM Measurements of the Electronic State and Stable Contrast Mode on Rutile TiO<sub>2</sub>(110) Surface by W-coated Tips", The 3<sup>rd</sup> China-Japan Symposium on Nanomedicine, Institute of Basic Medical Science, Beijing, China, July 20, 2015 (Invited talk).

李艶君, "ケルビンプローブカ顕微鏡による機能性材料評価", 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 薄膜・表面分科シンポジウム「機能性材料・デバイス解析の最近の動向」, 2015 年 9 月 15 日, 名古屋国際会議場(招待講演)

<u>Y. J. Li</u>, "Identification of Al Atoms and Surface Potential Measurement of Pd Clusters on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/NiAl(110) Surface by AFM/KPFM", 2015 Collaborative Conference on 3D & Materials Research, BEXCO, Busan, Korea, July 16, 2015 (Invited talk).

Y. J. Li and 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. J. Li, "Surface Potential Measurement of TiO<sub>2</sub>(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. 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).

<u>Y. J. Li</u>, "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).

# 〔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 李 艶君 (LI, Yanjun) 大阪大学・大学院工学研究科・准教授 研究者番号:50379137