

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390114

研究課題名(和文) マイクロ音響レンズを用いたレーザーピコ秒超音波顕微鏡技術の開発

研究課題名(英文) Development of laser picosecond ultrasonic microscopy with micro ultrasonic lens

研究代表者

友田 基信 (Tomoda, Motonobu)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：30344485

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：高周波数・高分解能をもつ超音波顕微鏡技術を開発し、試料の表面形状や3次元内部構造を非破壊的に測定ならびにイメージングすることを目的とした。この技術は、10-100GHz帯の超音波を励起・検出するレーザーピコ秒超音波法を基にしている。マイクロレンズなどのナノ構造を使った超音波パルスの集束、液浸対物レンズを使ったプローブ光スポット径の小型化、透明試料中を伝わる音響波による深さ方向の高分解能測定、パルスレーザーの繰り返し周波数に制限されない任意周波数成分の測定、ポンプ光スポット形状の制御を行った。

研究成果の概要(英文)：We developed ultrasonic microscopy techniques with high frequencies and high resolutions, aiming to measure and image surface topographies and three-dimensional internal structures of samples. This technique is based on laser picosecond ultrasonics which generate and detect ultrasonic pulses at 10-100 GHz. We did ultrasonic focusing with micro-structures like a micro-ultrasonic-lens and a micro-fiber, making a smaller probe light spot by use of a high numerical aperture oil-immersion objective lens, high resolution depth-profile ultrasonic measurements in transparent samples, development of arbitrary frequency measurements which are not restricted to repetition pulse laser frequencies, and controlling of pump beam spot shapes.

研究分野：フォノン物性、光物性、光計測

キーワード：音 顕微鏡 イメージング ピコ秒超音波 ポンプ・プローブ分光

1. 研究開始当初の背景

超音波顕微鏡は物質・材料のミクロな部分の弾性的な性質を超音波画像、あるいは定量的な計測値として測定する装置である。主流である反射型超音波顕微鏡では圧電トランスデューサで超音波パルスを発生し、サファイアの音響レンズを使って試料表面や内部に集束する。音響レンズと試料の間には超音波を伝播させるために水が使われる。焦点に弾性的不連続性がある場合には超音波パルスは反射し、同じ音響レンズと圧電トランスデューサで検出される。分解能は媒質中での超音波の波長に依存し、小さい対象を観察するにはそれと同程度に波長が短く高周波数の超音波が必要となる。現在の超音波顕微鏡で超音波発生源として主に使われている圧電トランスデューサでは、せいぜい数 GHz の周波数で数 μm の波長の超音波までしか励起・検出できない。更なる高分解能化のためには、圧電トランスデューサに代わる超音波源が必要になる。また、従来のサイズの音響レンズでは、伝播距離が長く 100 GHz 以上の高周波数の超音波は焦点から反射するまでに十分に検出できないほど減衰してしまう。

より高周波数の超音波パルスを発生・検出する方法として、レーザーピコ秒超音波法がある。フェムト秒パルスレーザー光を金属薄膜に照射すると、空間幅数 10 nm、時間幅数 10 ps、100 GHz~1 THz の周波数成分をもつ超音波パルスを励起できる。その超音波パルスが試料内を伝播・反射するのを別のフェムト秒パルスを使って反射率変化もしくは光位相変化として時間領域で検出する。これは最も高周波数の超音波を励起・検出する方法である。しかし、レーザーピコ秒超音波法では通常、基板平面上に蒸着された金属薄膜で超音波を励起するので、超音波は集束せず、せいぜい 1 μm の光スポット径の横分解能でしか超音波像をイメージングできなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、高周波数・高分解能をもつ超音波顕微鏡技術を開発し、ナノ構造試料などの表明形状や 3 次元内部構造を非破壊的にイメージングすることである。この技術は、レーザーピコ秒超音波法を基にしている。従来の超音波顕微鏡において高周波数化・高分解能化する際にネックになっていた高周波数の超音波の励起・検出・減衰の問題を、光パルスによる超音波パルスの局所的な励起・検出によって克服し、超音波顕微鏡技術や超音波伝搬のイメージング技術を発展させることを目的とする。ピコ秒超音波法の高分解能化を目指すとともに、従来ネックとなっていた測定周波数が限定される問題やポンプ光スポット形状の問題にも取り組む。

3. 研究の方法

本研究で用いるピコ秒超音波法の基となっているのは、フェムト秒レーザーを使ったポンプ・プローブ法による時間分解測定である。高分解能化や高性能化を果たすために、次の研究を行う。

(1) マイクロレンズなどのナノ構造を使った超音波パルスの集束：

従来の超音波レンズと同様に曲率を持った形状の試料を用いて、その曲率を利用した超音波を励起させ伝搬させることで、超音波エネルギーを 1 点に集束させる。超音波減衰が起こるため励起位置から集束点まで伝搬距離をサブマイクロメートルスケールまで短くできる試料を作製し、実験を行う。試料としてマイクロ音響レンズおよびマイクロ円筒形状を用いる。

(2) 液浸対物レンズを使ったプローブ光スポット径の小型化：

ピコ秒超音波法の横分解能は主にプローブ光のスポット径によって決定される。スポット径を更に小さくするために、従来使われてきた高倍率対物レンズよりも更に高開口数を持つ液浸レンズを用いて実験を行う。

(3) 透明試料中を伝わる音響波による深さ方向の高分解能測定：

透明な試料に対しては、プローブ光が試料内部を伝わる超音波パルスによって一部散乱されることを利用して、ブリルアン振動法と呼ばれる反射率変化に含まれる振動数の時間依存性から試料内部の弾性的な性質をプローブ光の試料内部での波長程度の深さ方向の分解能で測定することが可能になる。この研究を同時に推し進める。

(4) パルスレーザーの繰り返し周波数に制限されない任意周波数成分の測定：

従来のピコ秒超音波法では、パルスレーザーの繰り返し周期よりも長時間に渡って振動する超音波に関しては、位相が合わない振動が打ち消しあうため、繰り返し周波数の整数倍の成分しか励起・検出されなかった。このことは、超音波エネルギーが外部に逃げていきにくい形状の試料で問題となっていた。ポンプ光パルス列に更に別の周波数変調を加え、その周波数成分について検出する方法を考案し、測定を行う。

(5) ポンプ光スポット形状の制御：

空間光変調器を用い、計算機ホログラムの手法を用いてポンプ光に空間的な位相分布を付けたものを集光すると、試料上でのスポット形状を制御できる。この技術は、単色光では比較的容易であるが、フェムト秒光パルスのように波長帯域幅を持った波束に対しては入力パターン計算が容易ではなかった。いくつかのパターンのポンプ光スポットを作成する。

4. 研究成果

(1) マイクロレンズなどのナノ構造を使った超音波パルスの集束:

オーストラリアの Swinburne 工科大学の Saulius Judkakis 教授のグループに依頼して、サファイア基板に集束イオンビーム加工で半球形の穴を空けたマイクロレンズを作製してもらった。この試料にアルミニウム薄膜を蒸着してピコ秒超音波法用のマイクロ音響レンズを作製した。これは水に付けて使うことを想定しており、3軸可動のピエゾステージを用いてこの音響レンズと測定対象のマイクロ構造との距離を制御しながら測定できるピコ秒超音波法のシステムを構築し、実験を行った(図1)。しかし、シミュレーションによる音響波伝搬解析により、このサイズの資料であっても水中で使う場合には、思うように超音波の減衰の影響が避けられないことが判明した。そのため、水中でマイクロ音響レンズを使う実験を切り替えて、次項で説明する高開口数をもつ液浸レンズによってより小さなスポット径を作る研究などに重点を移した。さらに音響レンズにちょうど集束点で表面が来るように金属を充填した試料も作製した。これは今後の研究で、ナノスケールの非常に高振幅の音響振動源として、走査プローブ顕微鏡による測定技術の開発に使用する予定である。

2次元的に超音波が収束するマイクロ音響レンズの一種として、直径がサブミクロンの石英ガラスファイバー中にピコ秒超音波を励起・検出する実験を行った。こちらの結果については、Light: Science & Applications 誌に掲載された[雑誌論文①]。

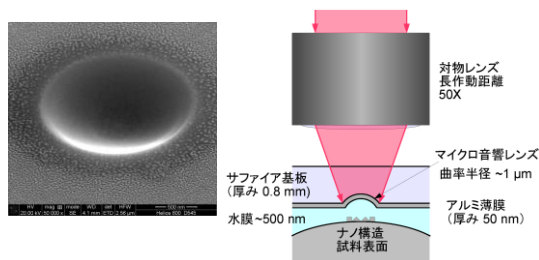


図1 作製した音響レンズの電子顕微鏡写真(左)および実験の概念図(右)

(2) 液浸対物レンズを使ったプローブ光スポット径の小型化:

プローブ光のスポット径を小さくすることを目的に、市販の超高開口数(NA=1.49)の液浸レンズを用い、さらに現有のフェムト秒光パルスレーザーで出せる範囲の短波長のポンプ光(波長750 nm)とプローブ光(波長375 nm)を使う測定システムを構築した。電子ビームリソグラフィでナノスケールの段差のある金薄膜試料を作製し、その境界部分で高分解能を示すデモンストレーション実験を行った。この結果は、中国人留学生の

Xing Yang の修士論文としてまとめられたおり、またこの液浸レンズを使ったシステムは、次項の透明試料の実験の次の段階にもより洗練された形で応用されている。

(3) 透明試料中を伝わる音響波による深さ方向の高分解能測定:

透明な試料に対して、ブリルアン振動法で試料内部の弾性的な性質を振動数から定量的に測定する方法の研究を行った。超音波が試料内部を深さ方向に伝搬するので、深さ方向の弾性率情報は、超音波の音速と遅延時間から逆算的に得られる。これに横方向の空間2次元走査を組み合わせることで、試料内部の3次元の弾性率情報を得ることができる。ただし、定量的な弾性率の情報を得るためには、プローブ光に対する試料の屈折の情報が必要であるか、もしくは複数の入射角度の測定から屈折率も同時に推定することがひとつである。

まず、実験的に最も簡単なプローブ光が垂直入射でも内部弾性率が測定できる試料として、生理食塩水中の生体細胞を用いたデモンストレーション実験を行った。測定システムが洗練されておらず、それなりに測定時間が掛かってしまうため、固着させた動物細胞(牛の内皮細胞とマウスの脂肪細胞)を用いた(図2)。この試料は屈折率がほぼ一様であると仮定できるため、弾性率のマッピングが可能である。遅延時間走査と試料の2次元空間走査を組み合わせ、3次元イメージングを実現した。この成果は、Applied Physics Letters 誌に発表した[雑誌論文④]。

さらに、弾性率も屈折率も共に空間的に分布している方法についても、高開口数の液浸対物レンズを用いてプローブ光の入射角度を走査することで、測定された時間依存する

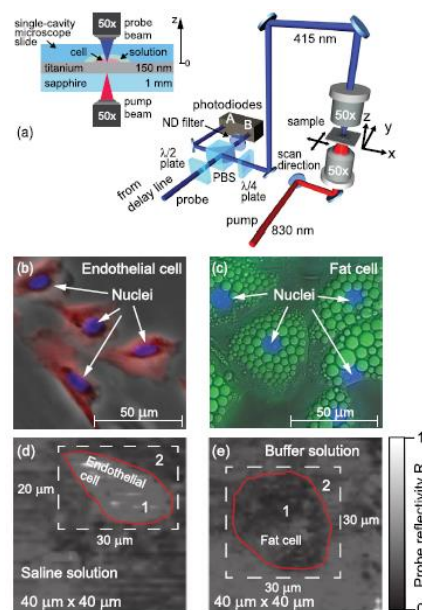


図2 (a) 細胞内部をイメージングするシステムの概略図、(b)(c)細胞の染色した光学顕微鏡像および、(d)(e)ピコ秒超音波像[雑誌論文④]。

振動数から屈折率と弾性率の寄与を分離する手法を開発した。この測定は窪田晃久の卒業論文としてまとめられ、さらに現在も改良を行っている最中である。無機物質を使った実験結果を近い将来に学術論文にまとめて発表する予定である。

(4) パルスレーザーの繰り返し周波数に制限されない任意周波数成分の測定：

従来、パルスレーザーの繰り返し周波数の倍数成分でしか測定できなかったものを、任意周波数で測定する方法を開発した。ポンプパルス列をさらに変調し、そのサイドバンド周波数で検出するものである。この方法はAIP Advance誌およびIEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control誌発表した[雑誌論文⑤⑧]。銅でできた円形のマイクロ構造がシリコン内に埋め込まれた試料を用いて、その円形の構造内部に沿って伝わる表面音響波をイメージングするデモ実験を行った。従来方法では周波数分解能が足りず分離できなかったモードを分離することに成功した(図3)。この成果はOptics Letters誌に発表した[雑誌論文③]。

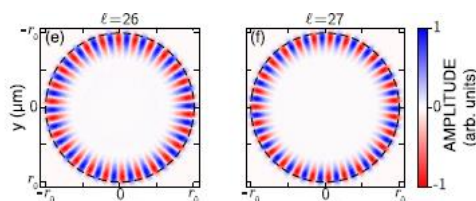


図3 銅で円形の円盤の側面に沿って伝搬する音響表面波のwhispering gallery modesの測定結果。従来法では周波数分解能が足りずに分離できなかった26番目と27番目のモードを分離して測定できた[雑誌論文③]。

(5) ポンプ光スポット形状の制御：

空間光変調器でポンプ光に空間的に位相分布を付けたものを対物レンズで集光すると、任意のスポット形状が実現できる。この技術をフェムト秒光パルスのような広帯域の光源に対しても実現できる光学系と位相パターンを構築した。デモンストレーション実験として、任意形状の光励起源による表面音響波伝搬のイメージング実験を行った。この技術は、非反転対称性を持つ超音波源としての応用が期待できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計10件)

① T. Dehoux, K. Ishikawa, P. H. Otsuka, M. Tomoda, O. Matsuda, M. Fujiwara, S. Takeuchi, I. A. Veres, V. E. Gusev and O. B. Wright, ‘Optical tracking of picosecond coherent phonon pulse focusing inside a sub-micron object’, Light Sci. Appl. 査読有 **5**, 16082 (2016)
DOI: 10.1038/lsa.2016.82

② P. H. Otsuka, R. Chinbe, M. Tomoda, O. Matsuda, I. A. Veres, J. H. Lee, J. B. Yoon and O. B. Wright, ‘Effect of excitation point on surface phonon fields in phononic crystals in real- and k-space’, J. Appl. Phys. 査読有 **117**, 245308 (2015) DOI: 10.1063/1.4922350

③ S. Mezil, P. H. Otsuka, S. Kaneko, O. B. Wright, M. Tomoda and O. Matsuda, ‘Imaging arbitrary acoustic whispering-gallery modes in the GHz range with ultrashort light pulses’, Opt. Lett. 査読有 **40**, 2157 (2015)
DOI: 10.1364/OL.40.002157

④ S. Danworaphong, M. Tomoda, Y. Matsumoto, O. Matsuda, T. Ohashi, H. Watanabe, M. Nagayama, K. Gohara, P. H. Otsuka, and O. B. Wright, ‘Three-dimensional imaging of biological cells with picosecond ultrasonics’, Appl. Phys. Lett. 査読有, **106** 163701 (2015)
DOI: 10.1063/1.4918275

⑤ O. Matsuda, S. Kaneko, O. B. Wright, and M. Tomoda, ‘Time-resolved gigahertz acoustic wave imaging at arbitrary frequencies’, IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control 査読有 **62**, 584 (2015) DOI: 10.1109/TUFFC.2014.006369

⑥ M. Tomoda, S. Matsueda, P. H. Otsuka, O. Matsuda, I. A. Veres, V. E. Gusev and O. B. Wright, ‘Imaging waves in microscopic wedges’, New. J. Phys. 査読有 **16**, 103029 (2014)
DOI: 10.1088/1367-2630/16/10/103029

⑦ M. Tomoda, T. Dehoux, Yohei Iwasaki, O. Matsuda, V. E. Gusev and O. B. Wright, ‘Nanoscale mechanical contacts mapped by ultrashort time-scale electron transport’, Sci. Rep. 査読有 **4**, 4790 (2014) DOI: 10.1038/rep04790

⑧ S. Kaneko, M. Tomoda, and O. Matsuda, ‘A method for the frequency control in time-resolved two-dimensional gigahertz surface acoustic wave imaging’, AIP Adv. 査読有 **4**, 017124 (2014) DOI: 10.1063/1.4863195

⑨ P. H. Otsuka, K. Nanri, O. Matsuda, M. Tomoda, D. M. Profunser, I. A. Veres, S. Danworaphong, A. Khelif, S. Benchabane, V. Laude and O. B. Wright, ‘Broadband evolution of phononic-crystal waveguide eigenstates in real- and k-spaces’, Sci. Rep. 査読有 **3**, 3351 (2013)
DOI: 10.1038/srep03351

⑩ O. Matsuda, M. Tomoda, T. Tachizaki, S. Koiwa, A. Ono, K. Aoki, R. P. Beardsley, and O. B. Wright, ‘Ultrafast ellipsometric interferometry for direct detection of coherent-phonon strain pulse profiles’, J. Opt. Soc. Am. B 査読有 **30**, 1911 (2013) DOI: 10.1364/JOSAB.30.001911

〔学会発表〕（計 35 件）

① 友田 基信, X. Chen, O. Balogun, ‘ナノフォークスした表面プラズモンポラリトンによるピコ秒機械振動の増強光検出’, 第 76 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2016 年 3 月 19 日～22 日（口頭発表）

② M. Tomoda, S. Matsueda, P. Otsuka, O. Matsuda, I. Veres, V. E. Gusev, O. B. Wright, ‘Imagign laser generated Lamb waves in microscopic wedges’, 4th International Symposium on Laser Ultrasonics and Advanced Sensing, LU2015, Evanston, United States, 2015 年 6 月 29 日～7 月 2 日（口頭発表）

③ M. Tomoda, T. Dehoux, Y. Iwasaki, O. Matsuda, O. B. Wright, and V. E. Gusev, ‘Probing Mechanical Contacts Between Two Thin Gold Films on Sapphire with Nonequilibrium Electrons’, 3rd International Symposium on Laser Ultrasonics and Advanced Sensing, LU2013, Yokohama, Japan, 2013 年 6 月 25-28 日（口頭発表）

他 口頭発表 23 件
ポスター発表 9 件

〔その他〕

ホームページ

<http://kino-ap.eng.hokudai.ac.jp/j-index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

友田 基信 (TOMODA, Motonobu)
北海道大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号：30344485

(2) 研究分担者

O・B Wright (WRIGHT, Oliver B.)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：90281790

松田 理 (MATSUDA, Osamu)
北海道大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：30239024

(3) 研究協力者

Paul Otsuka
北海道大学・大学院工学研究院・研究員

Sylvain Mezil
北海道大学・大学院工学研究院・研究員

Saulius Juodkazis
Swinburne University of Technology (オーストラリア)・教授

Ronald Ulbricht
University of Colorado (アメリカ合衆国)・研究員

Vitali Gusev

Maine University (フランス)・教授