

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 29 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：26600099

研究課題名(和文) 自己検出型周波数変調方式原子間力顕微鏡による氷表面の分子分解能測定と物性計測

研究課題名(英文) Molecular resolution imaging and physical measurements on ice surface using a self-sensing type atomic force microscopy

研究代表者

阿部 真之 (Abe, Masayuki)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：00362666

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)：氷結晶成長環境(0℃以下)の原子間力顕微鏡(AFM)を用いたナノメートルオーダー観察は、熱の影響が大きい光学系を用いた市販のAFMが用いられてきたため困難であった。この問題点を解決し、氷表面を分子分解能で測定するためには、探針の変位検出を、光学的手法を用いない自己検出型のAFMの開発を今年に行った。力検出用のセンサには縦型振動子を用いた。NaClおよびCaCO₃、HOPGにおいて、ステップ・アンド・テラス構造を観察することに成功した。一方、周波数変調モードAFMの原子分解能に必要なと考えられている負の周波数シフトを捉えることができなかった。

研究成果の概要(英文)：Nanometer order observation of ice crystal growth in the environment around zero degree with atomic force microscopy (AFM) has been difficult since optical beam detection system used for AFM cantilever detection generate heat in the equipment of AFM. In this study, in order to resolve this problem, a new AFM that does not use the optical beam detection system was developed. We have employed a self-detection type resonator in order to measure the surface at the molecular resolution. We succeeded in imaging NaCl and CaCO₃, HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) surfaces. On the other hand, it could not be considered a negative frequency shift which is considered necessary for atomic resolution of the frequency modulation mode AFM.

研究分野：原子間力顕微鏡

キーワード：原子間力顕微鏡 氷 水晶振動子

1. 研究開始当初の背景

水は地球上に最も存在する物質の一つであり、その相転移現象は地球上の幅広い重要な現象を左右すると考えられている。例えば、気象学や環境学においては、降雨や太陽光の反射が氷床や氷河、オゾンホールの状態に影響していると考えられている。また、寒冷地の動植物の進化は不凍タンパク質による凍結の抑制を解明する必要がある。これらの解明の糸口の一つとして、氷結晶成長メカニズムを明らかにすることが重要であると考えられている。

氷の結晶成長の研究は、マイクロメートルのオーダーでは、表面・界面のカイネティクスの研究が、光学的な測定手法（レーザー共焦点微分干渉顕微鏡）を用いて行われてきた [例えば、G. Sasaki *et al.*, PNAS 109, 1052 (2012).]。これまで、氷結晶成長の機構をはじめ、不純物や生体高分子による影響などが研究されている。一方、ナノメートルの分解能を有する原子間力顕微鏡 (AFM) などの走査型プローブ顕微鏡 (SPM) を用いた研究は、 -150°C の真空中という特殊な環境では氷のステップの観察が行われているが、氷の結晶成長に必要な環境である融点直下における測定は、これまで測定が困難なため行われてこなかった。

2. 研究の目的

以上をふまえて本研究では、光学系を用いない自己検出型の周波数変調方式原子間力顕微鏡 (FM-AFM) を開発し、氷の相転移現象を実空間で高分解能に観察する環境条件を見出すことを目的とした。

3. 研究の方法

氷結晶成長環境 (0°C 以下) の原子間力顕微鏡 (AFM) を用いたナノメートルオーダー観察は、熱の影響が大きい光学系を用いた市販の AFM が用いられてきたため困難であった。この問題点を解決し、氷表面を分子分解能で測定するためには、探針の変位検出を、光学的手法を用いない自己検出型の AFM の開発を今年に行った。従来、自己検出型の AFM センサとして水晶振動子が用いられているが、幾何学形状が異なる 2 つの種類が存在している (音叉型と縦振動型)。これまで、どちらも真空中で原子分解能測定が行われているが、空気中での違いを確認する実験を行った。具体的には、センサの熱振動と計測アンプのバックグラウンドノイズの関係をスペクトラムアナライザで測定した。そのための専用の治具を開発した。その結果、縦型振動型の方が、信号雑音比が大きいことがわかり、縦型振動型のセンサで AFM 実験を行うための整備を行った。専用の AFM ヘッド (本体) を自作した。さらに、回路系やステージの粗動確認用の光学系など、室温での AFM 用標準試料 (NaCl や CaCO₃ など) を用いた予備実験に必要なシステムを準備した。また、探針を

センサに探針をとりつけるための治具を整備した。

4. 研究成果

整備した専用の AFM ヘッドと縦型振動型のセンサを用いて周波数変調モードの AFM 実験をおこなった。NaCl および CaCO₃、HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) において、ステップ・アンド・テラス構造を観察することに成功した。一方、周波数変調モード AFM の原子分解能に必要と考えられている負の周波数シフトを捉えることができなかった。この課題を解決するためには AFM 探針の振動を安定化が必要であると考えた。一つの解決方法として自己検出型 AFM に見られる反共振点を取り除くための回路を開発し装置に組み込んだ、反共振点がない安定な振動を確認できたが、原子分解能で試料表面を測定することはできなかった。今後は自己検出型の AFM センサの条件を見直していく必要があると考えている。以上の理由で自己検出型の AFM を用いた氷表面での測定を行うことはできなかったが、引力領域を捉えることができれば、早急に環境を整え実験を行いたいと考えている。また、本研究期間内に AFM 装置を小型化・密閉することで氷表面の測定が可能となることがわかってきたので、引き続き研究を続けていくことにする。また、今後の課題として、センサ先端に AFM 探針を実現することに非常に時間がかかり、NaCl や KBr など、氷表面以外の表面で行う予定であった予備実験を行うことができなかった。具体的には、縦型水晶振動子に AFM 探針を取り付けるときにセンサが壊れやすいことや、探針を取り付けるときに必要な接着剤による質量の増加の影響で振動をしなくなることがあった。探針今後は研究室内で所有する SEM/FIB 装置を用いてセンサ先端に探針を成長させ、不要なセンサ部分の質量増加による影響を少なくする方法を試みる。

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 8 件)

1. Ayhan Yurtsever, Jo Onoda, Masayuki Abe, Chi Lun Pang, Yoshiaki Sugimoto, "Imaging the TiO₂ (011)-(2 × 1) Surface using Noncontact Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy", The Journal of Physical Chemistry C, Vol. 120, pp. 3390-3395 (2015).
2. S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, V. Zobac, P. Pou, L. Rodrigo, P. Mutombo, R. Perez, P. Jelinek, S. Morita, "Interplay between switching driven by the tunneling current and atomic force of a

- four-atom Si quantum dot by means of scanning probe microscopy”, *Nano Letters*, Vol. 15, pp. 4356-4363 (2015).
3. Hiroshi Toki and Masayuki Abe, “Multiconductor transmission-line theory that includes an antenna process with a lumped-parameter circuit”, *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 85, pp. 034801-1/-8 (2016).
 4. Daiki Katsube, Yutaro Takase, Hayato Yamashita, Satoshi Abo, Fujio Wakaya, and Masayuki Abe, “A Preparation Method for Atomically Clean Sapphire Surfaces and High Resolution Topographic Method for Their Imaging by Non-contact Atomic Force Microscopy”, *Material Transactions* Vol. 56, pp. 1310-1313 (2016).
 5. Delia Fernández-Torre, Ayhan Yurtsever, Jo Onoda, Masayuki Abe, Seizo Morita, Yoshiaki Sugimoto, and Rubén Pérez, “Pt atoms adsorbed on TiO₂(110)-(1 × 1) studied with non-contact atomic force microscopy and first-principles simulations”, *Physical Review B*, Vol. 91, pp. 075401-1/-7 (2015).
 6. Eiichi Inami, Ikutaro Hamada, Keiichi Ueda, Masayuki Abe, Seizo Morita, Yoshiaki Sugimoto, “Room-temperature concerted switch of a binary atom cluster”, *Nature Communications*, pp. 6231-6237 (2015).
 7. Stefan Kuhn, Markus Kittelmann, Yoshiaki Sugimoto, Masayuki Abe, Angelika Kühnle, and Philipp Rahe, “Identifying the absolute orientation of a low-symmetry surface in real space”, *Physical Review B*, Vol. 90, pp. 195405-1/-12 (2014).
 8. Shuji Kitora, Masayuki Abe, and Hiroshi Toki, “Electromagnetic Noise in Electric Circuits: Ringing and Resonance Phenomena in the Common Mode”, *AIP Advances*, Vol. 4, 117119-1/-6 (2014).
- [学会発表] (計 36 件)
1. 神野崇馬, 土岐博, 阿部真之, “3 本線伝送線回路内におけるコモンモードノイズ”, 電子情報通信学会 2016 年総合大会, 2016/3/16-18, 九州大学, B-4-73.
 2. 向出周太, 山末耕平, 阿部真之, 長康雄, “非接触走査型非線形誘電率ポテンシオメトリとケルビンプローブフォース顕微鏡法の実験的比較”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 2016/3/19-2016/3/22, 東京工業大学, 22a-H113-4.
 3. 山崎 詩郎, 前田 圭亮, 杉本 宜昭, 阿部 真之, Vladimir Zobac, Pou Pablo, Rodrigo Lucia, Mutombo Pingo, Perez Ruben, Jelinek Pavel, 森田 清三, “Si(111)-(7x7)表面上の Si テトラマーのスイッチ操作”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 2016/3/19-2016/3/22, 東京工業大学大岡山キャンパス, 22p-H113-8.
 4. 勝部 大樹, 高瀬 勇太郎, 山下 隼人, 阿保 智, 若家 富士男, 阿部 真之, “非接触原子間力顕微鏡を用いた LaAlO₃(100)表面の原子分解能観察”, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 2015/9/13-2015/9/16, 名古屋国際会議場, 13p-2H-2.
 5. 勝部 大樹, 山下 隼人, 阿保 智, 若家 富士男, 阿部 真之, “パルスレーザー堆積/非接触原子間力顕微鏡複合装置の開発とアナターゼ型 TiO₂(001)表面の高分解能測定”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 2016/03/19-2016/03/22, 東京工業大学, 21a-H111-3.
 6. 勝部大樹, 山下隼人, 阿保智, 若家富士男, 阿部真之, “パルスレーザー堆積/原子間力顕微鏡複合装置の開発とアナターゼ型 TiO₂(001)表面の観察”, 第 11 回日本表面科学会放射光科学研究部会・顕微ナノ材料科学研究会合同シンポジウム, 2016/03/14-2016/03/15, Spring8, p3
 7. Daiki Katsube, Yutaro Takase, Hayato Yamashita, Satoshi Abo, Fujio Wakaya, and Masayuki Abe, “High resolution imaging of LaAlO₃(100) using non-contact atomic force microscopy”, 10th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices, 2015/10/25-2015/10/30, Shimane Prefectural Convention Center, Japan, 28p-P-43.
 8. 阿部真之, “パルスレーザー堆積/原子間力顕微鏡複合装置の開発と TiO₂ 表面観察”, ナノ構造情報のフロンティア開拓第 3 回公開シンポジウム, 東京大学武田先端知ホール
 9. Y. Sugimoto, S. Yamazaki, E. Inami, A. Yurtsever, M. Abe, and S. Morita, “Switching Behaviors of Atom Clusters created by Inter-NanoSpace Atom Manipulation”, Symposium on Surface and Nano Science 2015 (SSNS 15), 2015/01/14-2015/01/18, Furano, Hokkaido, Japan
 10. Y. Sugimoto, A. Yurtsever, N. Hirayama, M. Abe, and S. Morita,

- “Inter-nanospace atom manipulation for cluster assembly”, 22th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2014/12/11-2014/12/13, Atagawa, Shizuoka, Japan
11. S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek, and S. Morita, “Interplay between Current and Force on Si₄ Atom Switch”, 22th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2014/12/11-2014/12/13, Atagawa, Shizuoka, Japan
 12. E. Inami, I. Hamada, K. Ueda, M. Abe, S. Morita, and Y. Sugimoto, “Room Temperature Chiral Switch of Nanocluster Created by Atom Manipulation”, The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7), 2014/11/03-2014/11/06, Kunibiki Messe, Matsue, Shimane, Japan
 13. S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek, and S. Morita, “Competing Force- and Current-Induced Atom Switching at Bi-stable All-Si Tetramer”, The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7), 2014/11/03-2014/11/06, Kunibiki Messe, Matsue, Shimane, Japan
 14. Y. Sugimoto, A. Yurtsever, N. Hirayama, M. Abe, and S. Morita, “Atom-by-atom clustering by scanning probe microscopy”, The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7), 2014/11/03-2014/11/06, Kunibiki Messe, Matsue, Shimane, Japan
 15. S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek, and S. Morita, “Mechanical Atom Switching of Bistable Si₄ Cluster
 16. 学会等名 : 17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy”, 2014/08/04-2014/08/08, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Ibaraki, Japan
 17. R. Shimizu, Y. Sugimoto, K. Akagi, M. Abe, S. Morita, and T. Hitosugi, “NC-AFM study of a SrTiO₃(100)-(R13xR13)-R33.7 reconstructed surface”, 17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy, 2014/08/04-2014/08/08, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Ibaraki, Japan
 18. Y. Sugimoto, A. Yurtsever, N. Hirayama, M. Abe, and S. Morita, “Mechanical gate control for atom-by-atom cluster assembly with scanning probe microscopy”, 17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy, 2014/08/04-2014/08/08, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Ibaraki, Japan
 19. K. Maeda, S. Yamazaki, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek, and S. Morita, “Selectable force and current induced atom switching of Si tetramer”, 17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy, 2014/08/04-2014/08/08, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Ibaraki, Japan
 20. Stannard, A. Sweetman, Y. Sugimoto, M. Abe, S. Morita, and P. Moriarty, “Simultaneous noncontact AFM and STM of Ag:Si(111)-(R3xR3)R30”, 17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy, 2014/08/04-2014/08/08, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Ibaraki, Japan
 21. 山崎詩郎、前田圭亮、高谷玲平、澤田大輔、杉本宜昭、阿部真之、P. Pou、L. Rodrigo、P. Motobbo、R. Perez、P. Jelinek、森田清三, “双子 Si 原子スイッチ間の相互作用と環境効果”, 日本物理学会第70回年次大会, 2015/03/21-2015/03/24, 早稲田大学
 22. 杉本宜昭、Ayhan Yurtsever、平山直樹、阿部真之、森田清三, “原子間力顕微鏡を用いたナノスペース間の原子操作”, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 2015/03/11-2015/03/14, 東海大学
 23. 稲見栄一、濱田幾太郎、上田啓市、阿部真之、森田清三、杉本宜昭, “室温で動作する鉛クラスタースイッチの組立”, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 2015/03/11-2015/03/14, 東海大学.
 24. 山崎詩郎、前田圭亮、高谷玲平、澤田大輔、杉本宜昭、阿部真之、P. Pou、L. Rodrigo、P. Motobbo、R. Perez、P. Jelinek、森田清三, “電流と力で駆動する分子的 Si スイッチ”, 第5回分子アーキテクトニクス研究会, 2014/11/25-2014/11/26, 大阪大学.
 25. 稲見栄一、濱田幾太郎、上田啓市、阿部真之、森田清三、杉本宜昭, “原子操作による室温動作が可能な鉛クラスター

- スイッチの組立”, 第5回分子アーキテクトニクス研究会, 2014/11/25-2014/11/26, 大阪大学
26. 山崎詩郎、前田圭亮、高谷玲平、澤田大輔、杉本宜昭、阿部真之、P. Pou、L. Rodrigo、P. Motobbo、R. Perez、P. Jelinek、森田清三, “トンネル電流と原子間力で競合的に駆動する Si 原子スイッチ”, 第34回表面科学会学術講演会, 2014/11/06-2014/11/08, くにびきメッセ、島根県松江市
27. 杉本宜昭、Ayhan Yurtsever、平山直樹、阿部真之、森田清三, “原子操作によるナノクラスターの組立”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014/09/17-2014/09/20, 北海道大学
28. 山崎詩郎、前田圭亮、高谷玲平、澤田大輔、杉本宜昭、阿部真之、P. Pou、L. Rodrigo、P. Motobbo、R. Perez、P. Jelinek、森田清三, “Si 原子スイッチにおける電流と力の競合”, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/09/07-2014/09/10, 中部大学.
29. Satoshi Abo, Takahiro Uezato, Fujio Wakaya, Masayuki Abe, and Mikio Takai, “Development of miniature x-ray source using pyroelectric crystal excited by laser light”, The 6th IEEE International Nanoelectronics Conference 2014, 2014/07/28-2014/07/31, Hokkaido University, Sapporo, Hokkaido, Japan
30. 萬木成彰、若家富士男、阿保智、阿部真之、高井幹夫, “マスクレス加工のためのグラフェンへの紫外レーザ照射 (III)”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17-20日, 北海道大学
31. 山田芳生、阿保智、若家富士男、村上勝久、阿部真之、高井幹夫, “電子ビーム誘起堆積 Pt ナノ電子源からの縞状電子放出パターンの磁場中での観察”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17-20日, 北海道大学.
32. 上里鷹寛、阿保智、若家富士男、阿部真之、高井幹夫, “赤外レーザ励起タンタル酸リチウム X 線源の特性評価”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17-20日, 北海道大学.
33. 岡脇周平、阿保智、若家富士男、阿部真之、高井幹夫, “サイドゲート電極付 CNT 電子源を用いた X 線源の開発”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17-20日, 北海道大学.
34. Fujio Wakaya, Tadashi Kurihara, Nariaki Yurugi, Satoshi Abo, Masayuki Abe, Mikio Takai, “Maskless Laser Processing of Graphene”, 40th Micro and Nano Engineering, 2014/09/22-2014/09/26, Lausanne,

Switzerland.

35. S. Okawaki, S. Abo, F. Wakaya, M. Abe and M. Takai, “X-Ray Source Using CNT Field Emitter with Side-Gate Electrode”, 27th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2014/11/4-2014/11/7, Hilton Fukuoka Sea Hawk, Fukuoka, Japan
36. Yoshio Yamada, Satoshi Abo, Fujio Wakaya, Katsuhisa Murakami, Masayuki Abe, Mikio Takai, “Observation of Fringelike Emission Pattern in Magnetic Field”, The 21st International Display Workshops, 2014/12/3-2014/12/5, Toki Messe, Niigata, Japan

[図書] (計2件)

1. Y. Sugimoto, M. Abe, and S. Morita, “Imaging and Manipulation of Adsorbates Using Dynamic Force Microscopy, Advances in Atom and Single Molecule Machines”, (Eds. P. Moriarty and S. Gauthier), Chapter 3 “Atom Manipulation using atomic force microscopy at room temperature”, pp. 49-62, Springer, (2015).
2. M. Abe, Y. Sugimoto, and S. Morita: “Chapter 4: Manipulation and Spectroscopy Using AFM/STM at Room Temperature” in “Noncontact Atomic Force Microscopy Vol.3”, Springer, (2015)

[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

6. 研究組織

(1) 研究代表者: 阿部真之 (ABE, Masayuki)
大阪大学大学院基礎工学研究科・教授
研究者番号: 00362666

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: