

# 散乱型プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡

井上 康 志

ニアフィールド光学顕微鏡は、光の波長による回折限界を超える分解能を実現する新しい光学顕微技術である<sup>1,2)</sup>。従来の光学顕微鏡のように試料からの回折光を対物レンズを用いて像面上に結像させるのではなく、ニアフィールド光学顕微鏡では、試料の近傍で波長よりも微小な開口を通して観察あるいは照明することで、開口径程度の分解能を達成する。従来の光学顕微鏡においても、コンフォーカル蛍光顕微鏡<sup>3,4)</sup>や2光子励起法を用いた蛍光顕微鏡<sup>5)</sup>などのように非線形性を用いることで、分解能を向上することができるが、その分解能もやはり波長の制限を受ける。これに対し、ニアフィールド光学顕微鏡は、分解能が開口の大きさにより決まるため、光の波長による制限を完全に解消する方法である。

ニアフィールド光学顕微鏡の研究の歴史は古く、1928年にアイルランドのSyngéが微小開口を用いたニアフィールド光学顕微鏡を提案し<sup>6)</sup>、1984年にIBMチューリッヒのPohlらが可視光域での回折限界を超える分解能を実現した<sup>7)</sup>。その後、Bell研のBetzigらが、先鋭化した光ファイバーの周りに金属コーティング（アルミニウム）を施しその先端に微小開口を設けたプローブの開発<sup>8)</sup>により単分子蛍光計測<sup>9)</sup>、多重量子井戸構造の分光分析<sup>10)</sup>、あるいは光磁気メモリーへの応用<sup>11)</sup>等の先駆的研究を報告した。

しかし、この光ファイバープローブにおいては、微小開口の大きさが、光の滲み出しを防ぐためにコーティングした金属の表皮厚さ（skin depth）により制限を受ける。すなわち、微小開口部は金属導波管とみなせ、その伝搬モー

ド（TE<sub>11</sub>）に対するエネルギーのdecay rateと金属の表皮厚さによる吸収が等しくなる 때가、最小の開口半径を与える<sup>12)</sup>。一般に使われるアルミニウムでは最小の開口直径が48 nmとなる、言い換えると、この直径より小さい微小開口では光が試料側に伝搬しないことを意味する。

そこで、筆者らは、この問題が微小開口を用いることで生じていることに着目し、ニアフィールド光学顕微鏡の分解能向上を図るために、散乱型プローブ、および外部光学系による散乱光の直接検出を用いる方法を提案した。本報告では、これまでに提案、開発してきた金属プローブ<sup>13,14)</sup>を用いた散乱型ニアフィールド光学顕微鏡の原理を説明するとともに、開発したニアフィールド光学顕微鏡により得られたいくつかのニアフィールド光学像を示し、表面に局在する場のイメージングについて紹介する。

## 1. 散乱型プローブ

物体により散乱された光の場には、空間中を伝搬する伝搬光成分と空間中を伝搬できないエバネッセント場成分がある<sup>15)</sup>。伝搬光成分では光軸と垂直な方向の波数ベクトル $k_x$ がただか $2\pi/\lambda$ 程度であるのに対して、エバネッセント場では $k_x > 2\pi/\lambda$ となる。このことは、エバネッセント場のほうが、より高い波数の試料構造の情報を有することを意味する。ただし、エバネッセント場の光軸方向の波数ベクトルは純虚数となるため、空間中を伝搬できず試料構造近傍に局在する。従来の光学顕微鏡は、このうち空間中を伝搬する回折光のみを対物レンズにより集光し、結像するため、波数ベクトル $2\pi/\lambda$ より微細な構造を観察することができない、言い換えると、その分解能は波長による回折限界を受ける（図1(a)）。一方、ニアフィールド光学顕微鏡では、エバネッセント場領域内に微小散乱体（プローブ）を挿入し、エバネッセント場の境界条件を変える、すなわ

大阪大学大学院工学研究科応用物理学専攻（〒565-0871 吹田市山田丘 2-1）  
E-mail: ya-inoue@ap.eng.osaka-u.ac.jp

\* 平成7年度光学論文賞受賞記念解説は、慣例では「光学」第25巻第8号に掲載されることになっておりました。記事の掲載が大幅に遅れたことをお詫びいたします。（「光学」編集委員長 伊藤一良）

ち、エバネッセント場を散乱により破壊する。このとき、破壊されたエバネッセント場の一部は、伝搬光に変換される(図1(b))。微小散乱体を試料近傍で走査しながら、この散乱光を外部光学系を用いて集光しファーストフィールドにおいて検出することで、像観察を行う。これが散乱型ニアフィールド光学顕微鏡の原理であり、観察される像はエバネッセント場を含む試料構造による散乱場の分布となる。図1(b)に示す形式のニアフィールド光学顕微鏡は、微小な誘電体球あるいは金属球をレーザートラッピングすることで実現できる<sup>16,17)</sup>。

レーザートラッピングが可能な環境は限られているため、より一般的な散乱型プローブとしては、走査型トンネル顕微鏡 (STM) 探針と同様の金属プローブ<sup>13)</sup> や原子間力顕微鏡 (AFM) のカンチレバー (Si, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)<sup>18,19)</sup> があげられる。プローブ-試料間距離を STM あるいは AFM により制御し、プローブ先端からの散乱光をニアフィールド光学像として取得する。これら散乱型プローブの分解能は、プローブ先端径程度で、実際、電磁論的解析によると、先端径 20 nm の PtIr プローブを試料表面近傍 8 nm の位置においた場合、プローブ先端におよそ 30 nm の微小スポット

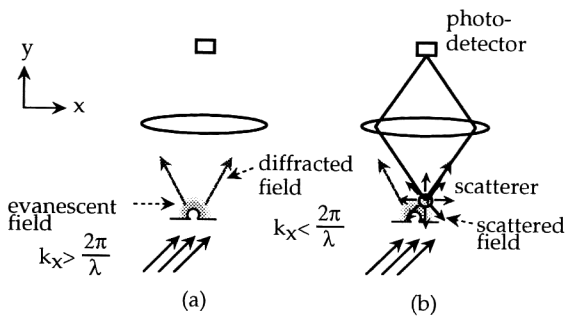


図1 散乱型ニアフィールド光学顕微鏡の原理図。(a) プローブがない場合、(b) プローブによる散乱。

トが形成され、さらにその電場強度は約 40 倍に増強される<sup>2)</sup>。すなわち、散乱型ニアフィールド光学顕微鏡では、プローブ先端のこの微小スポットにより試料の照明を行っているといえる。なお、散乱型プローブの詳しい特徴については、別著に譲る<sup>2)</sup>。

## 2. 金属プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡

金属の散乱効率誘電体や半導体に比べて高いことから、散乱型プローブとして金属プローブを用いることで、プローブ先端で明るい散乱光が得られる。これは、金属プローブ先端で生じる局所的な表面プラズモンによるものと考えられ、金属プローブの特徴である。したがって、照明光の偏光方向に対する依存性が高く、プローブに対して平行、試料に対して垂直な方向の偏光 (P 偏光) を有する入射光の場合に強い散乱光が得られる。前章で述べた電場増強された微小スポットは、この条件下で形成されるものである。

筆者らのグループでは、この特徴に着目し、金属プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡の考案、試作を行った<sup>13,14,20)</sup>。図2に、試作したニアフィールド光学顕微鏡の構成を示す。照明用光源には半導体レーザー ( $\lambda = 670 \text{ nm}$ ) を使い、透明試料に対しては全反射光学系により、不透明試料に対しては鏡面反射光が直接検出されない角度からの照明により、試料を暗視野照明した。金属プローブには機械研磨により先端を先鋭化した PtIr を使用した。プローブ先端からの散乱光は、長作動対物レンズ (NA=0.35, 20 倍) により光電子増倍管まで導いた。さらに、プローブ先端以外からの迷光成分を除去するために、プローブを周波数 10 kHz, 振幅 0.5 nm で上下方向に微小振動させ、プローブ先端からの散乱光成分のみをロックイン検出した。プローブの位置制御は、金属プローブを STM 探針として併

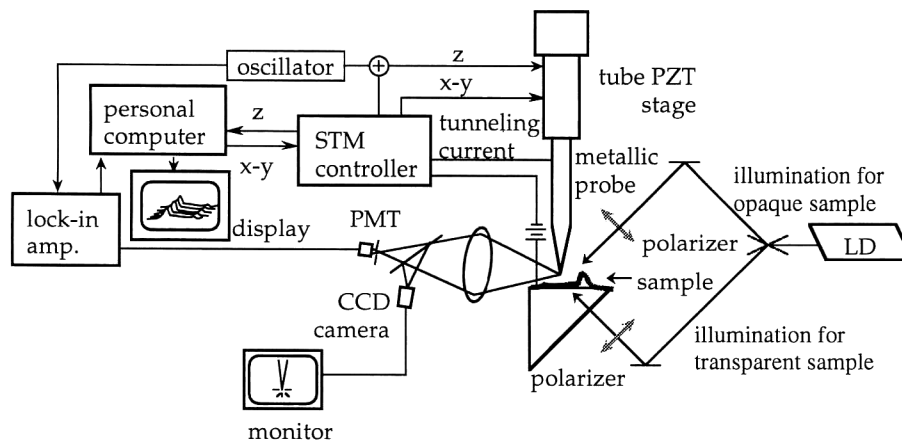


図2 試作した金属プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡の構成。

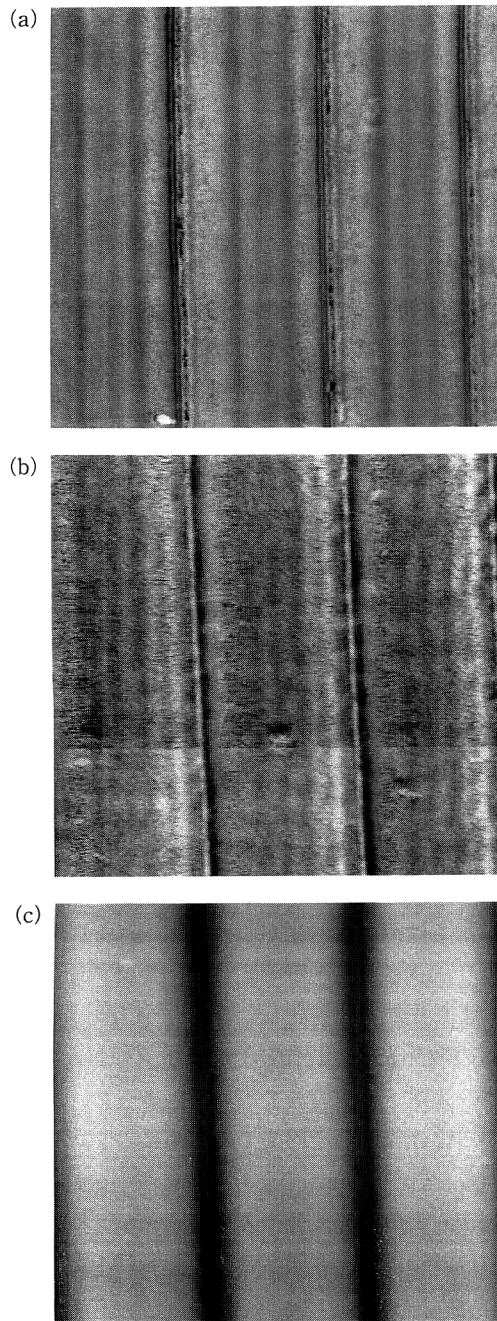


図3 光磁気ディスク基板の観察像。(a)ニアフィールド光学像 (P 偏光照明, P 偏光検出; 右方向から全反射照明), (b)ニアフィールド光学像 (S 偏光照明, S 偏光検出; 右方向から全反射照明), (c) STM 像。

用し、プローブと試料間を流れるトンネル電流を一定にすることで行った (定電流モード)。

図3に、試作した装置による光磁気ディスク基板 (1.6  $\mu\text{m}$  ピッチの周期構造を有し、溝の深さは約 40 nm、基板表面には、STM 用の電極として金を 30 nm コーティングした) の観察像を示す<sup>14)</sup>。(a), (b) がニアフィールド光学像、(c) が STM 像である。(a), (b), (c) とともに、走査範囲は 5  $\mu\text{m}$   $\times$  5  $\mu\text{m}$ 、走査ピッチは 10 nm  $\times$  10 nm である。ま

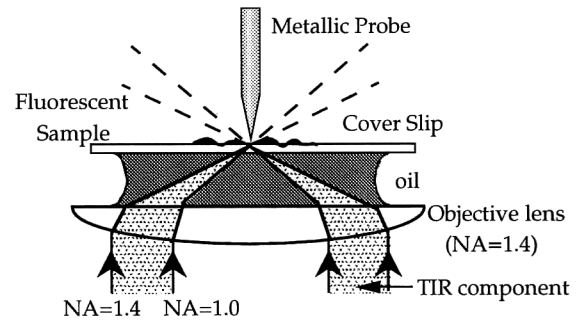


図4 ニアフィールド励起蛍光光学系。

た、ニアフィールド光学像において、照明光は図の右側から試料の基板面に対しておよそ 45°の角度で入射している (全反射照明)。照明光の偏光方向は、各々、(a) P 偏光、(b) S 偏光である。ニアフィールド光学像は、STM 像と比べると、試料のトポグラフィーを直接反映するものではなく、試料表面に局在する場を示すことがわかる。特徴的な点は、エッジ部の検出強度のほうが平坦なランド部より強いこと、およびランド部に干渉縞が形成されていることである。前者は、エッジ部の構造が微細である (高い空間周波数成分を有する) ため、エバネッセント場の局在が強いことにより、また後者については、周期構造により生じたエバネッセント場化した高次の回折光間の干渉によるものである。また、照明光の偏光による違いであるが、検出強度が P 偏光のときのほうが S 偏光のときよりおよそ 10 倍高いこと、および S 偏光照明ではエッジ部付近の強度分布がエッジに対して非対称になっているなどコントラストがやや異なる点があげられる。これら以外にも、生体試料や半導体試料にも適用し、生体組織内部の構造の変化による屈折率分布の観察<sup>21)</sup>や 240 nm 周期構造の微細構造の観察を行った<sup>20)</sup>。

ところで、ニアフィールド光学顕微鏡の主要な応用として単分子蛍光測定等の蛍光観察がある<sup>9)</sup>。そこで、筆者らは図4に示す光学系を用いたニアフィールド励起蛍光測定法の提案を行っている<sup>22)</sup>。この光学系は油浸対物レンズを用いた落射光学系を基本としており、さらに開口数 (NA) 1 以下の光を除去することで試料表面上でエバネッセント場スポットを形成し、それによる照明を行う。したがって、NA 1 以上の照明光による輪帯照明となることから、エバネッセント場スポットは回折限界まで絞られ、また、NA 1 以下の透過光成分がプローブ先端以外で散乱することで生じる蛍光の迷光成分を最小限におさえられる。さらに、高 NA レンズを用いていることで、励起された蛍光を効率よく集光することができる。この光学系 (対物レンズ NA = 1.4) を用いて、shear force により位置制御した PtIr プロ

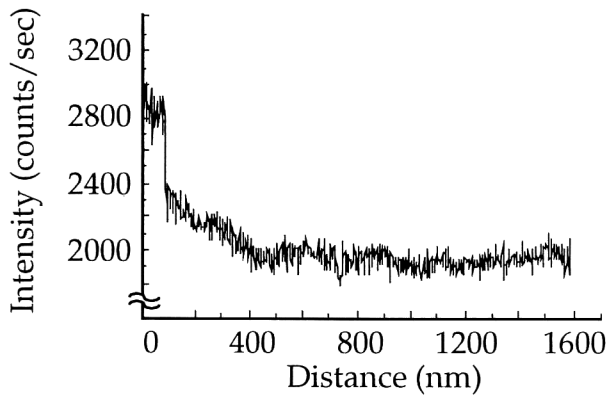


図5 蛍光強度の距離依存性.

プローブを試料表面上で上下方向に走査させ、プローブ-試料間距離の蛍光強度依存性を測定した結果を図5に示す。透過光成分による影響がないため距離250 nm程度までは蛍光強度の増加がほとんど見られない一方で、電場の増強効果により100 nm以内の距離になると蛍光強度が急峻に増加している。この蛍光強度依存性には、電場増強効果だけではなく、金属とのクエンチング現象などの興味深い相互作用が含まれており、今後これらの解明を時間分解分光法等との組み合わせで明らかにしていきたい。また、筆者らは、バックグラウンド蛍光の完全除去および試料の退色の軽減を可能にするため、非線形光学現象である2光子励起法と組み合わせることで、プローブ先端の場の増強されたところにおいてだけ蛍光が局所的に励起されるニアフィールド励起2光子蛍光法を提案している<sup>23)</sup>。本手法が実現すれば、散乱型ニアフィールド光学顕微鏡においても単分子蛍光の測定が可能になると期待される。

### 3. マルチハイトイメージング

ニアフィールド光学顕微鏡では、プローブを試料表面からおよそ10 nm以内で走査することから、照明光は試料とプローブとの間で多重散乱する。したがって、照明光は試料との相互作用を多重に受け、検出される光は試料の光学情報に対して非線形な応答を示す。この応答は、例えば、プローブ-試料間距離が変化すれば多重散乱の度合いが変化することから、その距離あるいはプローブ走査法に依存すると考えられる。そこで、ニアフィールド光学画像に対するそれらの依存性を明らかにするために、プローブ-試料間距離をパラメータとして、ニアフィールド光学像のコントラストの検討を行った。走査方法は図6に示すように、プローブ-試料間距離を一定に保って走査する constant gap mode (CGM: 一定距離制御モード) で行った。使用した装置は図2と同じものである。まず、各位置にお

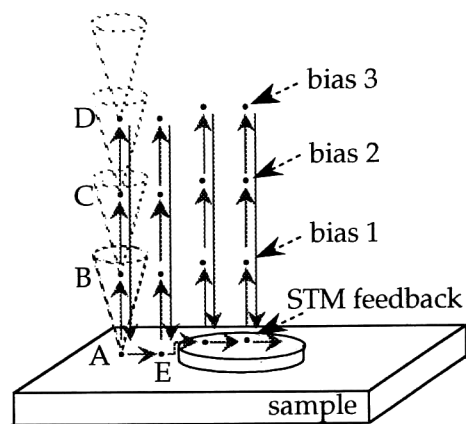


図6 プローブのCGM走査法.

いてトンネル電流によりプローブを初期位置に近づける(試料表面から約1 nm)。その後、 piezoelectric素子に加えるバイアス電圧を順次変えることにより、プローブと試料間の距離を順に変える。このとき、それぞれの高さにおいてニアフィールド光学信号を検出する。最後にトンネル電流によりプローブを初期位置まで戻す。この走査を各ピクセルで行うことによって、距離の異なる複数枚のCGMによるニアフィールド光学像を測定する<sup>24)</sup>。なお、バイアス電圧と piezoelectric素子の駆動距離との較正曲線はあらかじめ測定を行っており、試作システムではコンピューターによる電圧制御で任意の距離設定を可能とした。得られたニアフィールド光学像を図7に示す。試料には図3と同じ光磁気ディスク基板を使用し、照明光にはP偏光を用いた。画像の大きさは、縦250 nm×横3 μm、各画素12×12 nm<sup>2</sup>で、縦20画素×横256画素である。一番上が同時に得られたSTM像で、試料形状を示す。残りの13枚は、プローブ-試料間の距離を変えて測定したニアフィールド光学像で、下から上に行くにしたがって距離が離れていく。各ニアフィールド光学像の左の値は、プローブ-試料間の距離を表し、トンネル電流によるフィードバックのかかる位置(試料表面から約1 nm)を0 nmとしている。これらのニアフィールド光学像から、距離によって画像が大きく異なり、プローブが試料から離れるにしたがって微細構造の情報が失われていくことがわかる。その特徴としては以下のことがあげられる。

- 1) 0~10 nmまでのニアフィールド光学像はほぼ同様のコントラストを有し、図3と同様に周期構造による高次回折光間の干渉縞がみられる。これらの高次回折光はエバネッセント場化し、試料表面に局在していることから、試料表面から離れるにしたがって干渉縞のコントラストが消失していく。このことは、高次回折光が試料表面10 nm程度に局在化していること

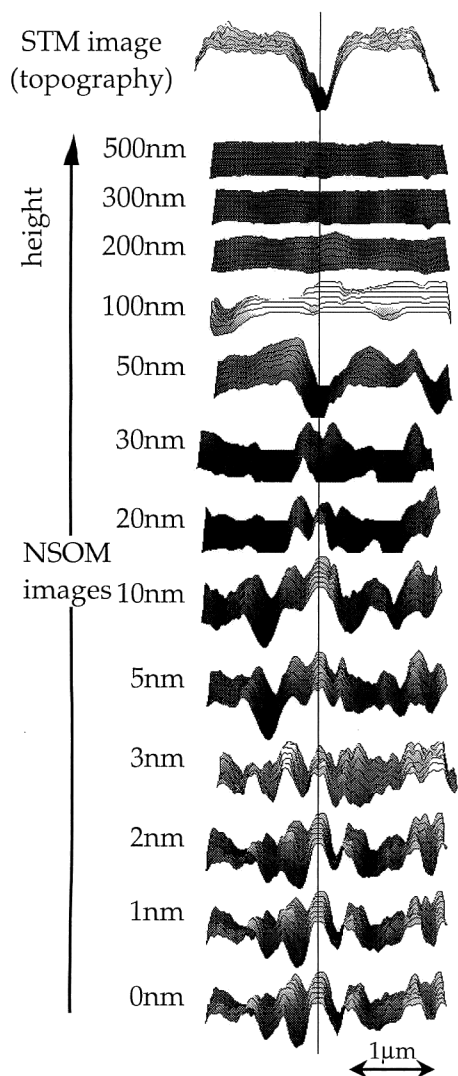


図7 CGMによるマルチハイトイメージング。

を示している。

- 2) 50 nm 程度では試料形状に似た像が得られる。この距離は、試料の構造（深さ約 40 nm の溝）およびプローブ先端径（約 50 nm）とほぼ同様の値であり、構造の大きさによる共鳴現象が生じていると考えられる<sup>25)</sup>。
- 3) ニアフィールドであるエバネッセント場の局在域が数百 nm であることから、200 nm 以上離れると像はコントラストを失う。

以上のように、プローブ-試料間距離を変化させながら、複数枚のニアフィールド光学像を得ることは、滲み出し深さの異なるエバネッセント場の分布を画像化することを意味する。エバネッセント場の滲み出し深さは、そのエバネッセント場を生成した試料の幾何学的および光学的に重畳した各構造のディメンションに相当する。したがって、STM あるいは AFM により試料の幾何学的構造を知り、

プローブ-試料間距離が異なる複数のニアフィールド光学像から幾何学的および光学的に重畳した構造を知ること、試料の光学的構造の分布のみを抽出できることが期待される。

筆者らはまた、プローブの高さを一定に保って走査する constant height mode (CHM: 一定高度制御モード) および CGM の 2 つの走査モードに対する、ニアフィールド光学像のコントラストについての比較も行った。その結果、CGM では試料に近接してプローブを走査することから、常に強い電磁場相互作用が働くことでコントラストが増強されることを示した<sup>26)</sup>。さらに、微小開口型プローブにおいて報告されているチップモーション・アーティファクト（ニアフィールド光学像にトポグラフィーがクロストークとして重畳すること）が<sup>27)</sup>、散乱型金属プローブではみられていない。これは、微小開口型の先端は金属薄膜も含めると数百 nm の大きさになることから、数百 nm 程度の構造の観察の際においてもアーティファクトが生じるのに対し、散乱型プローブでは先端径が 50 nm 以下であるため、観察されなかったものと考えられる。

散乱型プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡の原理、特徴およびその実施例について紹介した。実施例では、金属プローブを用いたニアフィールド光学顕微鏡により観察した表面に局在する場のイメージングの具体例をあげた。さらに、プローブ-試料間距離を順次変化させることでコントラストが変化することを示した。今後はこれらマルチハイトイメージングから光学的特性だけを抽出するアルゴリズムの開発に着手していきたいと考えている。

以上、本報告で紹介した散乱型プローブは、ニアフィールド光学顕微鏡のもつ超解像性をナノメートルオーダー以下にまで広げる可能性を有しており、新しい光学顕微技術として、医学、生物学、表面科学、材料科学をはじめ広範囲な分野への応用だけではなく、新しい光物理の分野の開拓としても期待される。

最後に、本研究を進めるに当たり、ご指導、ご助言をいただいた大阪大学大学院工学研究科河田聡教授に心からお礼申し上げます。

## 文 献

- 1) 河田 聡: 光学, **21** (1992) 766-779.
- 2) 河田 聡, 井上康志: 光学, **26** (1997) 516-524.
- 3) 中村 収, 河田 聡, 南 茂夫: 応用物理, **57** (1988) 784-791.
- 4) S. Hell and E. H. Stelzer: J. Opt. Soc. Am. A., **9** (1992) 2159-2166.
- 5) O. Nakamura: Optik, **39** (1993) 645-661.

- 6) E. H. Synge: *Philos. Mag.*, **6** (1928) 356-362.
- 7) D. W. Pohl, W. Denk and M. Lanz: *Appl. Phys. Lett.*, **44** (1984) 651-653.
- 8) E. Betzig, J. K. Trautman, T. D. Harris, J. S. Weiner and R. L. Kostelak: *Science*, **251** (1991) 1468-1470.
- 9) E. Betzig and R. J. Chichester: *Science*, **262** (1993) 1422-1424.
- 10) H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer and K. West: *Science*, **264** (1994) 1740-1744.
- 11) E. Betzig, J. K. Trautman, R. Wolfe, E. M. Gyorgy, P. L. Finn, M. H. Kryder and C. H. Chang: *Appl. Phys. Lett.*, **61** (1992) 142-144.
- 12) J. P. Fillard: *Near Field Optics and Nanoscopy*, 1st ed. (World Scientific Publishing, Singapore, 1996).
- 13) Y. Inouye and S. Kawata: *Opt. Lett.*, **19** (1994) 159-161.
- 14) Y. Inouye and S. Kawata: *J. Microscopy*, **178** (1994) 14-19.
- 15) E. Wolf and M. Nieto-Vespeinas: *J. Opt. Soc. Am. A*, **2** (1985) 886-889.
- 16) S. Kawata, Y. Inouye and T. Sugiura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33** (1994) L1725-L1727.
- 17) T. Sugiura, T. Okada, Y. Inouye, O. Nakamura and S. Kawata: *Opt. Lett.*, **22** (1997) 1663-1665.
- 18) N. F. van Hulst, M. H. Moers, O. F. J. Noordman, R. G. Tack, F. B. Segerink and B. Bolger: *Appl. Phys. Lett.*, **62** (1993) 461-463.
- 19) F. Zenhausern, M. P. O'Boyle and H. K. Wickramasinghe: *Appl. Phys. Lett.*, **65** (1994) 1623-1625.
- 20) Y. Inouye and S. Kawata: *Opt. Commun.*, **134** (1997) 31-35.
- 21) Y. Inouye and S. Kawata: "Near field optics-3," *European Optical Society Topical Meetings Digest Series, 8* (1995) pp. 57-58.
- 22) 早澤紀彦, 井上康志, 河田 聡: 第45回応用物理学学会学術講演会予稿集 (1998) p. 965.
- 23) 加野 裕, 井上康志, 古川祐光, 河田 聡: 第43回応用物理関係連合講演会予稿集 (1996) p. 886.
- 24) H. Hatano, Y. Inouye and S. Kawata: *Opt. Lett.*, **22** (1997) 1532-1534.
- 25) M. Xiao: *Opt. Commun.*, **136** (1997) 213.
- 26) H. Hatano, Y. Inouye and S. Kawata: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37** (1998) 1008-1010.
- 27) B. Hecht, H. Bielefeldt, Y. Inouye, D. W. Pohl and L. Novotny: *J. Appl. Phys.*, **81** (1997) 2492-2498.

(1998年7月15日受理)