

## IV. 3 微小突起をプローブとした走査型近接場光学顕微鏡の開発

### 1. 研究の目的と背景

微小な突起を有するプローブを用いた走査型近接場光学顕微鏡(SNOM)では、従来の方法によるSNOMの欠点の多くが解消される。即ち、① S/N比に優れ、② 試料材質に依存せず、③ nmオーダの試料表面形状計測が可能である。以下では、この微小突起プローブを用いたSNOMの開発について述べる。

### 2. 研究実施項目

- (1) 極微小ラテックス粒子をプローブとした走査型近接場光学顕微鏡の開発  
(委託研究(大阪大学))
- (2) 境界要素法を用いたプローブ周辺の電磁場解析
- (3) FD-TD法を用いたプローブ周辺の電磁場解析
- (4) 近接場領域の現象の解明

### 3. 微小突起をプローブとした走査型近接場光学顕微鏡の原理と特徴

このタイプのSNOMでは、試料の三次元走査のための送り機構を有する走査型光学顕微鏡において、プローブ部を四角錐形状の石英基板とその頂点に固定した微小突起により構成し、微小突起を試料に対向させ、その反対側から基板に全反射条件でレーザー光を入射し、試料からの散乱光を基板上方において検出する。このSNOMの特徴は、石英基板表面に形成したエヴァネッセント波で微小球プローブを照明し、その周りに特異な近接場を形成する点にある。この近接場と試料表面とが相互作用し発生する散乱光を検出して試料像を形成する。平面基板と球状微小突起を用いる場合には、まず、透明な基板の表面にプローブとなる微小突起を付ける[1][2]。この基板にS偏光の光を内側から全反射条件で入射させることで、基板表面にエヴァネッセント波が形成される。エヴァネッセント波は界面に平行な進行波なので突起を照明する。突起は、エヴァネッセント波を散乱し散乱光を発生すると共に、自身の周りに特異な近接場を形成する。これを試料表面に近づけると、近接場における電場と試料との相互作用によって散乱光強度に変化が生じ、この変化を検出することで試料の表面形状を得ることが出来る。

この方法では、突起周りにその形状を反映する局所的な近接場領域が形成され、同じ径のピンホールを用いる方法よりも高空間分解能を達成できる可能性がある。また、基板側から散乱光を検出する反射型であるため、試料に制限を与えない利点を持つ。さらに、入射光と検出光とは方向が異なるので、S/N比が良いという利点も合わせ持つ。

試料に制限を与えないため、導体、絶縁体を問わず、あらゆる試料についてnmオーダの空間分解能による表面形状計測が可能であることから、nmオーダの局所的な光学物性計測、さらには光化学反応を利用した微細加工も可能となる。また、光学顕微鏡と一体構造であるため、広視野からのズームが可能で、プローブ形状を工夫することによって、あらゆる形状の試料の観察が可能となる。

### 4. 極微小ラテックス粒子をプローブとした走査型近接場光学顕微鏡の開発

#### 4.1 はじめに

我々の最近の実験では、球状微小球プローブとして図IV.3.1に示すようなポリスチレンラテックス球（以下PL球と略す）を使用している。真球に近い形状を期待したが、表面には非常に多くの凹凸が存在した。後で述べるように、逆にこのことがSNOMとしての横分解能を上げる役割を果たした。

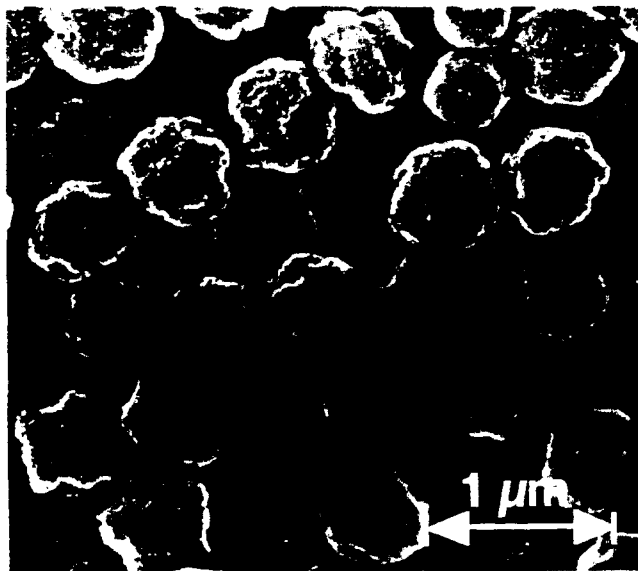
装置構成は、図IV.3.2に示すように

- ①プローブ部
- ②プローブ周辺に近接場を形成するレーザー照射系
- ③プローブからの散乱光を集光し検出する光検出系
- ④試料をプローブに近づけて三次元的な移動を可能にする、インチワームやPZT素子を用いたxyz走査系
- ⑤試料-プローブ間距離を制御するFeedback制御系

で構成されている。FeedbackをONにした場合は、検出光強度が一定、即ち試料-プローブ間距離を一定に制御して走査する。FeedbackをOFFにした場合は、走査時に試料-プローブ間距離が変化することによる検出光強度の変化を検出して試料表面形状を測定する。

プローブ部には、縦分解能を上げるために、電界強度変化がプローブからの距離に敏感であること、また横分解能を上げるために等電界強度領域が横方向に狭いことが要求される。我々は、このような条件を満たすプローブ球としてPL球を選択した。

四角錐形状の石英基板の頂点に、図IV.3.1のようなPL球（直径500nm、旭化成製）を1つ付着させたものを試料表面の走査部とした。基板を四角錐形状としたことで、平面試料測定時における基板と試料との平行度に対する要求が緩和され、測定が容易になった。さらに、四角錐形状の先端角度は入射光の全反射条件を満たす角度とし、頂点を超精密研磨により半径1mm程度の球面に仕上げ、微小球以外の部分における散乱光の発生を防止した。



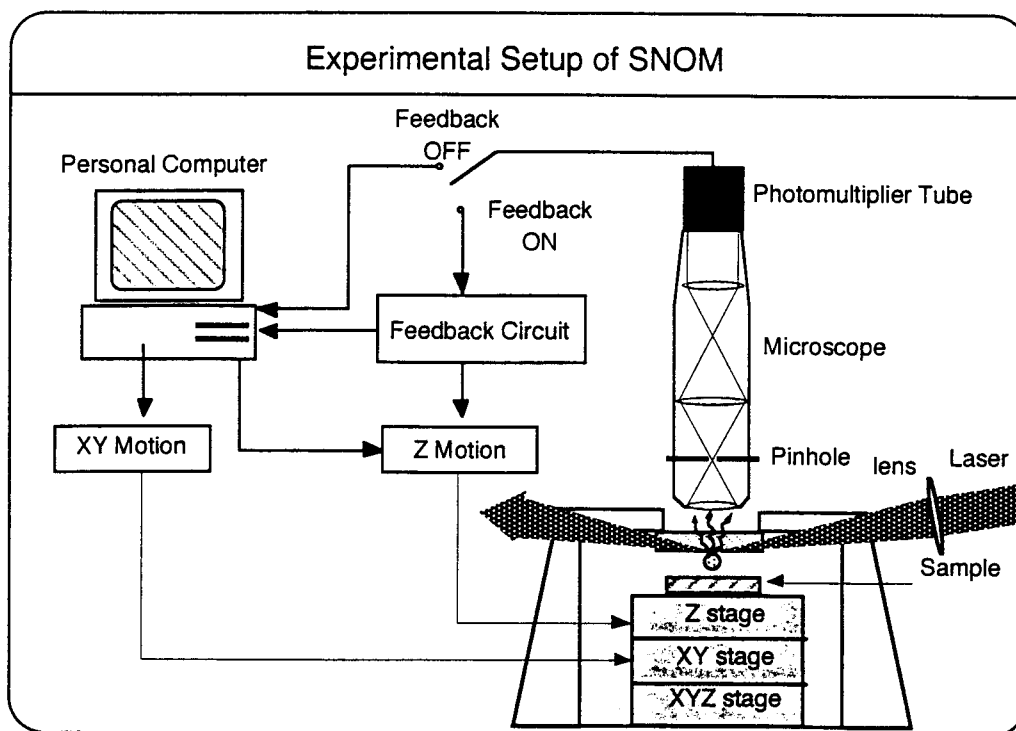
**SEM image of polystyrene latex sphere ( $D_{av.} = 500 \text{ nm}$ )**

図IV.3.1 PL球のSEM像

PL球は、凝集を防ぐため懸濁液として保存されており、1cc中に約7000個のPL球が含まれている。PL球の基板への取り付け方として、

- ①乾燥したPL球を基板頂点に接触させる、
- ②水中に懸濁させたまま水滴として基板頂点につけ水を蒸発させる、

という2つの方法が挙げられる。①の方法は、光学顕微鏡により観察できるが、基板との接触時にPL球が変形したり、基板にうまく付着しない場合が多かった。②の方法は、基板頂点に水滴を付着させることが出来た場合、水の蒸発後にPL球が基板の頂点に残留し、位置の固定もできる。このため、測定に用いるプローブは、②の方法により作製した。PL球の懸濁液を約10



図IV.3.2 近接場光学顕微鏡の構成

万倍に希釈し、その液滴を直径 $3\mu\text{m}$ のガラス繊維の先端につけ、光学顕微鏡観察による位置制御を行って基板頂点に液滴を付着させた。作業中の液滴からの水分の蒸発を防ぐため、以上の操作は相対湿度100%近くに飽和させた容器内で行った。

## 4.2 プローブ部の光学的特性

### 4.2.1 検出光の偏光状態

こうしてできた基板内に、PL球が付着している面の対向面（＝四角錐の底面）から、全反射条件を満たす入射角度でHe-Neレーザー光（波長： $632.8\text{nm}$ 、出力： $5\text{mW}$ ）を入射した。入射光の偏光状態は、電場が入射面と直交するS偏光とした。これは、直径 $10\mu\text{m}$ のソーダガラス球を用いたプローブ部を試用したところ、検出光強度の距離依存性が検出光のS偏光成分にのみ現れたことに起因する。

プローブから放射される光の集光には光学顕微鏡を用いた。これにより、対物レンズの開口数に応じた収差の少ない明るい集光系を形成するとともに、プローブ部の様子をその場観察できる。光学顕微鏡の撮影用像面に可動式のピンホール（直径 $40\mu\text{m}$ →試料上で直径 $1.5\mu\text{m}$ にあたる。PL球の輝点は $1.4\mu\text{m}$ 程度である）を設けることで、PL球より放射される光のみを抽出し、PMTにより光電変換しているため、S/N比の高い測定が可能となっている。

ここで、プローブから光が放射される機構の解明が、近接場での現象の理解、最適なプローブ設計に欠かせないため、検出光の偏光特性を調べた。

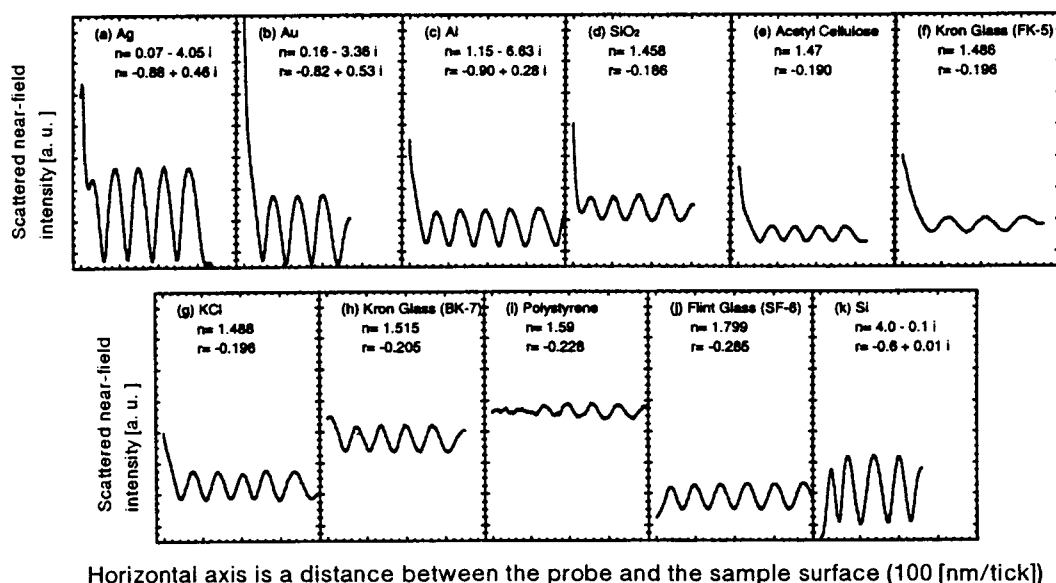
プローブからの光を集光している光学顕微鏡の光路中に偏光フィルタを挿入し、検出光の偏光状態を調べたところ、基板への入射光の偏光と同じS偏光であった。従って、検出光は、入射レーザー光がPL球内に入り込みランダムに反射されたものではないことが確認できた。

検出光の偏光方向が入射光の偏光方向を保存することから、プローブからの放射光は微小な

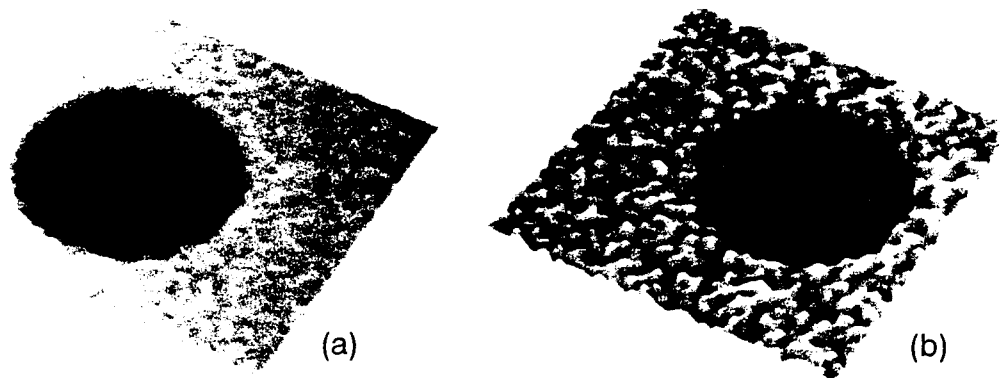
散乱体による光散乱現象と考えられる。我々の装置では、全反射条件の入射レーザー光によって基板表面にエヴァネッセント波が形成されており、この光をプローブで散乱させている。プローブによる光散乱現象は、電気双極子を使って説明すると次のようになる。基板表面のプローブにエヴァネッセント波を照射すると、プローブ中の電子はエヴァネッセント波の振動電界を感受して振動する。このことは、プローブ内に電気双極子が誘起されたことを表す。電気双極子の振動により発せられる電磁波の偏光面は、双極子の振動方向と一致するので、検出光の偏光が入射レーザー光のそれと一致したことが説明できる。また、電気双極子は遠隔場に伝搬光を放射すると共に、双極子自身の周りに近接場を形成する。従って、プローブの周りにはプローブ内の各双極子の近接場を足し合わせた場が形成されていることになる。この領域に試料物質が入ると、近接場と物質との相互作用が生じることになる。

#### 4.2.2 試料やプローブの屈折率の影響

近接場と試料との相互作用の結果発せられる光 (= 検出光) は、両者間の距離に非常に敏感である。この現象を利用することで空間分解能の高い顕微鏡が実現できる。そこで、この検出光強度の試料-プローブ間距離依存性が試料やプローブの材質によってどのように変化するかを調べた。図IV.3.3は、様々な材質の試料を用いた場合の検出光強度の距離依存性を示している。図IV.3.3の横軸は試料-プローブ間距離、縦軸は検出光強度を表す。この図の中で $n$ は波長632.8nmに対する屈折率、 $r$ は振幅反射率を示している。この図IV.3.3から、各試料に対して、試料-プローブ間距離を小さくすると検出光強度に急激な変化が見られることが分かる。この急激な変化は、試料材質により異なっており、試料の屈折率の実部と関係していることが図3より分かる。屈折率の小さい試料 (図IV.3.3 (a~h)) ほど、近接場での検出光強度の増加が激しくなっているが、プローブ材質と同じ試料 (図IV.3.3 (i)) では、検出光の強度変化が無くなり、屈折率の実部がプローブ材質よりも大きな場合 (図IV.3.3 (j, k)) では、逆に検出光強度が減少している。また、近接場以外の領域では、検出光強度はレーザー波長の1/2の空間スケールで周期的に振動している。これは検出光の成分として、プローブからの直接光と、試料



図IV.3.3 近接場領域における試料やプローブの屈折率の影響



図IV.3.4 標準試料の観察結果 ((a)は深さ20nm、(b)は深さ5nm)

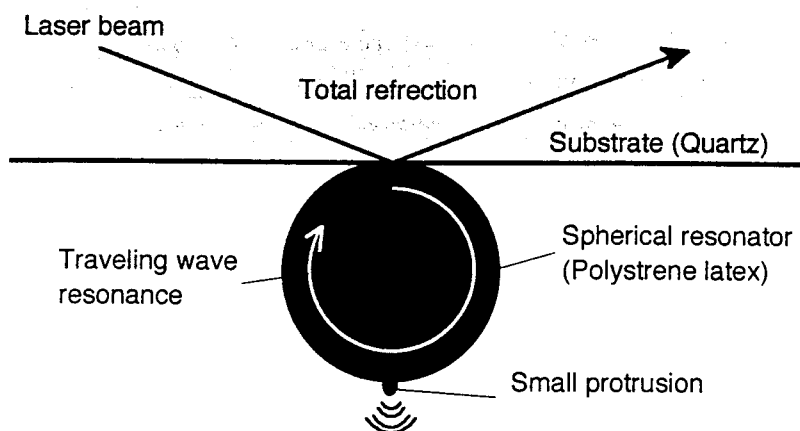
表面で反射された光とが干渉した結果である。現段階では、プローブ材質はポリスチレンであるが、さらに屈折率の高い材質に変えることで、検出光強度の変化をより急峻にし、高空間分解能が達成できると考えられるので、図IV.3.3はプローブの設計指針を与える重要な結果であると考えている。

#### 4.3 PL球をプローブとしたSNOMの実際

ここからは、試作したSNOM装置により標準試料を測定し、空間分解能の評価を行った結果について述べる[3]。

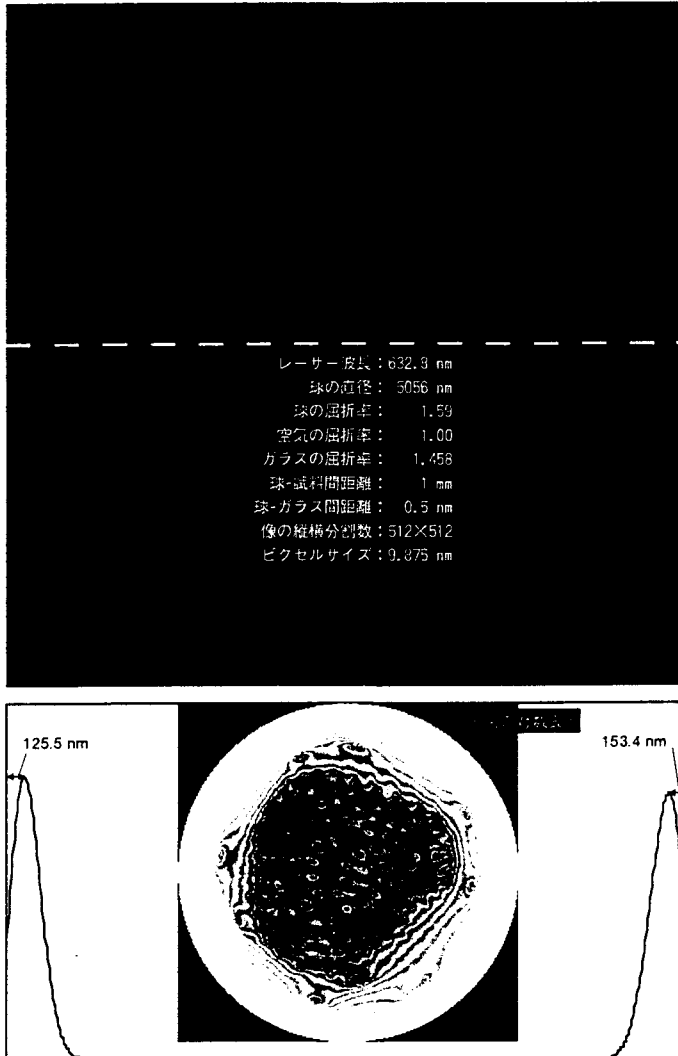
標準試料は、①清浄なSiウェーハ(2cm角)に銀を100nm程度蒸着し、②その上にエチルアルコール中に分散させた直径100nmのアクリル球を均等に散布し、エチルアルコールの蒸発後、③形成したいステップの厚さだけさらに銀を蒸着し、④アクリル球を除去して作製した。この結果、直径100nmの円筒形の窪みを持つ銀の蒸着薄膜が得られた。③での蒸着量の制御により、窪みの深さを20, 10, 5, 2, 1 nmの5種類とする標準試料を作製した。これらの試料を、検出光強度が一定になるようにFeedback制御を行って走査した結果が図IV.3.4である。図IV.3.4

(a)は深さ20nmの標準試料、図IV.3.4 (b)は深さ5nmの標準試料の測定結果であり、測定範囲は200nm×200nm、測定点は51点×51点である。両データともそれぞれ測定に20分を要



図IV.3.5 微小共振球プローブの概念図

した。5種類の標準試料の測定結果より、本装置では深さ2nmの窪みまで測定できており、縦分解能は2nm以下が達成できている。また、窪みの縁の断面形状から評価して横分解能10nm以下が達成できている。さらに、銀蒸着面にあたる部分の凹凸が実際の表面粗さを



図IV.3.6 微小球内部の電場強度分布

示しているならば、縦および横分解能はnm以下に達している可能性がある。

#### 4.4 微小球プローブの今後

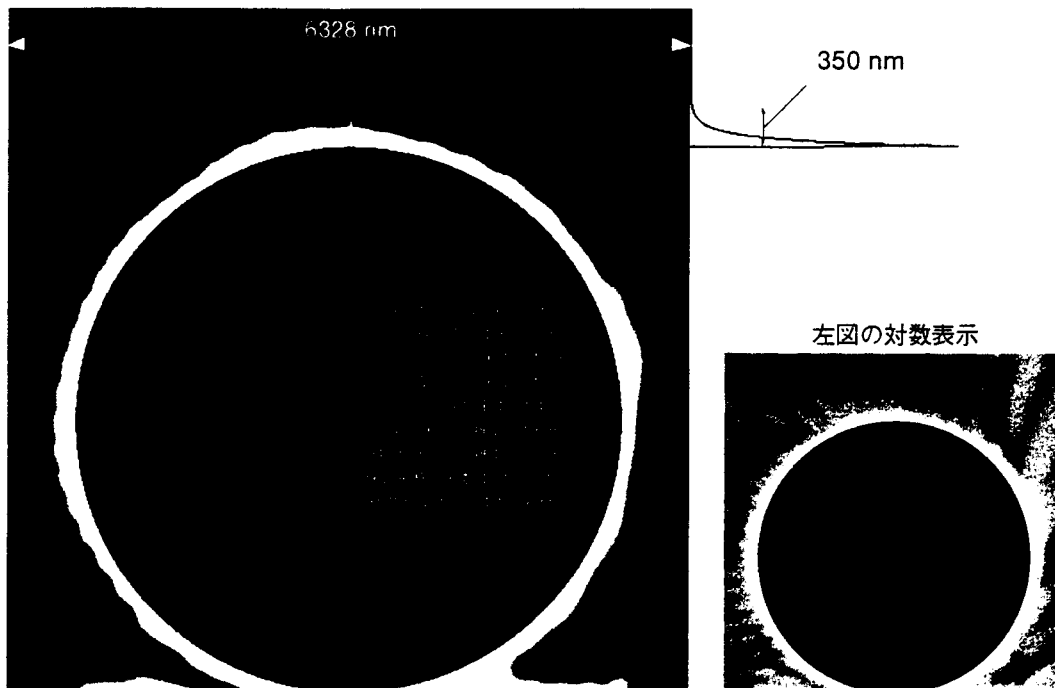
プローブ球の直径に比べて10nm以下という高い空間分解能が得られた理由は、図IV.3.1に示したようにPL球表面に無数の微細な凹凸があり、その1つが真のプローブとして働いたためと考えている。実際、高い空間分解能が得られるかどうかは、プローブとしてのPL球の状態に左右された。多くの場合、図IV.3.3に示したように近接場領域での検出光の増加は観測されたが、標準試料の窪みが観察できるほどの空間分解能は得られなかった。PL球の交換により図IV.3.4のような測定結果が得られる確率は5%程度である。そこで、再現性のあるプローブの作製を目指して、次に説明する「共振球プローブ」(図IV.3.5)を提案する。

## 5. プローブ周りの電磁場の計算機シミュレーション

### 5.1 はじめに

誘電体微小球をレーザー光で照射すると、その光は微小球内面を回転しながら伝搬し、一周して位相がそろったとき共振が起こる。この共振は、whispering gallery resonance (or mode)と呼ばれ、良く知られた現象である。これを利用して微小球周りに高強度のエヴァネッセント波を発生させ、図IV.3.5に示すようにその一部に微小突起を付着させてプローブとする。共振球としての微小球は小さいほど良いが、共振のQ値を大きくすること、光学顕微鏡下で操作できることを考慮した場合、数 $\mu\text{m}$ 程度の誘電体球が適当である。この球は透明基板上に固定され、基板からのエヴァネッセント光で照明される。この場合、球全体が一樣に照明されている場合とは異なる可能性があるため、微小球周りの電磁界解析を境界要素法および時間領域差分法により試みた。

### 5.2 2次元境界要素法によるプローブ周りの電磁場シミュレーション



図IV.3.7 微小球外部の電場強度分布

#### 5.2.1 計算条件

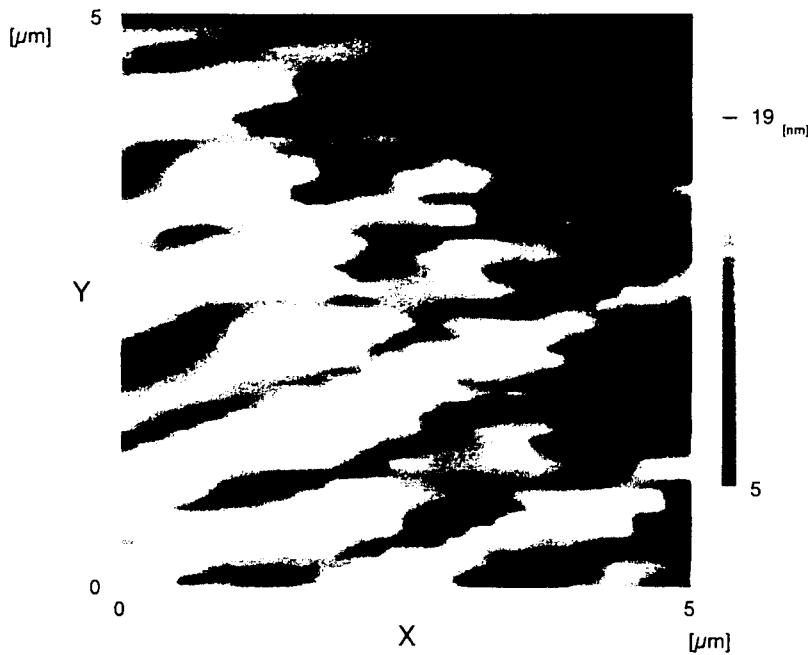
解析は2次元境界要素法で行い[5][6]、円柱状のプロープが平面基板の下に固定され、基板内面からS偏光（電場は円柱の軸に平行）で照明する場合を想定した。計算パラメータとして、He-Neレーザーの波長=632.8nm、石英基板の屈折率=1.458、ポリスチレン円柱の屈折率=1.59、空気の屈折率=1.0を用いた。

#### 5.2.2 計算結果

円柱直下の電場強度は、共振が起きた場合、円柱（球）の直径と光の入射角とをパラメータとして極大値をとる。図IV.3.6、図IV.3.7はプロープ直径が5056nmで入射角 $64^\circ$ の場合の計算結果であり、プロープ内部および外部の電場強度分布を示している。図IV.3.6では、プロープ内面に沿って電場強度の強い部分が一様に存在し、プロープ表面から100nm程度内部に入ったところで極大値（～入射電場強度の20倍）を持っている。また、プロープと空気との境界においても、入射電場強度の10倍程度の電場が存在している。図IV.3.7は、プロープ外部の電場強度分布を示し、プロープ表面から100nm程度で電場は急激に減衰している。この計算では、ポインティングベクトルが図IV.3.5に描いた右回りの矢印のように、円周に沿って回転していることも明らかとなった。

#### 5.2.3 考察

以上の計算結果から、基板に取り付けられた微小球もその直径に応じて共振し、その表面に強い電場が形成されることが分かった。従って、これらの共振球の先端にさらに微小な突起をつけ、これをプロープとすれば、図IV.3.7に示した強い電場を局所的に集中させることができ、SNOMにおける空間分解能を上げることが出来ると考えられる。その場合、検出光のS/N比を良くするためには、共振球からの散乱光を抑え、微小突起のみからの散乱光を検出する必



図IV.3.8 微小球プローブにより観察した回折格子表面のSNOM像

要がある。さらに、2.3節の結果もふまえて、微小突起の大きさ、材質にも注意を払う必要がある。我々は以上のような「共振球候補として直径 $5\mu\text{m}$ のPL球、共振球表面に設ける微小突起の候補として、図IV.3.3の結果を考慮し、屈折率の大きな $\text{TiO}_2$ 粉末（平均直径 $30\text{nm}$ ）に着目し、現在研究を進めている。

図IV.3.8は、回折格子の表面を図IV.3.5の微小

球プローブで走査した結果である。走査の際には、微小球と試料とが接近する部分からの散乱光のみを検出した。ピッチ $0.7\mu\text{m}$ の回折格子の表面が観察できている。

### 5.3 2次元FDTD法によるプローブ周りの電磁場シミュレーション

市販の電磁波解析ソフトウェアPLANC-FDTD2D（以下FDTD2Dと略記）を用いて、共振球プローブ周辺の電磁界解析を行なった[4]。FDTD2Dは、2次元任意形状の導体・誘電体・磁性体の電磁波散乱特性を、FDTD法（Finite Difference Time Domain法、時間領域差分法）[7]～[9][12][13]を用いて解析する。具体的には、MAXWELLの方程式を、Yee格子[7]により空間的、時間的に離散化し、その離散化した式を時間的に逐次計算して電磁界の時間変化を求める[8][9]。本計算法は差分法なので、2次元の直交メッシュをXY各方向に均一に割り振って計算した。このメッシュの分割サイズは、計算精度・計算の安定性を保証するために、電磁波の1波長の $1/10$ 以下のサイズに設定する必要がある。計算する物体の初期設定は、誘電体（ガラスなど）の場合、比誘電率と導電率を設定する。ただし、等方的・線形とし、周波数分散はないものとした。解析領域から出て行く電磁波については、無反射境界条件として一般的なMurの1次境界条件を使用した[10]。波源の時間波形は正弦波とし、解析領域全体が収束する（時間変化が小さくなる）まで計算を続けた。電磁波の入射形態は、実験条件に近づける意味で平面波入射とした。この平面波の偏波方向はTM波（S偏光）またはTE波（P偏光）とした。

#### 5.3.1 計算条件

有限の大きさの散乱体以外に、 $Y>0$ 空間が媒質1( $\epsilon_1, \sigma=0, \mu_1$ )、 $Y<0$ 空間が媒質2( $\epsilon_2, \sigma=0, \mu_2$ )で満たされているものとする。これに上方( $Y>0$ )から平面波が入射するものとする。

MAXWELL方程式は誘電率 $\epsilon$ 、透磁率 $\mu$ 、導電率 $\sigma$ 、導磁率 $\sigma^*$ とおくと次式となる。



$$\varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = +\nabla \times \mathbf{H} - \sigma \mathbf{E} \quad (1)$$

$$\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} = -\nabla \times \mathbf{E} - \sigma' \mathbf{H} \quad (2)$$

ここで、電磁界を $Y>0$ では入射波と反射波と散乱波に、 $Y<0$ では透過波と散乱波に分解する。

[11]

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^i + \mathbf{E}^r + \mathbf{E}^s \quad (y > 0) \quad (3)$$

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^t + \mathbf{E}^s \quad (y < 0) \quad (4)$$

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}^i + \mathbf{H}^r + \mathbf{H}^s \quad (y > 0) \quad (5)$$

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}^t + \mathbf{H}^s \quad (y < 0) \quad (6)$$

入射波、反射波、透過波は既知量であり、次式を満たす。

$$\varepsilon_1 \frac{\partial \mathbf{E}^i}{\partial t} = \nabla \times \mathbf{H}^i \quad (y > 0) \quad (7)$$

$$\varepsilon_1 \frac{\partial \mathbf{E}^r}{\partial t} = \nabla \times \mathbf{H}^r \quad (y > 0) \quad (8)$$

$$\varepsilon_2 \frac{\partial \mathbf{E}^t}{\partial t} = \nabla \times \mathbf{H}^t \quad (y < 0) \quad (9)$$

$$\mu_1 \frac{\partial \mathbf{H}^i}{\partial t} = -\nabla \times \mathbf{E}^i \quad (y > 0) \quad (10)$$

$$\mu_1 \frac{\partial \mathbf{H}^r}{\partial t} = -\nabla \times \mathbf{E}^r \quad (y > 0) \quad (11)$$

$$\mu_2 \frac{\partial \mathbf{H}^t}{\partial t} = -\nabla \times \mathbf{E}^t \quad (y < 0) \quad (12)$$

式(3)-(12)を式(1)(2)に代入すると、散乱波に関する基本式が得られる。

$$\varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}^s}{\partial t} = -\sigma \mathbf{E}^s - \sigma(\mathbf{E}^i + \mathbf{E}^r) - (\varepsilon - \varepsilon_1) \left( \frac{\partial \mathbf{E}^i}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{E}^r}{\partial t} \right) + \nabla \times \mathbf{H}^s \quad (y > 0) \quad (13)$$

$$\varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}^s}{\partial t} = -\sigma \mathbf{E}^s - \sigma \mathbf{E}^t - (\varepsilon - \varepsilon_2) \frac{\partial \mathbf{E}^t}{\partial t} + \nabla \times \mathbf{H}^s \quad (y < 0) \quad (14)$$

$$\mu \frac{\partial \mathbf{H}^s}{\partial t} = -\sigma' \mathbf{H}^s - \sigma'(\mathbf{H}^i + \mathbf{H}^r) - (\mu - \mu_1) \left( \frac{\partial \mathbf{H}^i}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{H}^r}{\partial t} \right) - \nabla \times \mathbf{E}^s \quad (y > 0) \quad (15)$$

$$\mu \frac{\partial \mathbf{H}^s}{\partial t} = -\sigma' \mathbf{H}^s - \sigma' \mathbf{H}^t - (\mu - \mu_2) \frac{\partial \mathbf{H}^t}{\partial t} - \nabla \times \mathbf{E}^s \quad (y < 0) \quad (16)$$

完全導体の内部では、全電磁界が0であることから、式(3)-(6)より散乱波が計算される。

TM波のときの入射波と透過波は次式で与えられる。

$$\mathbf{E}^i = \hat{z} E_0 \exp[jk_1(x \sin \theta' + y \cos \theta')] \quad (17)$$

$$\mathbf{H}^i = (-\hat{x} \cos \theta' + \hat{y} \sin \theta') \frac{E_0}{\eta_1} \exp[jk_1(x \sin \theta' + y \cos \theta')] \quad (18)$$

$$\mathbf{E}^r = \hat{z}R_{TM}E_0 \exp[jk_1(x \sin \theta^i - y \cos \theta^i)] \quad (19)$$

$$\mathbf{H}^r = (\hat{x} \cos \theta^i + \hat{y} \sin \theta^i)R_{TM} \frac{E_0}{\eta_1} \exp[jk_1(x \sin \theta^i - y \cos \theta^i)] \quad (20)$$

$$\mathbf{E}^t = \hat{z}T_{TM}E_0 \exp[jk_2(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (21)$$

$$\mathbf{H}^t = (-\hat{x} \cos \theta^t + \hat{y} \sin \theta^t)T_{TM} \frac{E_0}{\eta_2} \exp[jk_2(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (22)$$

ここで、

$$\theta^t = \frac{\pi}{2} - \phi^t \quad (23)$$

$$\eta_1 = \sqrt{\frac{\mu_1}{\epsilon_1}} \quad (24)$$

$$\eta_2 = \sqrt{\frac{\mu_2}{\epsilon_2}} \quad (25)$$

$$\sqrt{\epsilon_1 \mu_1} \sin \theta^i = \sqrt{\epsilon_2 \mu_2} \sin \theta^t \quad (\text{Snell's Law}) \quad (26)$$

および

$$R_{TM} = \frac{\eta_2 \cos \theta^t - \eta_1 \cos \theta^i}{\eta_2 \cos \theta^t + \eta_1 \cos \theta^i} \quad (27)$$

$$T_{TM} = 1 + R_{TM} \quad (28)$$

である。

TE波のときの入射波と透過波は次式で与えられる。

$$\mathbf{H}^t = \hat{z}H_0 \exp[jk_1(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (29)$$

$$\mathbf{E}^t = (\hat{x} \cos \theta^t - \hat{y} \sin \theta^t)\eta_1 H_0 \exp[jk_1(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (30)$$

$$\mathbf{H}^r = -\hat{z}R_{TE}H_0 \exp[jk_1(x \sin \theta^i - y \cos \theta^i)] \quad (31)$$

$$\mathbf{E}^r = (\hat{x} \cos \theta^i + \hat{y} \sin \theta^i)R_{TE} \eta_1 H_0 \exp[jk_1(x \sin \theta^i - y \cos \theta^i)] \quad (32)$$

$$\mathbf{H}^t = \hat{z}T_{TE} \frac{\eta_1}{\eta_2} H_0 \exp[jk_2(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (33)$$

$$\mathbf{E}^t = (\hat{x} \cos \theta^t - \hat{y} \sin \theta^t)T_{TE} \eta_1 H_0 \exp[jk_2(x \sin \theta^t + y \cos \theta^t)] \quad (34)$$

ここで、

$$R_{TE} = \frac{\eta_2 \cos \theta^t - \eta_1 \cos \theta^i}{\eta_2 \cos \theta^t + \eta_1 \cos \theta^i} \quad (35)$$

$$T_{TE} = (1 + R_{TE}) \frac{\cos \theta^i}{\cos \theta^t} \quad (36)$$

である。

次に、境界条件であるが、本計算では自由空間の無反射境界条件にMurの1次吸収境界条件を用いた[10]。X=X<sub>0</sub>境界面で-X方向に進む波の波動方程式 (one way wave equation) は以下のようになる。

$$\frac{\partial E_z}{\partial x} - \frac{1}{c} \frac{\partial E_z}{\partial t} = 0 \quad (37)$$

式(37)のそれぞれの項をt=nΔt, i=1/2で離散化すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_z}{\partial x} &= \frac{1}{\Delta x_{1/2}} \{E_z^n(1, j) - E_z^n(0, j)\} \\ &= \frac{1}{\Delta x_{1/2}} \left\{ \frac{E_z^{n+1/2}(1, j) + E_z^{n-1/2}(1, j)}{2} - \frac{E_z^{n+1/2}(0, j) + E_z^{n-1/2}(0, j)}{2} \right\} \end{aligned} \quad (38)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_z}{\partial t} &= \frac{1}{\Delta t} \{E_z^{n+1/2}(1/2, j) - E_z^{n-1/2}(1/2, j)\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \left\{ \frac{E_z^{n+1/2}(0, j) + E_z^{n+1/2}(1, j)}{2} - \frac{E_z^{n-1/2}(0, j) + E_z^{n-1/2}(1, j)}{2} \right\} \end{aligned} \quad (39)$$

となり、式(38)(39)を式(37)に代入して次式を得る。

$$E_z^{n+1/2}(0, j) = E_z^{n-1/2}(1, j) + \frac{c\Delta t - \Delta x_{1/2}}{c\Delta t + \Delta x_{1/2}} \{E_z^{n+1/2}(1, j) - E_z^{n-1/2}(0, j)\} \quad (40)$$

その他の境界面についても同様である。境界面に完全導体が接している場合は、式(4-4)のかわりに式(3-11)を用いる。またTE波の場合は、E<sub>z</sub>をH<sub>z</sub>で置き換える。

以上の方法で計算を進めた場合の、計算の安定条件と収束判定条件 (=計算終了時の状態) について述べる。

離散化した差分方程式の計算が発散せずに安定に行われるためには、時間巾について以下のCourant条件が必要である[8][9]。

$$\Delta t \leq \frac{1}{c \sqrt{\frac{1}{\min_i \Delta x_i^2} + \frac{1}{\min_j \Delta y_j^2}}} \quad (41)$$

そして、計算の収束判定条件は正弦波入射の場合は以下のようにした。まず、解析空間での電磁界の平均値を次式で定義する。

$$P^n = \left[ \frac{1}{S} \int_S E^{n-1/2} H^n dS \right]^{1/2} \quad (42)$$

次に、1周期前の値との相対誤差を次式で定義する。

$$\Delta P^n = \left| \frac{P^n - P^{n-N}}{P^n} \right| \quad \left( N = \frac{1}{f\Delta t} \right) \quad (43)$$

この相対誤差の過去1周期分の平均がある値以下になったとき収束したとみなす。すなわち、

$$\varepsilon^n = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \Delta P^{n-i} < \varepsilon \quad (44)$$

次節で示す計算結果の表示データの作成法について述べる。時刻 $t_0$ で収束したと判定されたのち、1周期分の電磁界を計算し、次式によって電磁界の複素数表示(Phasor)を計算する。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{2}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{-j\omega t} dt \quad (45)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = \frac{2}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) e^{-j\omega t} dt \quad (46)$$

式(38)(39)の証明は以下の通りに記述できる。すなわち、電界の複素数表示を $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ とすると

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left\{ \mathbf{E}(\mathbf{r}) e^{j\omega t} \right\}$$

であるから、

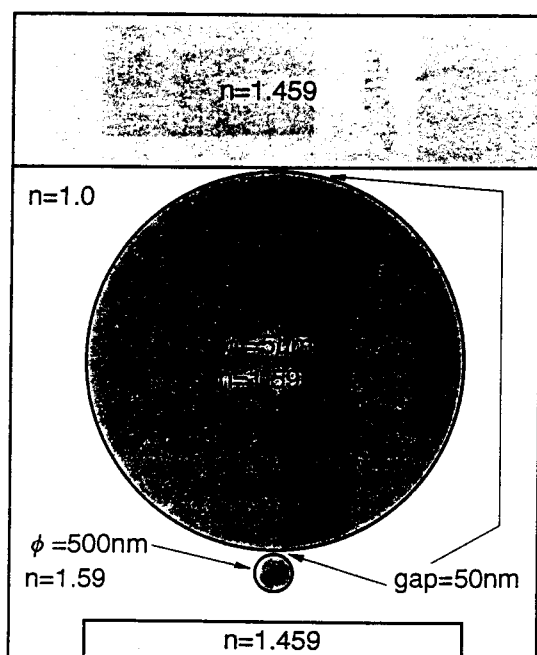
$$\begin{aligned} \frac{2}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{-j\omega t} dt &= \frac{2}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \text{Re} \left\{ \mathbf{E}(\mathbf{r}) e^{j\omega t} \right\} e^{-j\omega t} dt \\ &= \frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \left\{ \mathbf{E}(\mathbf{r}) e^{j\omega t} + \mathbf{E}^*(\mathbf{r}) e^{-j\omega t} \right\} e^{-j\omega t} dt \\ &= \mathbf{E}(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (47)$$

となる。

### 5.3.2 計算結果

図IV.3.5に示す共振球プローブでは、プローブ内の光共振の制御は、基板内面で全反射させるレーザー光の照射条件(強度、波長、偏光、反射角)により行なうことになる。そして、単にプローブ内に光共振を起こすだけでなく、球の内表面での全反射により球の外表面に染み出すであろう近接場の状態にも注意する必要がある。もしも、染み出す近接場が厚すぎた場合、球直下に設けた極微小突起(～数十nmの大きさ)は近接場内に埋もれてしまい、高空間分解能での試料走査が難しくなると予想される。以下に示す一連のFDTDシミュレーション結果においては、共通の計算条件(図IV.3.9)として、レーザー波長～632.8nm、ガラス基板の屈折率 $n=1.459$ 、ガラス微小球の直径 $=5\mu\text{m}$ 、屈折率 $=1.59$ 、基板と微小球との間のギャップ $=50\text{nm}$ 、計算領域を分割する1セルの大きさ $=40\text{nm} \times 40\text{nm} \times 40\text{nm}$ 、レーザー光の形態=平面波を用いている。1セルの大きさは、計算結果の妥当性が最低限保証される条件として知られている「セルサイズ $< \lambda/10$ 」に基づき、ガラス内の波長の1/10程度に設定した。

本来ならば、上記の条件で計算すべきであるが、本プログラムはMKS単位系の単精度計算を実施しており、実条件での計算は桁落ち、オーバーフローといった問題を生じてしまう。このため、マクスウェル方程式を満足するスケール即ち従って、計算する物理量のスケールを $10^6$ だけ変化させた。すなわち、すべての「長さ」については $10^6$ 倍し、周波数は $10^{-6}$ 倍している。誘電率 $=$ 屈折率 $^2$ はそのまま用いた。従って、図IV.3.10以降の計算結果については、 $\text{mm} \rightarrow \mu\text{m}$ 、 $\text{MHz} \rightarrow \text{THz}$ と読み替えていただくと、実際の実験条件に対応する。導電率は $10^{-6}$ 倍すべき



図IV.3.9 FDTD2Dシミュレーションにおける計算条件の共通パラメータ

であるが、今回の計算ではガラス=誘電体を用いているため、導電率は0としている。比透磁率は1、導磁率は0という条件も、すべての計算において共通である。計算の収束判定条件である式(37)左辺の $\epsilon$ には0.002を用い、計算を十分収束させている。

図IV.3.10は、レーザー光が水平から20度の角度で、ガラス基板内で全反射する条件とし、レーザー波長を変化させた際の、微小球内の電磁場の定常状態における電界強度の絶対値を入射面における空間分布として表示している。入射レーザー光の偏光はS偏光であり、入射強度は1 [V/m]である。(a)→(d)と光波長を徐々に短くしたところ、(d)において共振状態が観測できている。また、球上部のガラス基板内には入射波と反射波とによる定在波干渉パターンが見えており、計算の正し

さを示している。球表面に近接場が150nm程度の厚みで発生していることも分かる。共振時は、基板内の定在波分布にも乱れが生じている点が興味深い。

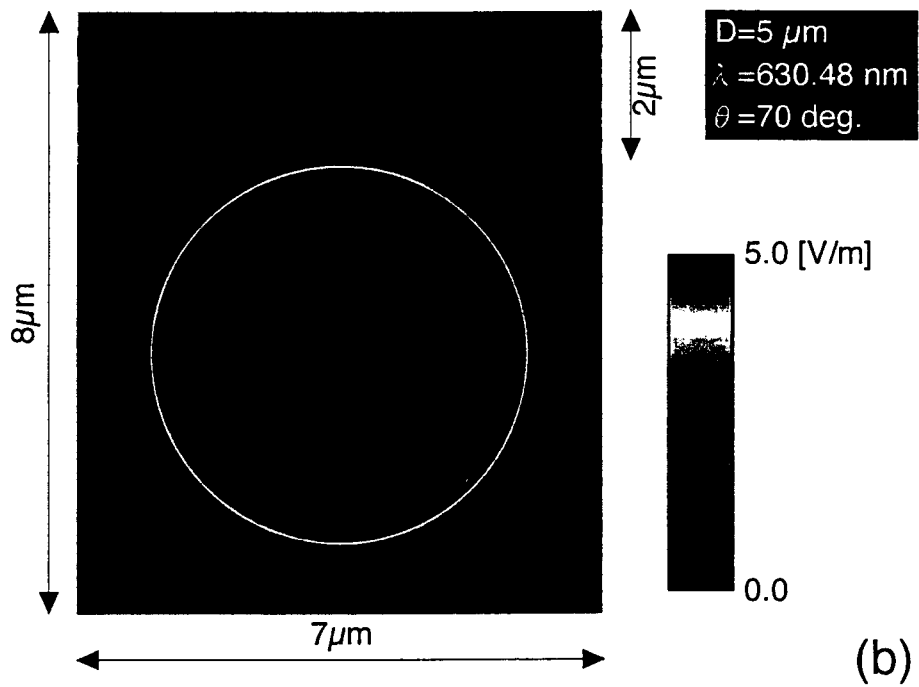
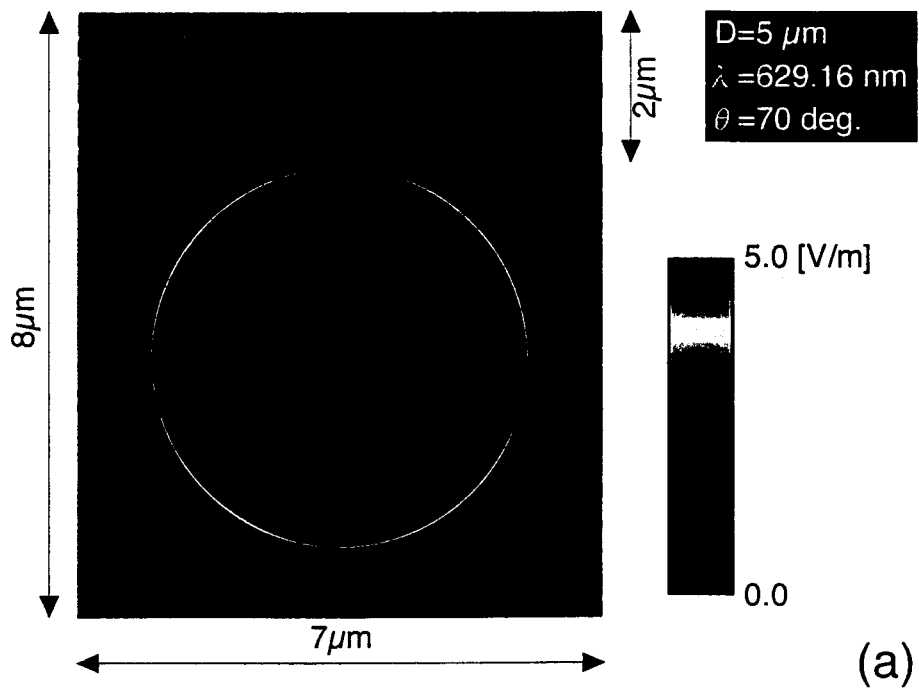
図IV.3.11は、レーザー光波長を図IV.3.10(d)の値に固定し、レーザー入射角を変化させた結果である。(a)→(d)と水平からの角度を徐々に浅くしている。(a)では角度がきつすぎるため、基板表面に発生する近接場が厚すぎて球との結合モードが多数現われるためか、球内の電磁場の分布は不均一で、共振状態に至らない。しかし、(b)では共振状態が達成されつつあり、(c)で球内の電界強度は最大値に達した。さらに角度を浅くした(d)では、電界強度がやや下がってしまった。注目すべきは、(a)のように角度のきつい全反射条件では、共振球内を回る電磁場が乱れ、試料を設置する球の下部に向かって放射しているように見えている点にある。この条件では、試料の広範囲が照明され、横空間分解能の低下が予想される。

図IV.3.12は、図IV.3.10同様レーザー入射角が20度の条件で、レーザーの偏光状態をP偏光に変え、共振点を探した結果を示している。図IV.3.10(d)とは異なり、光波長636.37nmに共振点が見つかった。球内の電界強度はS偏光に比べて低く、電界強度最大の位置が、S偏光に比べて球表面から内側に入っていることが分かる。

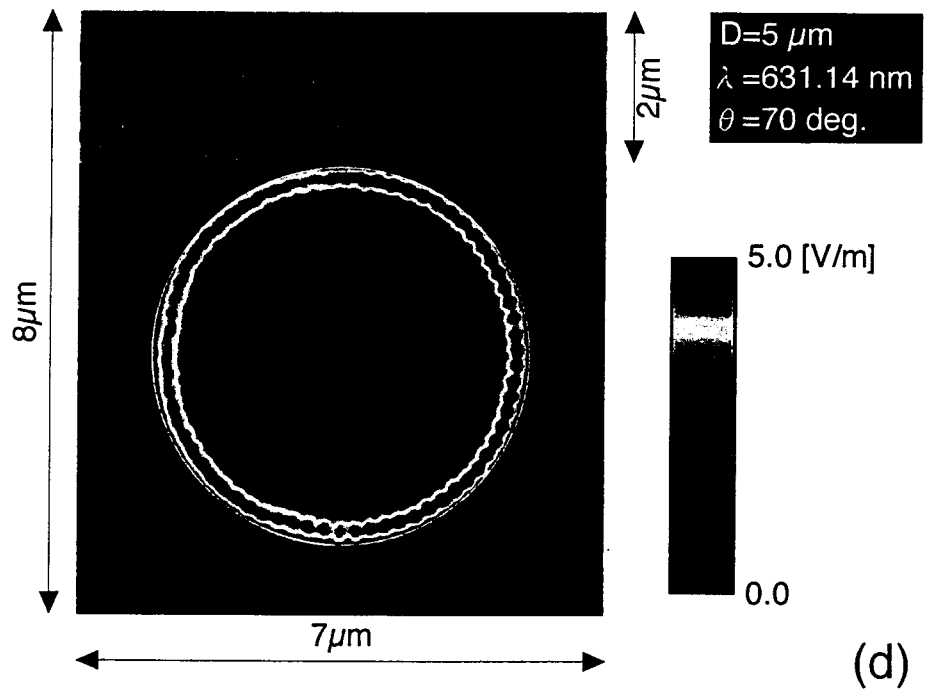
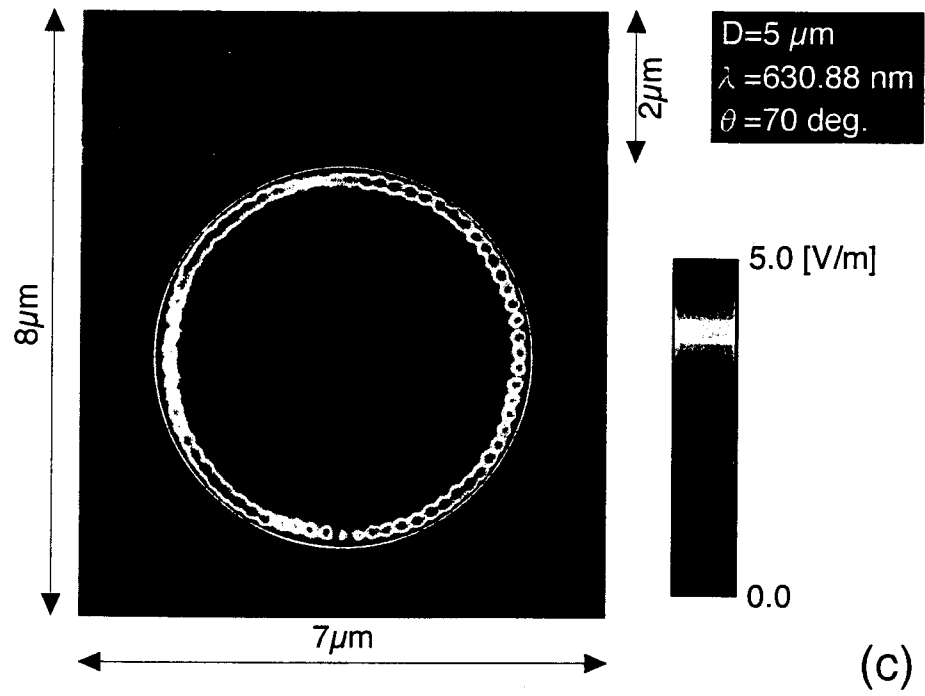
図IV.3.13は、図IV.3.12からレーザー入射角を5度に変えた結果である。S偏光と同様、角度が浅すぎるのか、球内の電界強度の最大値は下がった。

S偏光では、角度を20→5度と変化させると、電界の最大値が5.327→4.840と9%の減少が見られる。しかし、P偏光では2.774→2.685と3%減少したにとどまった。球表面に発生する近接場強度を稼ぐにはS偏光が適当であるが、入射光の角度変化による影響を低く抑えるにはP偏光が良いと思われる。

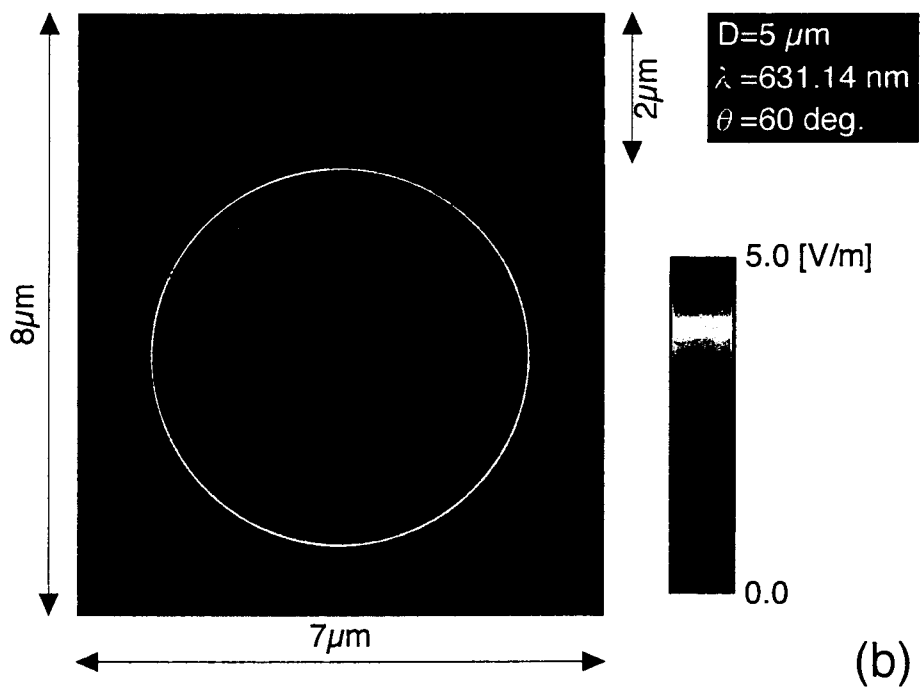
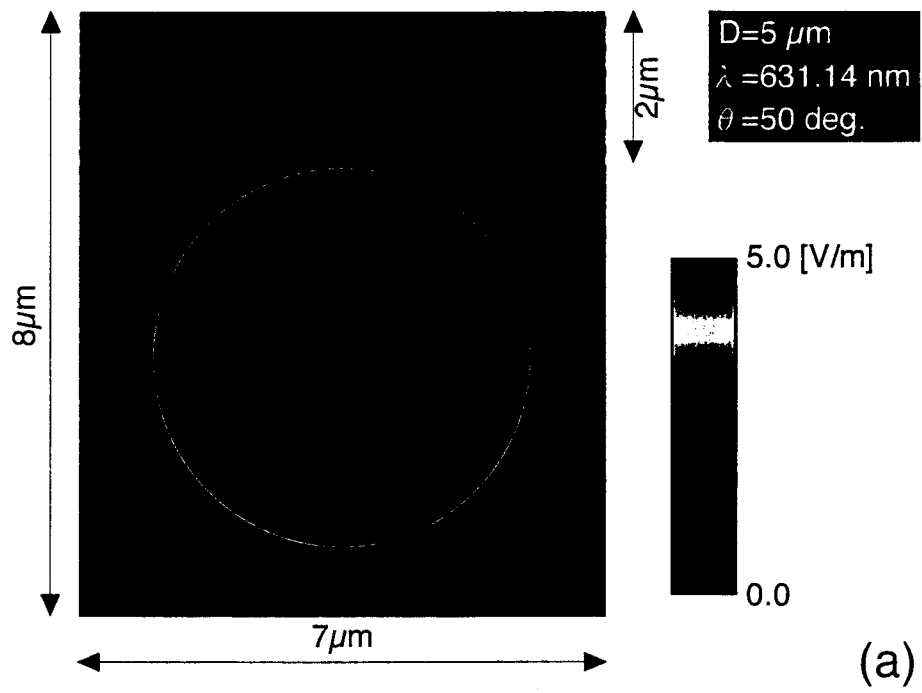
図IV.3.14は、図IV.3.10 (d)の共振状態において、共振球の下面に試料表面(ガラス)を近づけた際の共振状態の変化を示している。(a)→(d)と、試料表面を球表面の近接場領域に達する程度まで近づけると、共振状態は崩され、球内の光波の一部が試料側へ漏れている様子が観察



図IV.3.10 レーザ光波長を変化させた際の微小球内の共振状態の変化 ((a) 光波長で635.83 nm、(b) 光波長で633.14 nm)

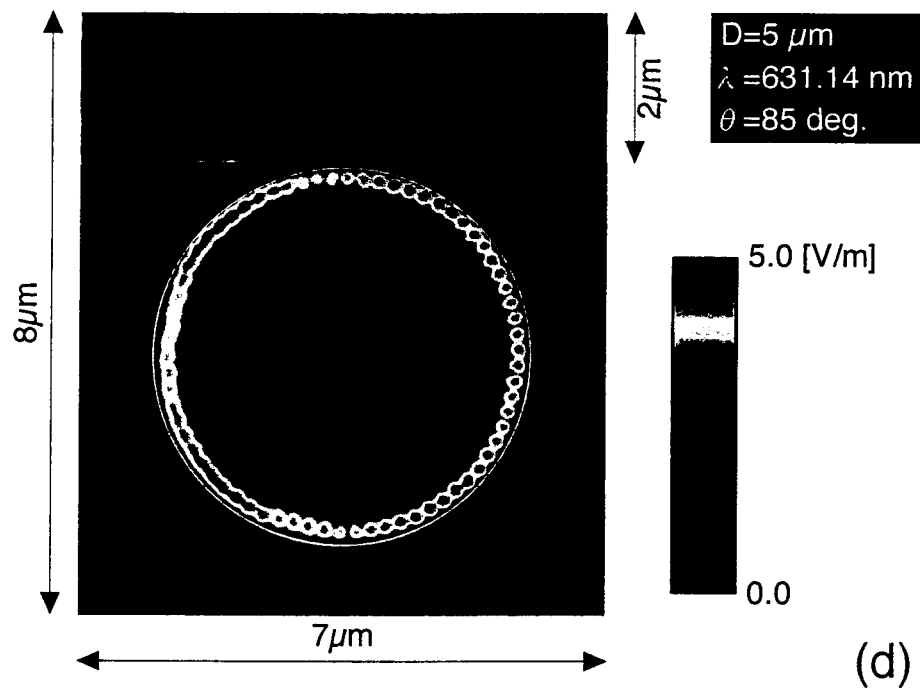
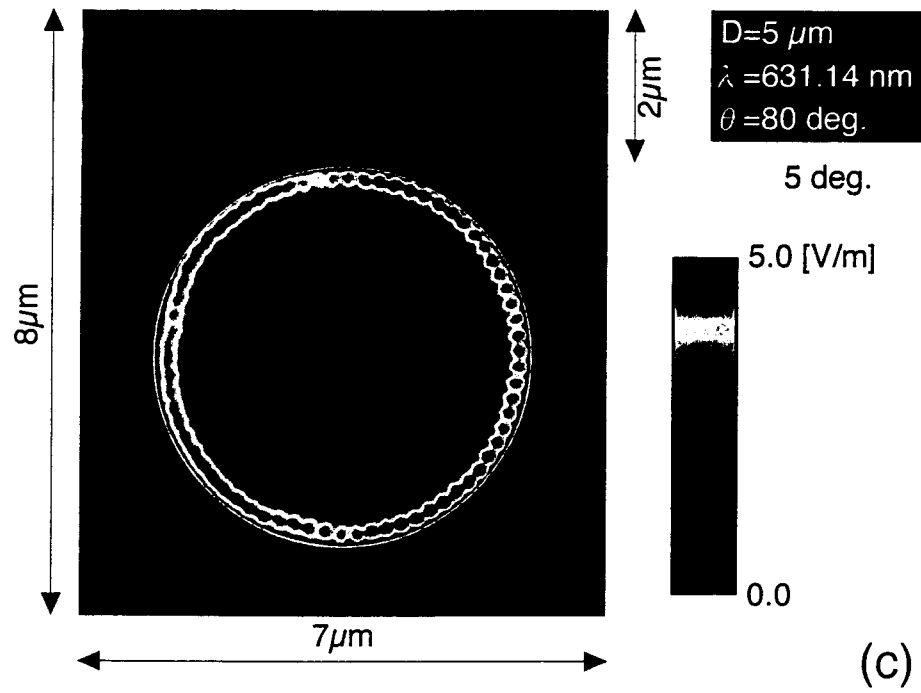


図IV.3.10 レーザー光波長を変化させた際の微小球内の共振状態の変化 ((c) 光波長で631.81 nm、(d) 光波長で631.14 nm)

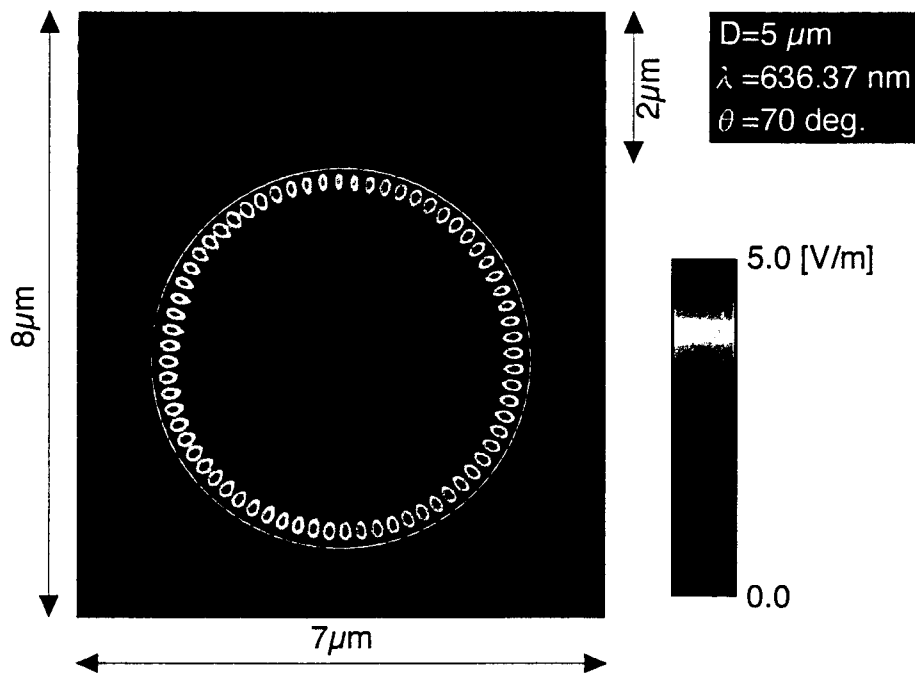


図IV.3.11 レーザー光の入射角を変化させた際の微小球内の共振状態の変化 ((a) 水平から35度、(b) 水平から30度)

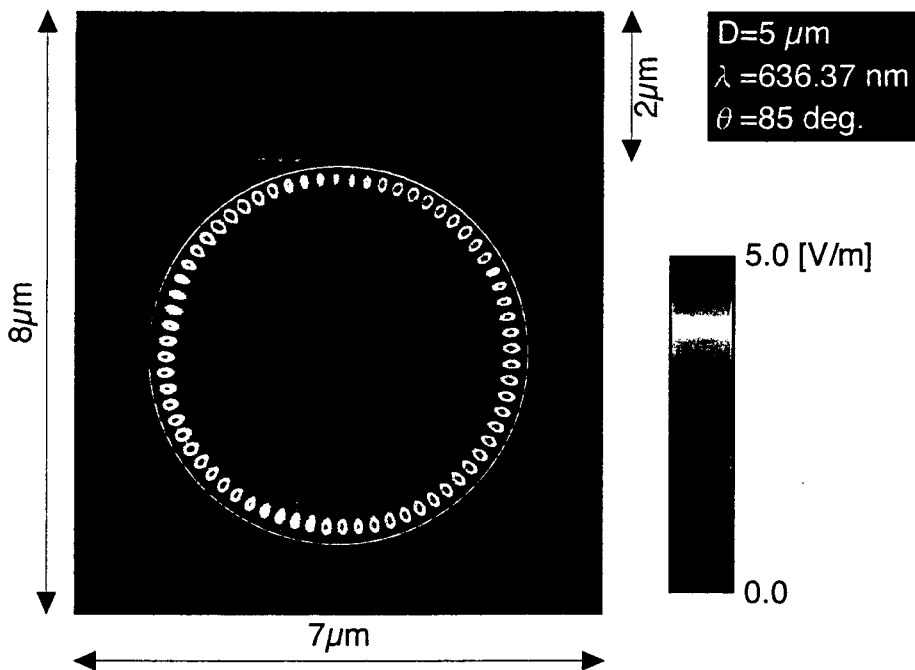




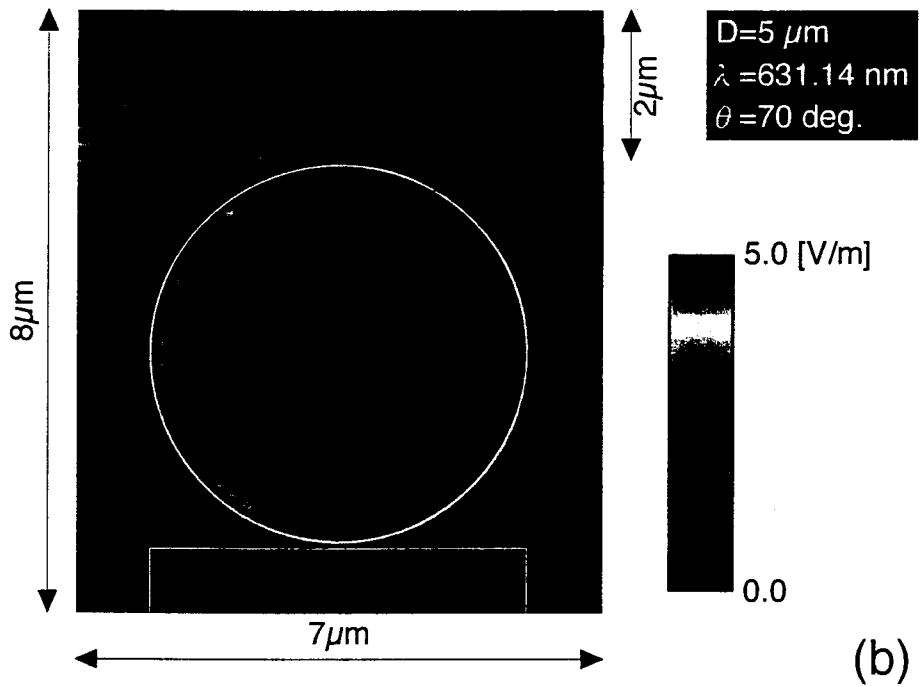
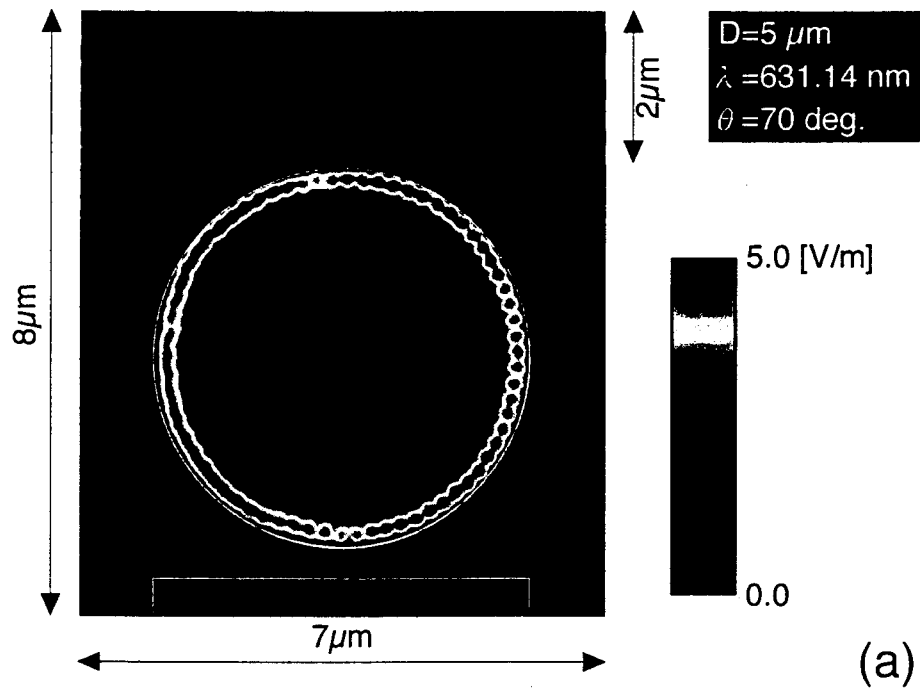
図IV.3.11 レーザー光の入射角を変化させた際の微小球内の共振状態の変化 ((c) 水平から5度、(d) 水平から2度)



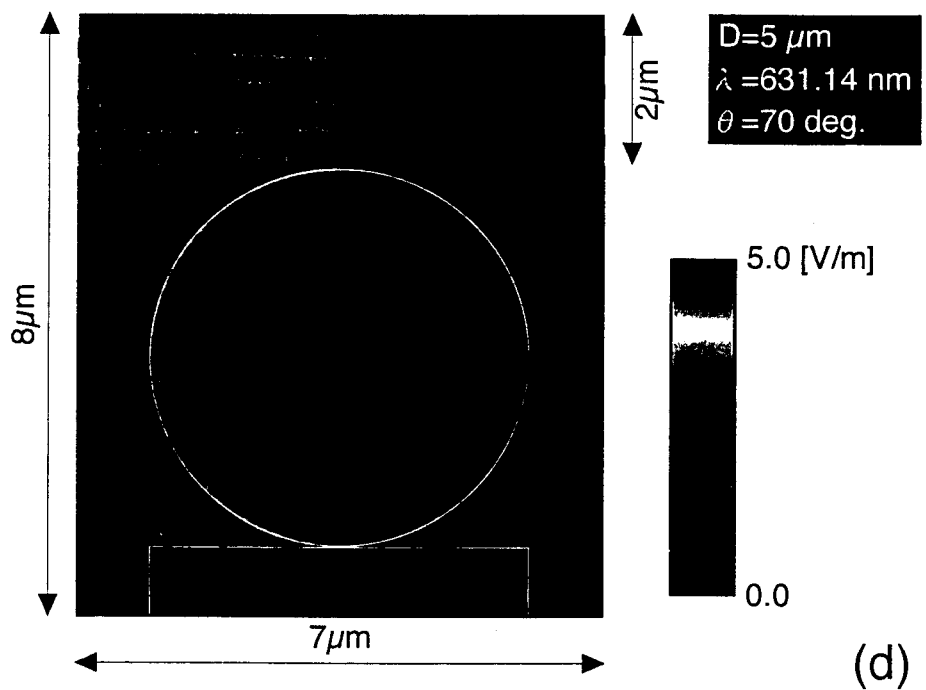
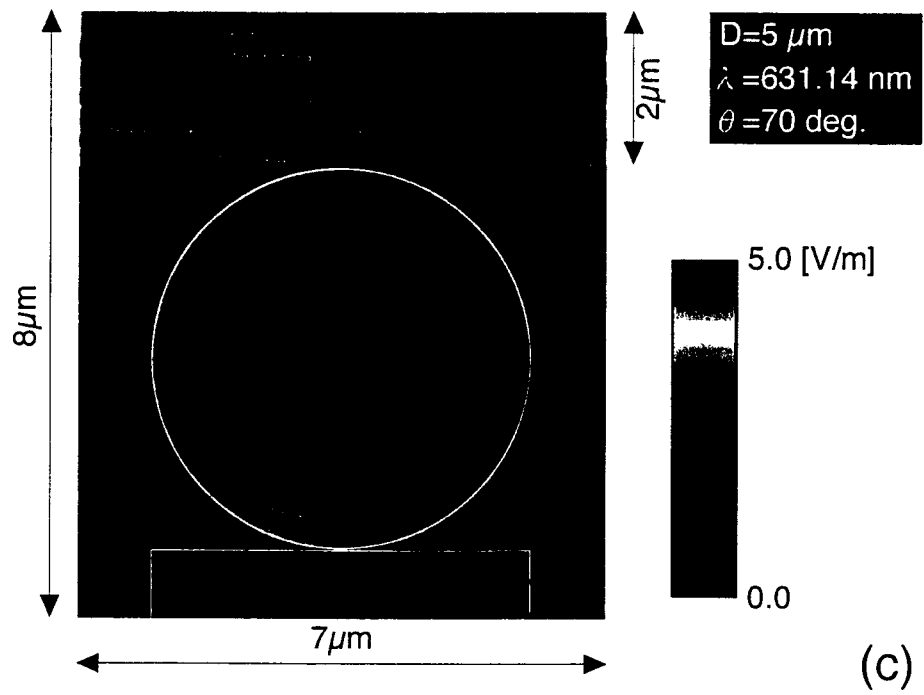
図IV.3.12 図IV.3.10と同じ入射角でレーザー光の偏光をP偏光とした場合、光共振は光波長が636.37 nmにおいて生じた。図IV.3.10(d)とは異なる波長であった。



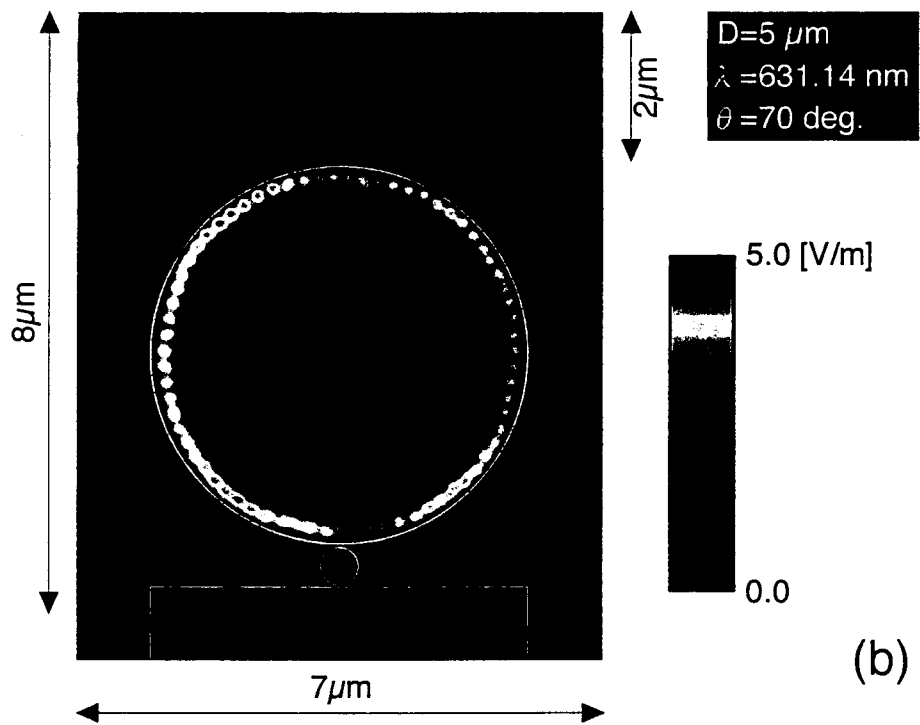
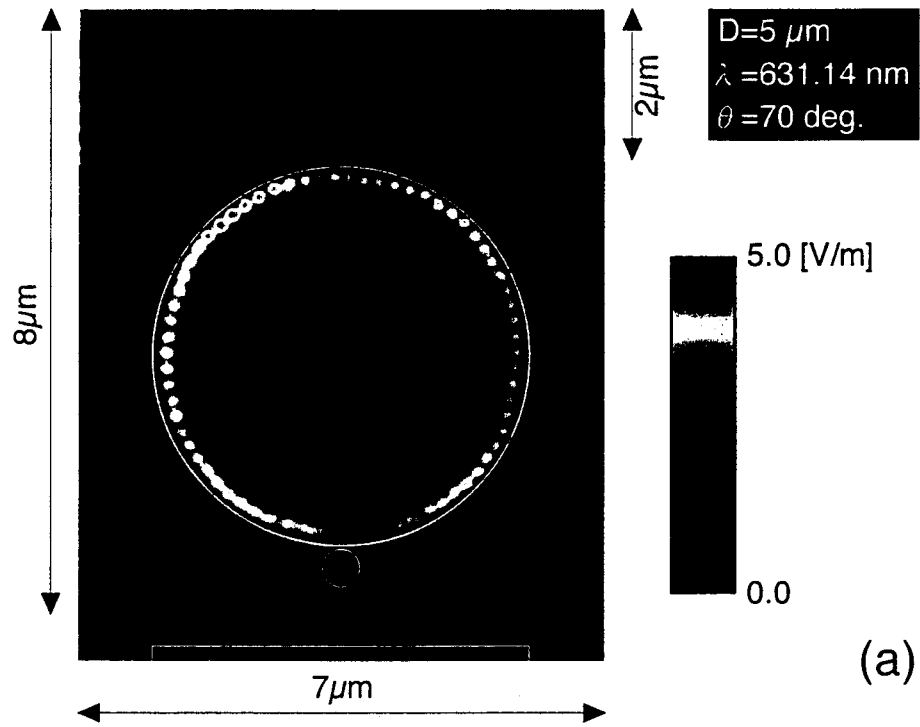
図IV.3.13 図IV.3.12と同じ条件で、入射角のみ5度にしたところ、球内の電場強度が下がった。図IV.3.11と同様、P偏光においても共振状態に最適な入射角が存在することが分かった。



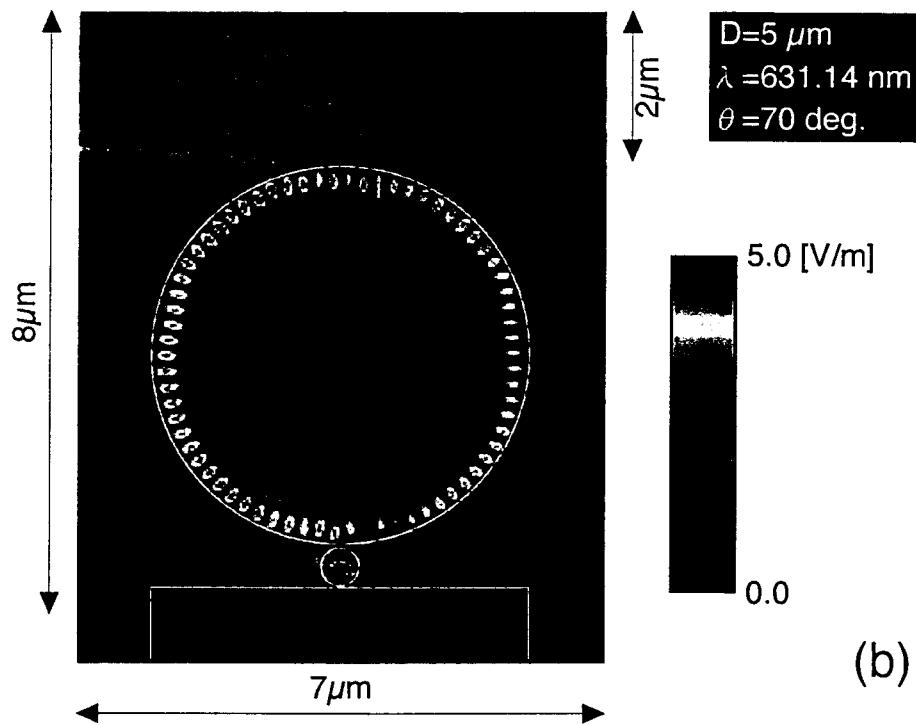
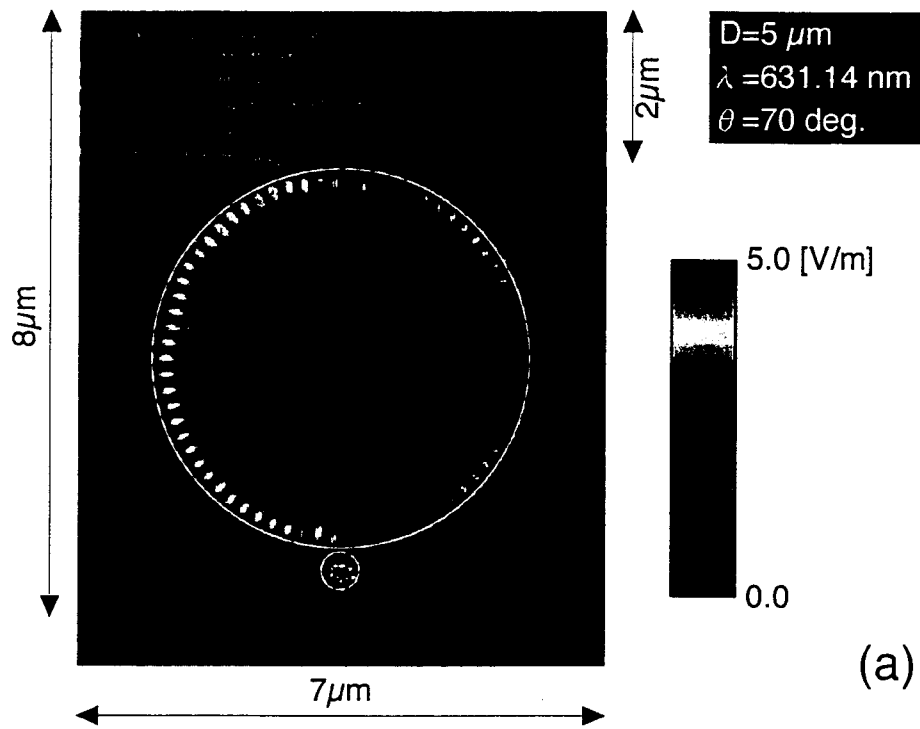
図IV.3.14 図IV.3.10 (d)の共振状態において共振球下面にガラス試料を近づけた際の共振状態の変化 ((a) 球下面と試料表面との距離450nm、(b) 100nm)



図IV.3.14 図IV.3.10 (d)の共振状態において共振球下面にガラス試料を近づけた際の共振状態の変化 ((c) 球下面と試料表面との距離50nm、(d) 30nm)



図IV.3.15 図IV.3.10 (d)において共振球下面に500nm球をつけ、ガラス試料を近づけた際の電場強度分布 ((a) 500nm球下面と試料表面との距離800nm、(b) 30nm)



図IV.3.16 図IV.3.10 (d)において共振球下面に屈折率が5.5の500nm球をつけ、ガラス試料を近づけた際の電場強度分布 ((a) 500nm球下面に試料なし、(b) 球直下30nmに試料表面)

された。(d)状態で、光波長を変化させることで再び共振状態を達成できるかについては現在検討中である。もし、共振状態が再び観察されれば、共振球下面と試料表面との極微小なギャップ変化が共振状態を維持するための光波長の変化として検出でき、高空間分解能化が期待できる。

図IV.3.15は、図IV.3.10(d)の共振球下面に500nm極微小球を付け図IV.3.5のプロープを模擬し、試料（ガラス）を近づけた際の電場強度分布である。500nm球の右に電磁波の漏れが観察でき、図IV.3.5通りの働きを期待させたが、(a)→(b)と試料表面が球表面の近接場領域に達しても、大きな変化は見られない。これは、500nm球の屈折率を共振球と同じに設定したためと考えており、図IV.3.3の結果から500nm球の屈折率を大きくすることで、プローピングに適切な電磁場が形成できると考えている。あるいは、図IV.3.15(a)(b)の状態、レーザー波長を変化させた場合、500nm球周りに電磁場が集中するような特殊なモードが存在し、高空間分解能化への更なるヒントが得られるかもしれない。

図IV.3.16は、図IV.3.10(d)の共振球下面に屈折率が5.5の500nm極微小球を付け図IV.3.5のプロープを模擬し、試料（ガラス）を近づけた際の電場強度分布である。500nm球の周りに電場の局在化が見られ、周囲への放射も少ない。極微小球周囲の電場強度は入射レーザー光の電場強度1.0[V/m]と同等かそれ以上であり、プローピングに十分な光波が局在していると考えられる。(b)では、試料表面の近接に伴い、共振球内部の電場強度が増加しており、図IV.3.14の結果とは正反対の挙動を示した点が興味深い。しかし、屈折率5.5は実現困難であろうと考えられるため、微粒子とし得られる物質について再検討する。または、誘電体ではなく、金属微粒子（金など）についても検討したい。

今後は、より実験条件に近い計算パラメータを用いて、球直下に試料にあたる物質を近づけた計算を行ない、共振球プローブの高空間分解能への可能性をさらに評価して行く。

## 6. まとめ

◇極微小ラテックス粒子をプローブとした走査型近接場光学顕微鏡構築に必要な1.近接場を形成するレーザー照射系、2.プローブ部で発生する散乱光検出系、3.測定試料走査のための三次元的xyz走査系、4.Feedback制御系等、SNOM構築のための要素開発を行った（図IV.3.2）。

◇四角錐基板の先端に直径500nmのPLを設置したプローブ（いわゆる反射型微小球プローブ）を開発し、縦分解能1nm程度、横分解能10nm程度のSNOMを実現できた（図IV.3.1、図IV.3.4）。

◇近接場領域からの散乱光の発生について、試料の屈折率とプローブの屈折率との相関を調べた。両者の屈折率差が大きいほど、発生する散乱光強度およびその距離に依存した増加率が高い（→高い縦分解能が見込める）ことが分かった（図IV.3.3）。

◇新たな高空間分解能を持つプローブ開発のため、境界要素法による2次元電磁場解析を行い、プローブ部周辺の電場解析結果とこれまでの反射型微小球プローブでの実験（光学的な特性評価）をもとに最適なプローブ形状・材質を提案した（図IV.3.5、図IV.3.6、図IV.3.7）。

◇再現性よく構築できる高空間分解能プローブを目指して、微小共振球にTiO<sub>2</sub>粉末を配置したプローブを提案し、プローブ製作法を開発中である(図IV.3.5)。

◇予備実験として、直径5 $\mu$ mの微小球のみをプローブとしてSNOM測定した結果、微小球の大きさよりもより微細な構造を観察できることが確認できた(図IV.3.8)。

◇プローブ周りの電磁場解析を2次元のFDTD法により行なった。レーザー光波長、レーザー光入射角およびレーザー光の偏光状態を制御したシミュレーション結果から、共振球プローブ内の光共振状態をレーザー光の照射条件で制御できる可能性を見いだした(図IV.3.10~図IV.3.13)。

◇2次元FDTD法において、共振球プローブ表面の近接場領域へ観察試料が接近することにより、共振球プローブ内の共振状態が崩されることが分かり、高空間分解能プローブ実現への可能性を見いだした(図IV.3.14)。

◇図IV.3.5を模擬したモデルについて計算し、極微小突起が高空間分解プロービングに適切な電磁場を発生する可能性を見いだした(図IV.3.15)。

◇図IV.3.5を模擬したモデルについて、極微小突起の屈折率を上げた計算を行ない、極微小突起の屈折率が高空間分解プロービングに適切な電磁場の発生と密接な関係があることを見いだした(図IV.3.16)。



## 参考文献

- [1] T. Kataoka, K. Endo, Y. Oshikane, H. Inoue, K. Inagaki, Y. Mori, H. An, O. Kobayakawa, and A. Izumi, "Development of a scanning near-field microscope with a probe consisting of a small spherical protrusion," *Ultramicroscopy*, 63, 219-225 (1996).
- [2] 片岡、押鐘（分担執筆）「近接場ナノフォトニクスハンドブック」（大津、河田編、オプトロニクス社）、1997.
- [3] H. Nakagawa, Y. Oshikane, T. Kataoka, K. Endo, and T. Hirai, "Scanning Near-Field Optical Microscope with a Micro-Cavity Probe," in *Technical Digest of the 5th International Conference on Near Field Optics (Shirahama, 1998)*, pp. 179-180 (1998).
- [4] Y. Oshikane, H. Nakagawa, T. Kataoka, K. Endo, and H. Inoue, "3D-Electromagnetic Field Analysis of a Micro-Cavity Probe for High Resolution SNOM," in *Technical Digest of the 5th International Conference on Near Field Optics (Shirahama, 1998)*, pp. 12-14 (1998).
- [5] 榎園「境界要素解析」培風館、1986.
- [6] 加川「開領域問題のための有限／境界要素法」サイエンス社、1987.
- [7] K.S.Yee, "Numerical solution of initial boundary value problem involving Maxwell's equations in isotropic media", *IEEE Trans. Antennas Propagat.*, AP-14, 3, pp.302-307, 1966.
- [8] K.Kunz and R.J.Luebbers, "Finite Difference Time Domain Method for Electromagnetics", CRC Press Inc., 1993.
- [9] A.Taflove, "Computational Electrodynamics, The Finite-Difference Time-Domain Method", Artech House Inc., 1995.
- [10] G.Mur, "Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time domain electromagnetic-field equations", *IEEE Trans. Electromag. Compat.*, EMC-23, 11, pp.377-382, 1981.
- [11] P.B.Wong, et.al., "A three-wave FDTD approach to surface scattering with applications to remote sensing of geophysical surfaces", *IEEE Trans. Antennas and Propagation*, vol.44, no.4, pp.504-514, 1996.
- [12] 橋本、阿部「FDTD時間領域差分法入門」森北出版、1996.
- [13] 宇野「FDTD法による電磁界およびアンテナ解析」コロナ社、1998.