The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	ニア・フィールド光学顕微鏡の像形成に関する研究
Author(s)	古川, 祐光
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3129034
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

OSAKA UNIVERSITY

ニア・フィールド光学顕微鏡の像形成に関する研究

Imaging Analysis in Near-field Scanning Optical Microscopy

古川祐光
Hiromitsu Furukawa

December, 1996

Department of Applied Physics,
Osaka University

ニア・フィールド光学顕微鏡の像形成に関する研究

Imaging Analysis in Near-field Scanning Optical Microscopy

古川祐光

Hiromitsu Furukawa

ニア・フィールド光学顕微鏡の像形成に関する研究
Imaging Analysis in Near-field Scanning Optical Microscopy

目次

序論 1

第１章　ニア・フィールド光学顕微鏡における像形成の理論 4

１－１　ニア・フィールド光学顕微鏡（ＮＳＯＭ） 4
１－２　エバネッセント場の形成 5
１－３　エバネッセント場の検出方法 7
１－４　ニア・フィールドにおける電磁場計算 9
１－５　相互作用を考慮した電磁場計算法の比較 10

第２章　微小開口を用いたニア・フィールド光学顕微鏡の像形成 13

２－１　微小開口を用いたＮＳＯＭ 13
２－２　微小開口ＮＳＯＭの計算モデル 13
２－３　多重散乱を考慮しないときのＮＳＯＭ像 14
２－４　多重散乱を考慮したときのＮＳＯＭ像 17
２－５　プローブと試料との間の距離によるＮＳＯＭ像の差異 24
２－６　プローブの走査方法による像の差異 24
２－７　微小開口プローブが有する空間周波数特性 25
２－８　複素屈折率分布をもつ試料に対するＮＳＯＭ像 28
２－９　考察 34

第３章　スリット・プローブの結像特性の解析とその赤外ＮＳＯＭへの応用 35

３－１　スリット・プローブ 35
３－２　スリット・プローブに対する偏光特性 35
３－３　スリット・プローブの赤外顕微分光への応用 38
３－４　スリット・プローブを用いた赤外ＮＳＯＭの実験 39
３－５　スリット・プローブによる超解像性の計算と実験結果との比較 41
３－６　スリット・プローブに対する位置と検出効率との関係 43

第４章　金属チップによるニア・フィールド電場の増強 45

４－１　微小開口プローブによる解像度の限界 45
４－２　金属チップＮＳＯＭの特徴 46
４－３　金属チップＮＳＯＭの計算モデル 47
４－４　金属チップ先端での電場計算 47
４－５　増強電場を利用した高密度光記録への応用 51
４－６　増強電場を利用した２光子励起過程への応用 51
４－７　考察 54

総括 56

謝辞 58

Appendix 59
A.　有限差分時間領域法によるニア・フィールドの計算 59
B.　吸収境界条件 63
C.　モデル化の方法 64

参考文献 65

序論

近接場走査光学顕微鏡（Near-field Scanning Optical Microscope：ＮＳＯＭ）は微小な領域の光学的情報を得ることのできる顕微鏡として、研究が進められてきた。この顕微鏡では、従来の光学顕微鏡の特徴を生かしながら、光の波長に起因する解像限界を超えることができる。

しかしながら、ＮＳＯＭを用いて測定された画像が、どのような光学的情報を表しているのかは、いまだ明らかになっていない。これは、ＮＳＯＭ像を検出する過程には、回折理論をはじめとする線形理論が成り立たないためである。このため、ＮＳＯＭで検出される画像は、従来からある顕微鏡の結像理論だけでは解釈できない。ＮＳＯＭ像を検出する過程には、解釈を困難にしている要因がいくつか含まれている。その一つは、形成される試料上のニアフィールド電場の分布が試料の形状、屈折率、吸収などの光学分布によって異なることであり、さらに、ＮＳＯＭで用いるプローブや観察する試料のような波長程度の大きさの物質による光散乱は、球のように簡単な散乱体においてさえMie散乱として知られるように、非常に複雑な散乱特性を示す。また、ＮＳＯＭでは、試料に形成された場をそのまま観察しているのではなく、プローブによって摂動を受けた場を観察しているということも、ＮＳＯＭ像の解釈を困難にしている。

このようにＮＳＯＭには、微小構造体からの光散乱や、プローブと試料との間のフォトンを介した相互作用という興味深い現象が含まれているが、残念ながら、相互作用の含まれたＮＳＯＭ像が、試料のどのような性質を表しているのかが明らかになっていない。

これらの課題を抱えながらも、近年のマイクロ化技術を背景として、ＮＳＯＭに対する期待は年々高まってきている。これは、可視光～赤外光領域における光と物質の相互作用が、試料に関する多くの知見を与えることや、生体の非破壊観察等、光を用いた測定には数多くの利点が挙げられるからである。国の内外でも、エバネッセント場を実験的に形成し、計測することが技術的に可能となりつつあるが、その理論的研究（モデル化や近似、解釈など）は、波動性に基本をおく従来の光学とは異なる立場にあるため、まだ遅れているのが現状である。

以下に、これまでのニア・フィールド光学顕微鏡における像形成の歴史を概観する。

ニア・フィールド光学顕微鏡の概念は、1928年にSyngeによって示されている［Synge, 1928］。これは、結像に光の波動性を用いない光学顕微鏡の提案であり、1870年頃にAbbeが示した結像理論で説明される従来の光学顕微鏡とは、試料像の形成理論において全く異なる発想に基づいているものであった。Syngeは当初、プローブとして、水晶基板に付けた微小球を用いることを考えていたようであるが、A. Einsteinの勧めにより微小開口をプローブに用いた顕微鏡の提案を発表している［Synge, 1928］。さらにSyngeはEinsteinとの議論から、現在最も良く用いられているプローブである、誘電体（水晶）チップに金属をコートしたものを用いることを考えていたようである［Courjon, 1995］。この頃は微細加工・制御の技術が不十分であり実現はなされなかったが、微小球プロー

ブ、微小開口プローブ、金属をコートしたファイバー・プローブという現在でも主流にあるプローブの提案は、すでに出揃っていたと思われる。

最初の実験は、マイクロ波領域でAshによって実現された［Ash, 1972］。彼らは、波長λ＝3 cmのマイクロ波と開口径1.5mmのプローブを用いて、回折格子等の観察によりλ/20の分解を得ている。可視光領域における実験は、PohlのグループとIssacsonのグループが独立に、成功しており［Pohl, 1984: Lewis, 1984］、このとき金属をコートしたファーバー・プローブを用いてλ/20程度の解像度が得られたと報告している。赤外光での実験はFisherによって行われた［Fisher, 1985］。

一方で、測定方法の最適化や、イメージング原理の理解、ニア・フィールド像の解釈などにおいて、解析の必要性が指摘されるようになってきた。Fourier光学に基づいた理論［Vigoureux, 1992］で、解釈されることもある。しかしながら、ニア・フィールド光学の領域では、Fourier光学をはじめAbbeの結像理論やキルヒホッフの回折理論などの波動光学で用いられてきた近似が成り立たないことが多い。このような回折問題を扱う場合には、問題を簡単化して、プローブの回折場と試料の回折場をそれぞれ独立に解釈する方法を用い、微細構造の回折場が解析されてきた。

ニア・フィールド光学顕微鏡の基礎的な解析として挙げられるのは、RayleighあるいはBetheに示された微小開口における放射場の解析である。Betheは、開口部に電気双極子と磁気双極子とが存在すると近似して、波長よりも十分に小さい開口（径～λ/100）からの放射電磁波を与えた［Bethe, 1944］。もう少し大きな開口（径＞λ/10）に対する近似解は、Kellerがキルヒホッフの回折理論にエッジ円筒波を取り入れることで求めている［Keller, 1957］。このKellerの理論は、幾何光学的回折理論（Geometrical Theory of Diffraction）として広く応用されている。

これらプローブあるいは試料からの放射場の計算には、多くの手法において散乱体表面での境界条件が考慮されていないため、ニアフィールド領域に近づくほど、電磁場を求めることが困難になる。このため、正確な回折問題の解を求めることが必要になるが、これまでに正確な解が得られているのは、簡単な回折問題だけである。ここで、正確な解というのは、マックスウェルの電磁理論に基づいた解という意味であり、散乱体での境界条件が満たされていることと、入射電磁場に対応する解を求めることを要求する。これまでに厳密に解かれている回折問題は、ニアフィールド光学に関すると思われるものとして、無限に薄いナイフエッジからの回折［Sommerfeld, 1896］、球による散乱［Mie, 1908］、無限に薄い円形開口およびスリットからの回折［Sommerfeld, 1954］などが挙げられる。

このようなプローブのみ、あるいは試料のみを対象とした解析から、それぞれに形成されるエバネッセント場を知ることができるが、前節で述べたように、これがそのままニア・フィールド光学顕微鏡の像となるわけではない。ニア・フィールド光学顕微鏡の像を解釈するためには、プローブと試料とを一体の散乱系とみなした散乱場の解析が必要である。複数の物体による散乱を解析的に扱うことには非常な困難が伴うので、基本式を元に、数値計算を行うことになる。この試みは、Girardに端を発する。Girardはプローブと試料とを電気双極子の集まりと考え、互いにセルフ・コンシステントになる場を解

くことにより、ニア・フィールド光学像を求めている［Girard, 1990］。Novotnyは、ヘルムホルツ方程式の境界値問題を解くことで、２次元モデルではあるが、現実の問題に近いモデルで、ニア・フィールド光学像の特性を解析している［Novotny, 1994］。

以上の状況を考慮に入れ、本研究では、ニア・フィールド光学顕微鏡（ＮＳＯＭ）で得られる像特性に関する知見を得ることとニア・フィールド光学における理論的バックグラウンドを高めることを目的とし、以下のような研究を行った。

第１章では、ＮＳＯＭの像形成に関して、大まかな近似ではあるが見通しのよい理論を、スカラー回折理論に従って述べる。さらに、正確な計算を行うことのできる方法を比較し、ＮＳＯＭの像解釈を行う上で適切な計算方法に言及する。ＮＳＯＭシステムは、さまざまな方法が考案されているが、第２章では、現在最も良く用いられている微小開口プローブを用いたＮＳＯＭを取り上げ、像特性の解析を行う。さらに、現在のシステムのＳＮ比を改善するために、スリット・プローブを用いたＮＳＯＭシステムの提案を、第３章で行い、スリット・プローブの像形成過程について議論する。このように微小な開口を用いたプローブでは、分解能及びＳＮ比の上でそれぞれ限界を有しており、大きな改善を望むことができないものと考えられる。この理由を第４章に示し、それを改善することのできる可能性として、金属針をプローブとしたＮＳＯＭについて考察する。このシステムにおける電場分布の計算からこのプローブでの像形成過程を考察する。

最後に研究成果について総括し、今後の課題について述べる。

第１章　ニア・フィールド光学顕微鏡における像形成の理論

１－１．ニア・フィールド光学顕微鏡（ＮＳＯＭ）

レンズ等の結像光学系を用いる通常の光学顕微鏡には、光の波動性に起因する解像限界がある。この顕微鏡の像は、試料によって回折された０次回折光（透過光）と１次回折光との干渉パターンであるとみなし得る。干渉によって形成される光強度分布は最も密になる場合（最も空間周波数の高い場合）でも半波長の間隔であるため、通常の光学顕微鏡を用いて、光の半波長よりも細かい構造を表すことはできない。このように顕微鏡が、伝搬光を用いた結像過程である限り、半波長よりも小さい電磁場分布を結像することはできない。

この解像限界を克服する顕微鏡として、ニア・フィールド光学顕微鏡（Near-field Scanning Optical Microscope：ＮＳＯＭ）の研究が行われている。この顕微鏡の模式図を図１－１に示す。光の波長よりも小さい構造体に光を入射すると、回折条件を満たさないために、電場強度は構造体の表面から急激に減衰する。このような電場分布はエバネッセント場と呼ばれている。エバネッセント場は光の波長よりも小さい構造をもつ試料の表面に局在しているため、波長よりも細かい電場分布を形成している。そこで、試料表面のエバネッセント場内に波長よりも小さい開口をもつプローブを挿入し、微小開口でエバネッセント場を再回折させて伝搬光とし、検出器に光を導く。プローブを走査させることによってエバネッセント場の分布を検出すれば、微細構造を検出できることになる。このような原理に基づく光学顕微鏡が、ＮＳＯＭである。

次に、エバネッセント場の形成過程と、検出過程について述べる。

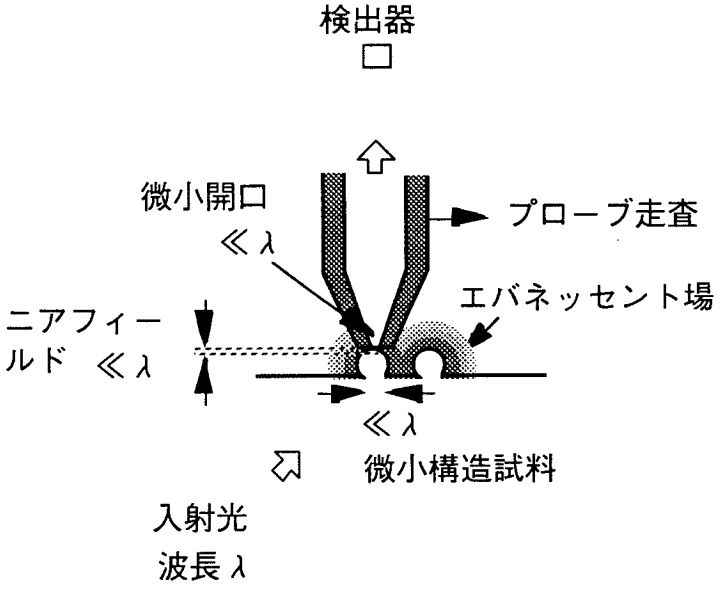


図１－１，ＮＳＯＭの原理図

1－2．エバネッセント場の形成

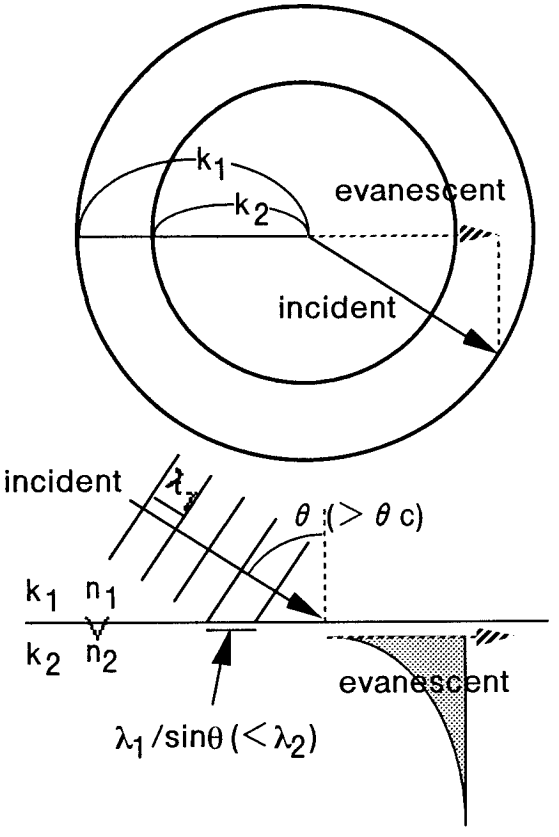
有限の大きさを持つ散乱体に伝搬光を入射したとき、形成される回折場には、伝搬光と非伝搬光とが存在する。非伝搬光は散乱体の近傍に局在しており、散乱体から離れるに従って強度が指数関数的に減衰する。この光は、エバネッセント光と呼ばれ、散乱体から波長以内に特徴的な光学現象である。

回折理論に従えば、回折光の空間周波数は、入射波の空間周波数と散乱体の空間周波数との和でつくられる。エバネッセント場は、高い空間周波数をもつ回折光によって形成される電磁場であり、それを形成するには、入射波の空間周波数と散乱体の空間周波数のうち、どちらかの空間周波数が高いか（図1－2(a) (b)）、2つの和として高ければ良い（図1－2(c)）。

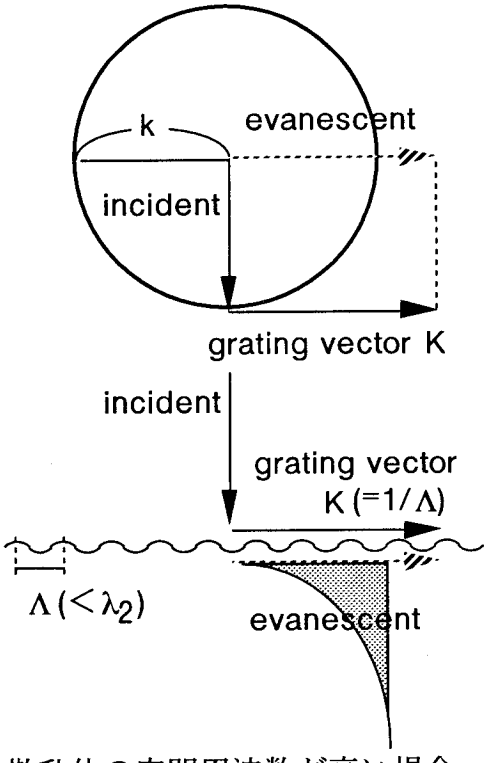
エバネッセント場の形成法として良く知られているのは、図1－2(a)に示すように、高屈折率の媒質から低屈折率の媒質に全反射条件で光を入射させたときに発生する方法である。これは、散乱体の空間周波数は0であるが、入射波の空間周波数が高い場合に相当する。このとき、境界面の電気双極子は、入射波側のピッチ（$\lambda_1/\sin\theta$）で同位相となるため、高屈折率側の伝搬条件$\sin\theta$を満足する（$\lambda_1/\sin\theta > \lambda_1$）が、低屈折率側の伝搬条件を満足しない（$\lambda_1/\sin\theta < \lambda_2$）。このため、低屈折率側には位相が揃う角度が無く、境界面から離れるに従い急激に減衰する。

図1－2(b)に示すのは、入射波の空間周波数が0であるが、散乱体の空間周波数が高い場合である。このときにも、電気双極子が同位相となるピッチ（Λ）が、下の媒質の伝搬条件を満足しない（$\Lambda < \lambda_2$）ために、エバネッセント場が形成される。

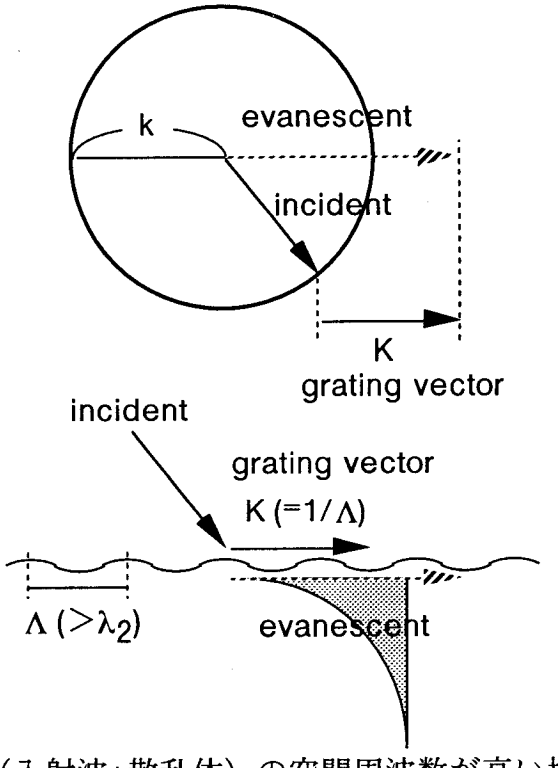
図1－2(c)のように、入射波の空間周波数と散乱体の空間周波数との和が、高くなる場合にも、同様の理由によってエバネッセント場が形成される。



(a) 入射波の空間周波数が高い場合



(b) 散乱体の空間周波数が高い場合



(c) （入射波+散乱体）の空間周波数が高い場合

図１－２，エバネッセント場の形成（Ewaldの方法による説明）

以上のように、エバネッセント場は高い空間周波数成分によって形成される電磁場である。このため、有限の大きさの物体で回折された光には、必ずエバネッセント場が存在している。これはフーリエ解析によって知られているように、有限の大きさの物体がもつ空間周波数の帯域は、無限大にまで広がっているからである。図１－３に、半径ａの円盤形散乱体がもつ空間周波数を示した。入射光の波長をλとすると、物体の持つ空間周波数1/λ以内の成分は、空間周波数が０の入射光（円盤に対して垂直入射する光）に対して、伝搬光となる。一方、1/λよりも高い空間周波数は、回折光としてエバネッセント場を作り出す。

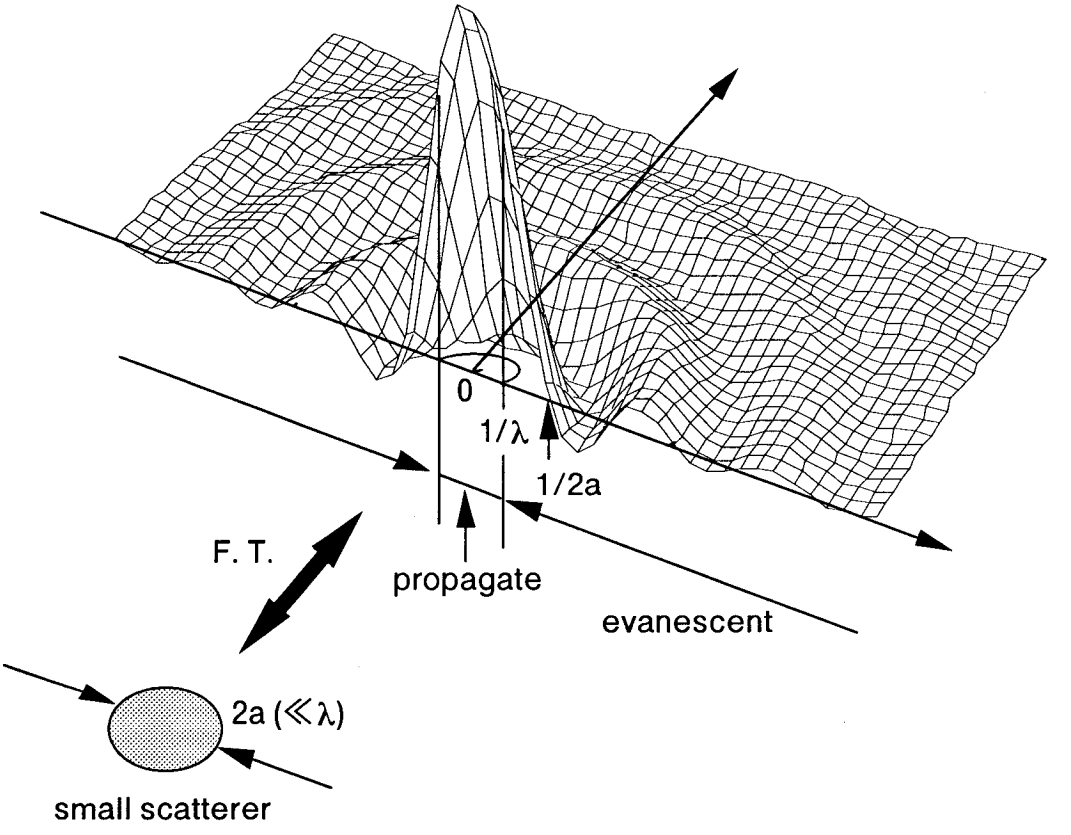


図１－３，半径ａの円盤形散乱体がもつ空間周波数

波長よりも大きな散乱体（2a＞λ）では、空間周波数スペクトルの大部分は、伝搬光を作り出す。小さな散乱体ほど、回折光がエバネッセント場になる割合が大きい。

１－３．エバネッセント場の検出方法

エバネッセント場は、被測定試料の表面において、高い空間周波数で電場分布を形成している。これを検出できれば、被測定試料の光学像を高分解で得ることができるが、エバネッセント場は伝搬しない光であるために、レンズで結像する通常の光学顕微鏡では観測できない。エバネッセント場の光強度を検出するためには、非伝搬光であるエバ

ネッセント場を、もう一度伝搬光に戻す必要がある。入射波である伝搬光が試料の微細構造によってエバネッセント場に変換されたように、試料上のエバネッセント場もプローブの微細構造によって伝搬光に変換することができる。変換された伝搬光強度とプローブの位置を知ることにより、その位置におけるエバネッセント場の強度を測定することができる。

これが回折限界を越えた解像力をもつＮＳＯＭの原理であり、近似的にはフーリエ光学で説明することができる［Vigoroux, 1992; 河田, 1992］。この過程を、図１－４に示す。

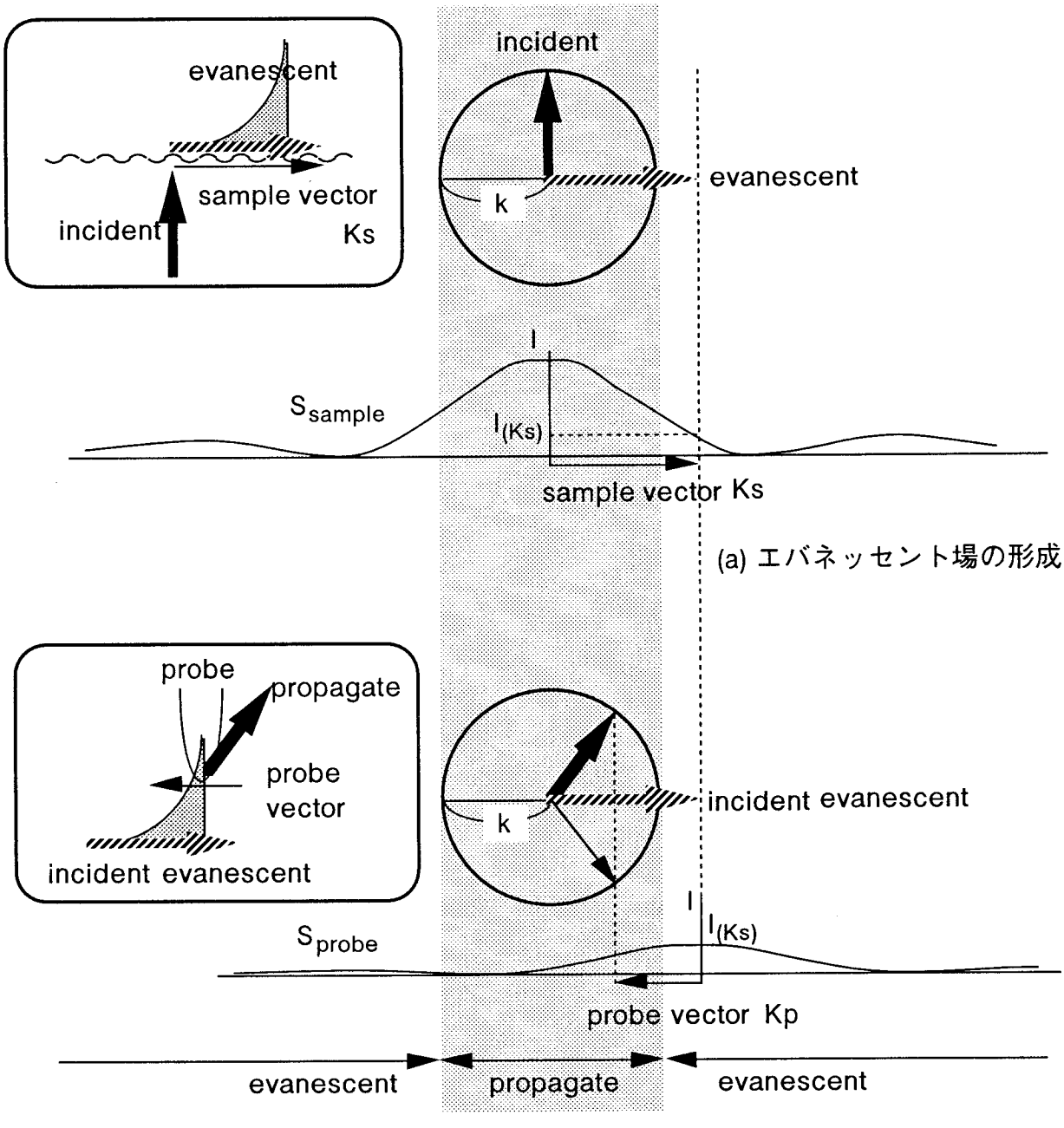


図１－４，ＮＳＯＭにおける超解像性の原理（フーリエ光学による近似）

試料に対して真下から入射した光は、試料の持つ空間周波数によって回折される（図１－４(a)）。このうち、エバネッセント場を形成する空間周波数の一つをKsとし、エバネッセント場Ksの強度をI(Ks)とする。図１－４で、マスキングを掛けた部分が伝搬光となる回折領域を表し、それ以外の部分は、エバネッセント場となる回折領域を示す。試料表面に形成されたエバネッセント場Ksは、プローブに対する入射波となり、プローブのもつ空間周波数によって再び回折される（図１－４(b)）。このとき、プローブのもつ、ある空間周波数Kpに回折されたとすると、回折波は伝搬光に変換されて、検出が可能となる。プローブのもつ空間周波数は図１－４(b)に示すように、広がっているが、このうち伝搬光となる回折領域（マスキングを掛けた部分）の積分値が検出強度である。このため、変換された伝搬光強度は、そのままエバネッセント場の強度I(Ks)となるわけではない。

試料を表す各空間周波数（すべてのKs）について上記に従うと、検出される光の強度は、試料の空間周波数とプローブの空間周波数とのコンボリューションで表されることが分かる。つまり、実空間では、試料構造とプローブ構造との積で表されることが分かる。ニア・フィールド光学顕微鏡の分解能がプローブ径程度と言われる所以である。

１－４．ニア・フィールドにおける電磁場計算

フーリエ光学理論から得られる知見では、ＮＳＯＭの超解像性を説明するにとどまり、ＮＳＯＭで測定される像を見積もることはできない。これは、フーリエ光学による解釈が、試料とプローブとの間に生じるニアフィールド相互作用を無視しているためである。ニア・フィールド光学の特徴は、ある散乱物体（試料）の近接領域に他の散乱物体（プローブ）を持ってくることにあるため、その解釈においても、複数の散乱体の間に生じる多重散乱を考慮する必要がある。これは、図１－４(b)からも分かるように、試料上のエバネッセント場がプローブに回折されて検出光となる成分は、最大でもプローブに入射するエバネッセント場の1/4であり、比較的少ない。信号以外にも、さらに高い空間周波数のエバネッセント場となる成分（プローブに入射するエバネッセント場の1/2）や、再び試料方向への伝搬光となる成分（プローブに入射するエバネッセント場の1/4）が存在することも考慮しなければならない。

このエバネッセント場中でのプローブによる散乱のため、ＮＳＯＭで測定される像は、プローブがないときに試料表面に分布する電磁場とは異なっている。

これまでには、問題の複雑さを多少なりとも回避するために、試料により形成されるニアフィールドと、プローブの特性が個々に解析されてきた。しかしながら、ＮＳＯＭでは、試料とプローブとを一体の系とした散乱場が形成されており、どれか１つの現象を分離させて解釈することが難しい。つまり、プローブと試料との間の多重散乱を通じた結果が、ＮＳＯＭの強度として測定されるのである。

１－５．相互作用を考慮した電磁場計算法の比較

ニア・フィールド光学顕微鏡をモデル化する際には、次のような条件を満たす計算方法が望ましい。

1）プローブと試料とを一体の系とし、電磁理論に対して自己無撞着（self-consistent）な場を求めることができること。
2）散乱体近傍の解が正確に求められること。
3）プローブと試料との間に生じる多重散乱はプローブや試料の形状による影響を受けるので、任意の形状を取り扱うことができること。
4）３次元モデルおよびベクトル電磁場を取り扱えること。

解析的に求めることができる散乱問題は非常に簡単な散乱体に限られている。しかしながら、大型計算機の速度向上と記憶容量増大という現状を考慮すると、解析解を得ることができていない問題に対しても、数値解を求めることによって、１）～４）の条件を満たすことが可能であると考えた。

これらを満たす電磁場計算の方法には、主に、双極子放射を基にした双極子法［Girard, 1990］や、Helmholtz方程式を基にした有限差分法（Finite-Difference Method：FDM）、有限要素法（Finite Element Method：FEM）［Zienkiewicz, 1983］、境界要素法（Boundary Element Method：BEM）［Brebbia, 1978］、多重極展開法（Multiple Multipole Method：MMP）［Hafner, 1990］など、および、Maxwell方程式を基とした有限差分時間領域法（Finite-Difference Time-Domain Method：FDTD）［Yee, 1966］が挙げられる。以下に、それぞれの特徴を挙げ、比較する。

これまでに双極子近似を用いて、GirardらがＮＳＯＭのモデルを取り扱っている［Girard, 1990］。Girardらの行っている双極子近似法の特徴は、双極子の分極率というミクロスコピックな量でプローブと試料とをモデル化するので、少数の原子配列などの小規模な構造への適用が行いやすいことである。しかし、実際のプローブや試料の形状・大きさを表すには、膨大な計算機容量と計算時間を必要とし、実質的に困難である。もう少し大きなモデルを記述するために、双極子の大きさ自体を数十nmまで大きくすることも行われているが、双極子の大きさと分極との関係の妥当性が不明瞭であるため、実験結果との対応が難しいと考えられる。

試料やプローブの形状を取り入れるには、誘電率などのマクロな物理量で記述されたHelmholtz方程式、あるいはMaxwell方程式を用いるのが適切であろう。

Helmholtz方程式を基礎とする手法は、偏微分方程式の境界値問題を解く数値解法をHelmholtz方程式に適用したものが多数研究されている。主な方法に、境界要素法、多重極展開法や有限差分法、有限要素法などがある。Novotnyらは、多重極展開法を用いて２次元のＮＳＯＭ解析を行っている［Novotny, 1994］。Helmholtz方程式を基礎とする手法は、定常場の連立方程式を解くためのマトリックスを用意する必要があるため、離散点数Ｎに対してＮの２乗に比例する規模の主記憶容量（メモリー）が必要となる。計算機のメモリー容量の問題は、とくに３次元モデルを立てるときには、重要である。たと

えば、図１－５のような、プローブと試料とを４層媒質としてモデル化し、一辺が５λの３次元立方体空間を100分割して計算すると仮定すると、境界要素法および多重極展開法を用いたばあいに必要となるメモリーは、連立方程式を解く際に必要となる容量だけを考慮した場合にも数十GB以上になる。有限差分法あるいはそれを発展させた有限要素法では、マトリックスの大部分が０であるため、バンド・マトリックス特有の計算手法を用いてメモリーを節約することができるが、この場合でも、数GB程度のメモリーが必要である。

Maxwell方程式を基礎とする有限差分時間領域法は、モデル空間での電磁場の時間変化を逐次求める方法である。この方法では、マトリックスを解く必要がないため、前述の方法に比べてメモリー容量が少なくて済む。前述の３次元モデルを計算するのに必要なメモリーは、１GB以下である。これは、大型計算機あるいはハイエンド・ワークステーションを用いれば計算できる。通常、大型計算機で割り当てられるメモリーは0.5～2GBであるから、ニア・フィールド光学顕微鏡の３次元モデルを実用的に取り扱うことができる。現在の計算機でも実用的な計算を行える方法として、本論文においては有限差分時間領域法を用いた。この有限差分時間領域法を用いた計算は、２次元モデルについてChristensenが報告している［Christensen, 1995］。ただし、有限差分時間領域法は、精度に関しては他の手法に比べて劣る。これらの各種解析法の特徴を表１－１にまとめる。

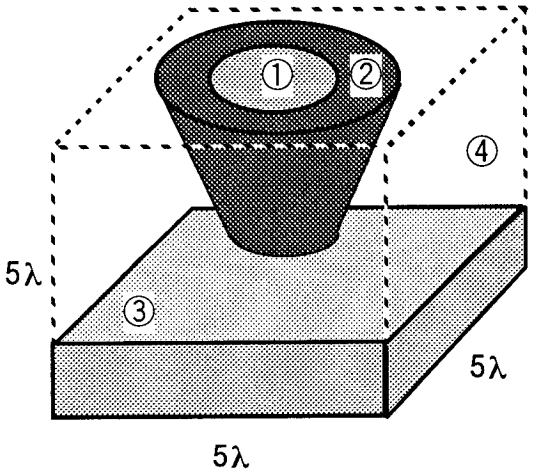


図１－５，主記憶容量を比較するための計算モデル
（モデル空間：5λ×5λ×5λ、分割：λ/20、4媒質構成）
プローブ：①光ファイバー、②金属コート
試料：③等方性媒質、④空気

表１－１，各種解析法の特徴

	3Dモデル*に必要な主記憶容量	計算精度	計算時間	任意形状のモデル化	立式	備考
有限差分時間領域法	0.26GB	1%	～5分	容易	容易	2D[Christensen,1995] 3D[Furukawa,1996]
有限要素法	1.6GB	1%	～10分	容易	困難	
双極子法	22GB	不明	～10分	困難	困難	3D[Girard,1990]
境界要素法・多重極法	86GB	0.1%	～1時間	困難	困難	2D[古川, 1994] 2D[Novotny,1994]

第２章　微小開口を用いたニア・フィールド光学顕微鏡の像形成

２－１．微小開口を用いたＮＳＯＭ

現在、最も良く用いられているＮＳＯＭのプローブは光導波路に金属をコートし、先端に微小開口を設けたものである。微小開口の直径は、可視光で観察する場合には数十nm～100nm程度のものが用いられる［Betzig, 1992］。これより小さな開口を設けることも可能であるが、ＳＮ比が低下するため、あまり用いられない。このプローブは通常、先端が細くなっているので、試料形状に追従して走査させることができる。

初期のころから現在もなおＮＳＯＭの研究に用いられてきたプローブであるが、このＮＳＯＭで検出された像には、試料の光学像が反映されていることを明確に述べた実験はほとんどない。この理由は、ＮＳＯＭが、試料表面に形成されたエバネッセント場をそのまま観察しているのではなく、プローブによる摂動場を観察しているということにある［Weeber, 1996; Madrazo, 1996］。

プローブの誘電率は、試料自体の誘電率と同程度あるいはそれ以上であるため、プローブによる光の散乱を無視することはできない。プローブにコーティングを施すための金属が用いられる場合には、プローブの散乱特性は、試料自体よりも強い。さらに、ＮＳＯＭで用いるプローブや観察する試料のような波長程度の大きさの物質による光散乱は、非常に複雑な散乱特性を示すことも、ＮＳＯＭ像の解釈を難かしくしている。

ここでは、ＮＳＯＭ像には、どのような形で試料の形状が含まれているのか。また、それは、プローブの走査方法や試料との距離、入射偏光などに対してどのように変わるのか、などを解析する。

２－２．微小開口ＮＳＯＭの計算モデル

ここで解析するＮＳＯＭのモデルを図２－１に示す。モデルは３次元空間で表現している。プローブは、金の薄膜（屈折率0.27+7.1i, 厚み2λ/70）をコートした円錐形の誘電体（屈折率1.5）であり、その先端に直径が波長の1/5の微小な円形開口を設けている。金の屈折率は波長6.0μmにおける値で、赤外ＮＳＯＭの実験パラメーター［河田, 1996］に一致させている。試料は、とくに断らない限り、高さが6λ/70、直径がλ/5の円柱形の突起部を持つ屈折率1.5の誘電体基板である。光は、試料側から垂直に入射している。検出方法は、プローブを通して、開口から十分遠方の場で光強度を検出する形態をとる。いわゆる、コレクション・モードのＮＳＯＭの構成である。

１－５節に述べたように、計算には計算機のメモリー容量を考慮して、有限差分時間領域法（ＦＤＴＤ）を用いて計算する。モデルの離散化のための分割数は、150×150×80とした。格子の大きさは、光軸方向に3λ/70、光軸に垂直な面内にλ/70×λ/70とした。

入射光は２つの偏光成分について調べた。試料にエッジなどの構造があるときには、その境界面が偏光方向に対して平行であるか、垂直であるかによって、ＮＳＯＭ像の違いが現れると推測されるからである。ここでは、図２－２(a) に示すように、入射光の振動電場がエッジに対して垂直であるときをｐ偏光と定義し、平行であるときをｓ偏光と定義する。

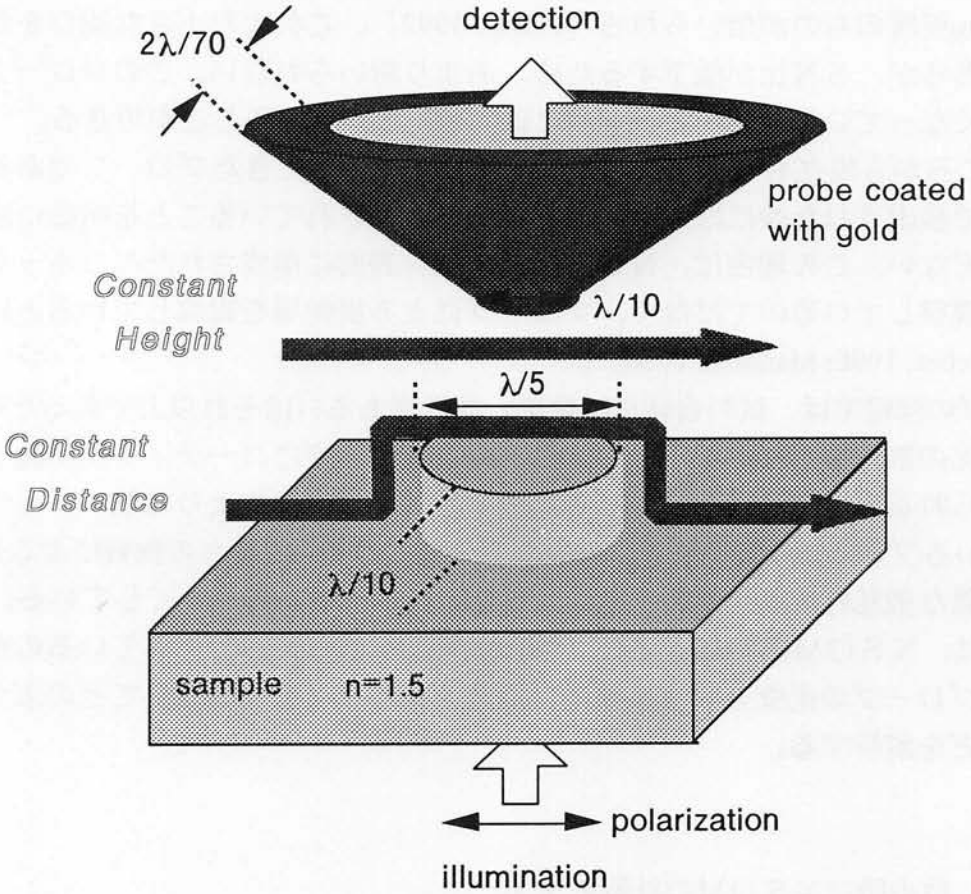


図２－１，微小開口をもつＮＳＯＭの計算モデル

２－３．多重散乱を考慮しないときのＮＳＯＭ像

ＦＤＴＤを用いて計算した図２－１の試料の表面近傍での電場の強度分布を、図２－２(b) (c) に示す。図２－２(b) は、ｐ偏光入射のときの電場分布であり、試料のエッジの外側で電場の強度が高くなっていることが分かる。これは、ｐ偏光に対する誘電体表面での境界条件に従っている。２つの媒質間では電束密度の境界面に垂直な成分が保存されるので、誘電率の低い側の媒質で電場の振幅が大きくなる。図２－２(c) は、ｓ偏光入射のときの電場分布であり、場の強度変化がｐ偏光の場合に比べて小さい。このため、(b) の３倍のコントラストで表示している。ｓ偏光入射のばあい、境界条件は２つ

の媒質間での電場が等しいことであるので、媒質の境界での電場変化は小さい。このときには、試料のエッジ付近での電場が、周りに比べてむしろ低くなっている。

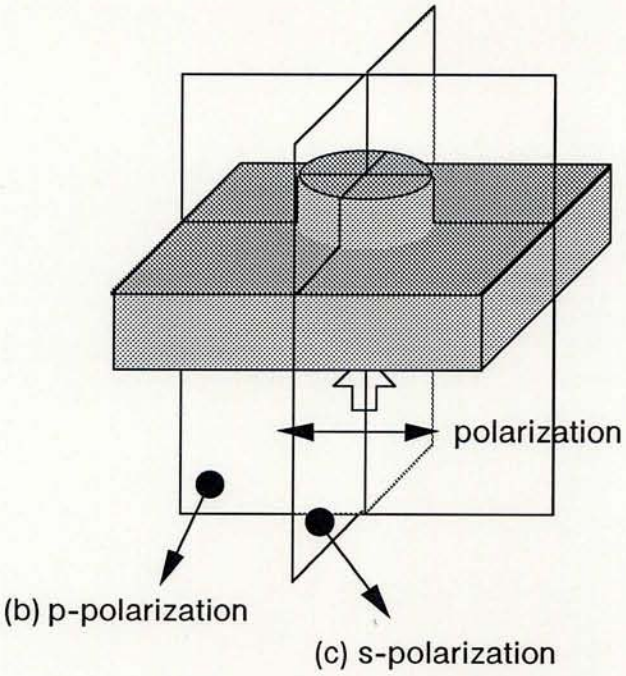
ここで、プローブを弱散乱体であると見なすと、プローブの相互作用を無視することができるため、ＮＳＯＭ像は図２－２の試料表面の電場強度に一致した分布になる。十分小さな孤立したRayleigh粒子から成るプローブを用いればこのような像が得られるが、現実的には実現は不可能に近いであろう。しかし、次節で示すようなプローブと試料との間に働く多重散乱が強い場合に、検出されるＮＳＯＭ像との対比を示すため、この結果を知ることは重要である。

弱散乱プローブを試料の表面形状に沿って、一定に保って走査させたときの像を図２－３(a) に示す。これは、試料表面の電場分布に一致する。表面形状に沿ったプローブ走査法は、一定距離走査法（constant-distance probe-scanning modeあるいは、constant-gap probe-scanning mode）と呼ばれている。プローブと試料間の距離をd=3λ/70に固定し、プローブ走査は入射光がｐ偏光になる方向とする。ｐ偏光方向の断面では、試料エッジの外側の部分で強度が高くなる。これは、誘電体表面の電束密度の境界条件を考慮することにより、説明され得る。誘電体界面に対して垂直な電場に対する境界条件は、界面の内側と外側で電束密度が一致することである。このため、誘電率の低い媒質側で電場振幅が高くなっていると考えられる。

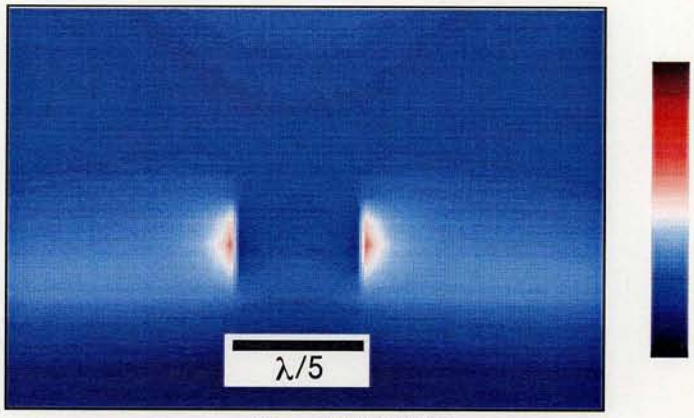
さらに、試料の表面形状によらず、プローブを一定の高度で走査したときの像を図２－３(b)に示す。この走査法は一定高度走査法（constant-height probe-scanning mode）と呼ばれている。入射光はｐ偏光に対応する方向であり、試料とプローブとの間の距離は、試料突起部分の最も高い位置からの値ｈで示し、ここではh=3λ/70とする。試料エッジの外側の部分で強度が高くなるという傾向は、一定距離走査法のときと同じである。但し、試料からの距離が遠くなっているために、一定距離走査法に比べて強度が低下している。

次に、入射光がｓ偏光となる方向にプローブ走査を行ったときの結果を図２－４に示す。図２－４(a)は、一定距離走査法の場合であり、ｓ偏光方向のプローブ走査では、ｐ偏光方向に比べコントラストが悪いことがわかる。図２－４(b)は、一定高度走査法の場合である。この場合にもコントラストが低くなっており、電場変化に応じてエッジ付近での強度が低下している。また、ｓ偏光方向では、ｐ偏光方向の際にみられるようなエッジでの電場強度の急激な変化は見られない。これは、誘電体界面に平行な方向の電場に対する境界条件は、界面の内外で電場が一致することであるためだと考えられる。

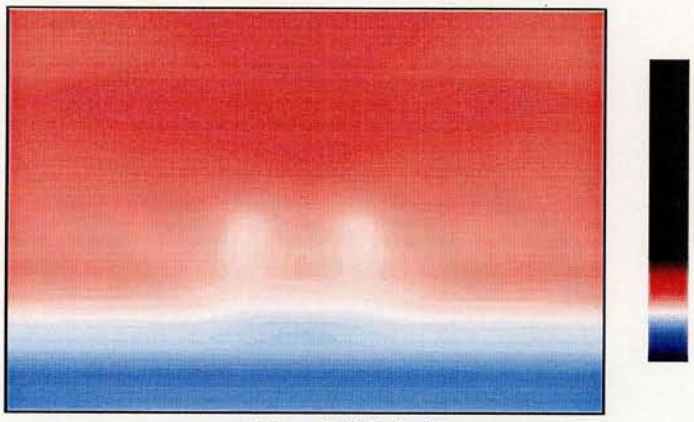
一定距離走査法と一定高度走査法とでは、強度が異なるものの像の傾向は似通っている。しかしながら、どちらの走査においても、試料表面の電場分布は、試料の形状とは異なっているといえる。



(a) 入射偏光に対する断面（ｐ偏光断面:入射偏光に平行，ｓ偏光断面:入射偏光に直交）

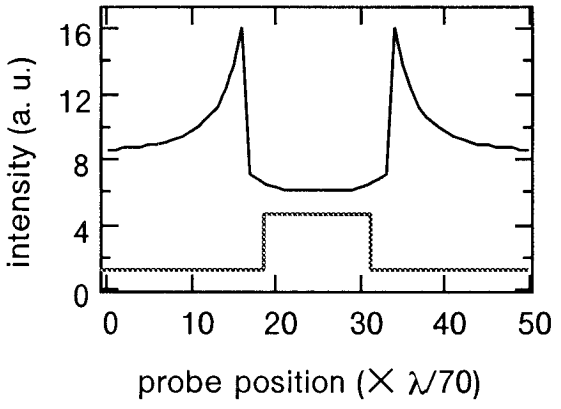


(b) ｐ偏光方向

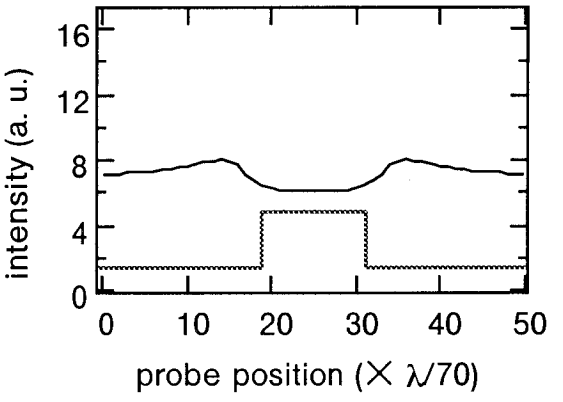


(c) ｓ偏光方向

図２－２，試料上の電場分布

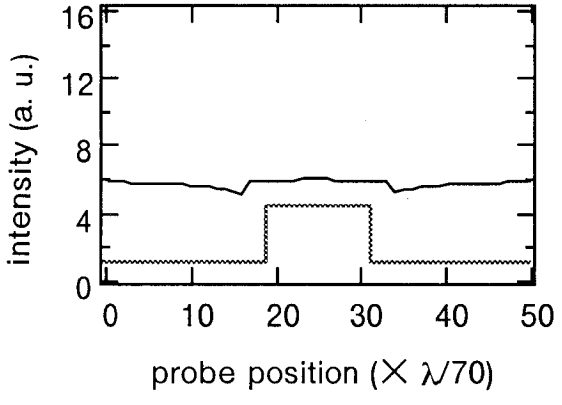


(a) 一定距離走査法

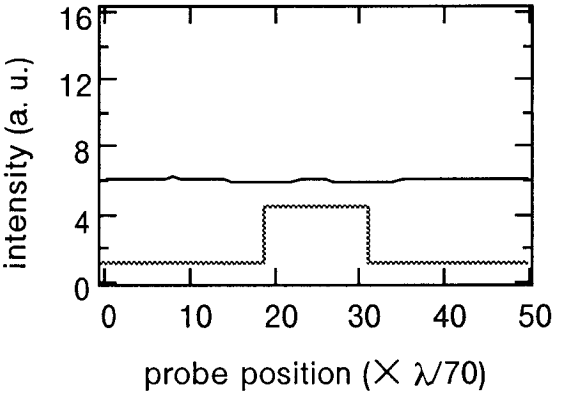


(b) 一定高度走査法

図２－３，多重散乱を含めない場合のＮＳＯＭ像（ｐ偏光方向の試料上の電場分布）



(a) 一定距離走査法

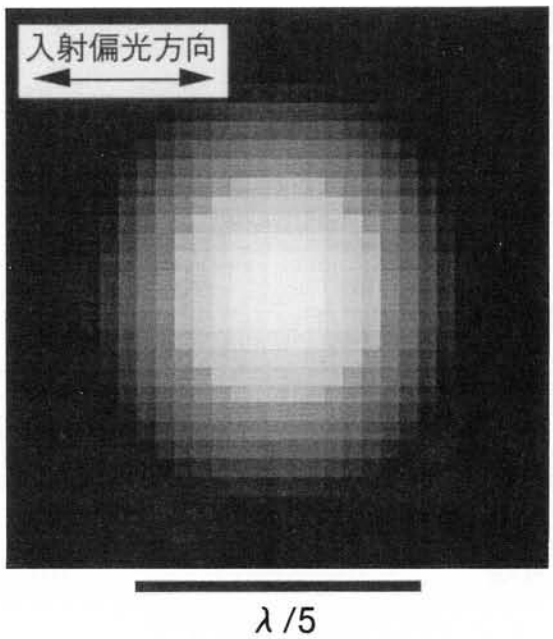


(b) 一定高度走査法

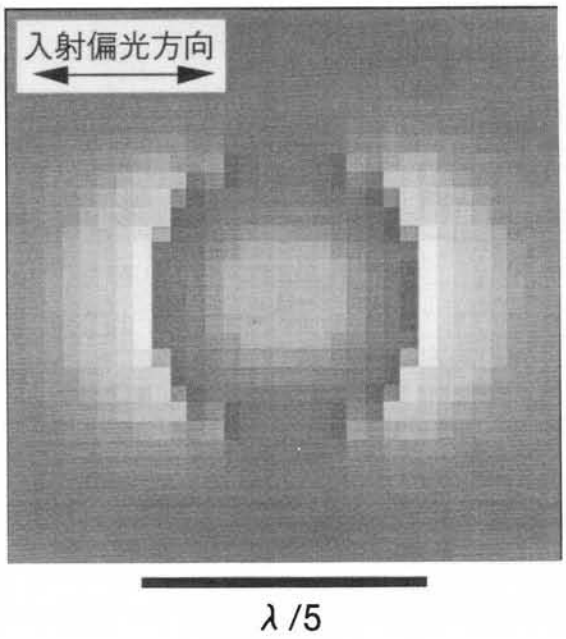
図２－４，多重散乱を含めない場合のＮＳＯＭ像（ｓ偏光方向の試料上の電場分布）

２－４．多重散乱を考慮したときのＮＳＯＭ像

プローブが試料と同程度あるいはそれ以上の誘電率であるときには、プローブの電場特性やプローブと試料との間で生じる多重散乱が、試料場に摂動を与える。プローブによる相互作用を含めて、一定高度で走査したときのＮＳＯＭ像の計算結果を図２－５(a)に示す。プローブと試料間の距離は、d=3λ/70である。比較のため、このとき試料上の電場強度分布を図２－５(b)に示す。



(a) ＮＳＯＭ像（一定高度走査）



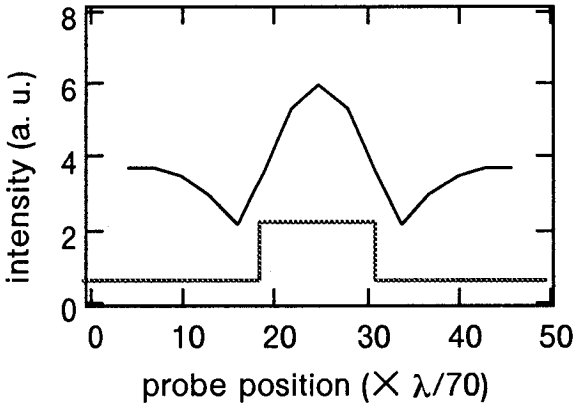
(b) 電場強度分布

図２－５，ＮＳＯＭ像（一定高度走査）と電場強度分布との比較

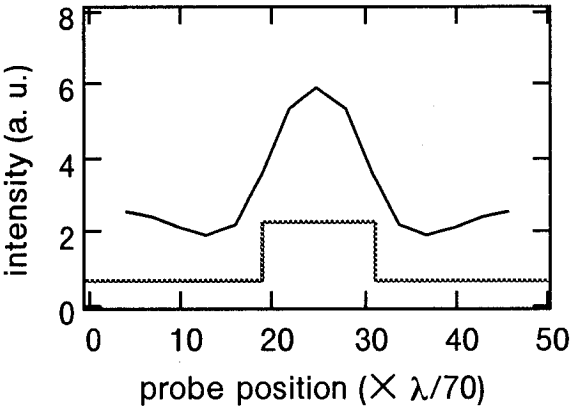
このうち、ｐ偏光に対応する断面の一定距離および一定高度プローブ走査法で観察されるＮＳＯＭ像の計算結果を図２－６に示す。図２－６(a) は、一定距離でプローブ走査したときの様子である。相互作用を無視したときの計算では試料のエッジ部分での強度が高くなっていたが、ここでは中央部分で高い強度が得られており、試料の形状を表した像となっている。図２－６(b) は、一定高度走査法での計算結果である。このときにも試料の形状を表した像が得られているが、一定距離走査法の場合と比べると、突起

以外の部分では、プローブと試料との間の距離が離れるので、相互作用効果が低くなる。その結果、一定距離よりも一定高度でプローブ走査を行った場合の方が、試料形状はよりよく表されている。

同様にそれぞれのプローブ走査法で、ｓ偏光に対応する断面のＮＳＯＭ像を図２－７に示す。このときにも試料の形状を表した像が得られている。相互作用を無視したときの計算ではほとんどコントラストが得られていなかったが、ここではｐ偏光の場合と同程度のコントラストとなっている。図２－６と図２－７とを比較すると、偏光方向の影響がほとんどないことが分かる。これは図２－３と図２－４とに示したように、多重散乱を含めないときの計算結果が偏光の影響を大きく受けていることと対照的である。

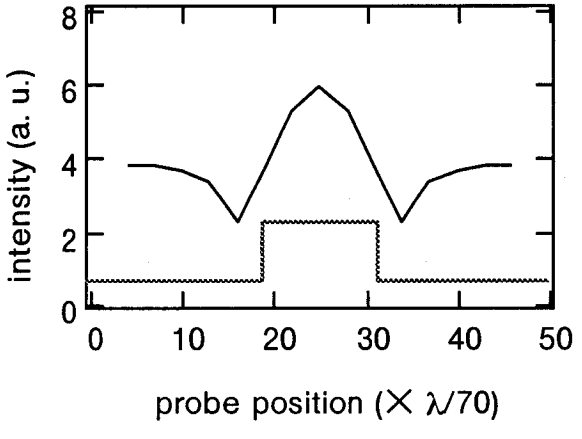


(a) 一定距離走査法

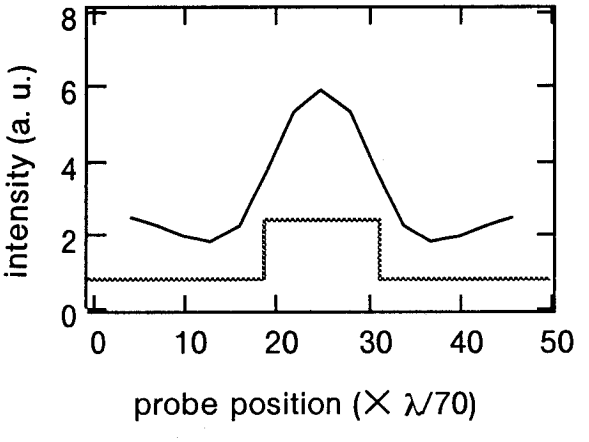


(b) 一定高度走査法

図２－６，多重散乱を含めた場合のＮＳＯＭ像（ｐ偏光）



(a) 一定距離走査法



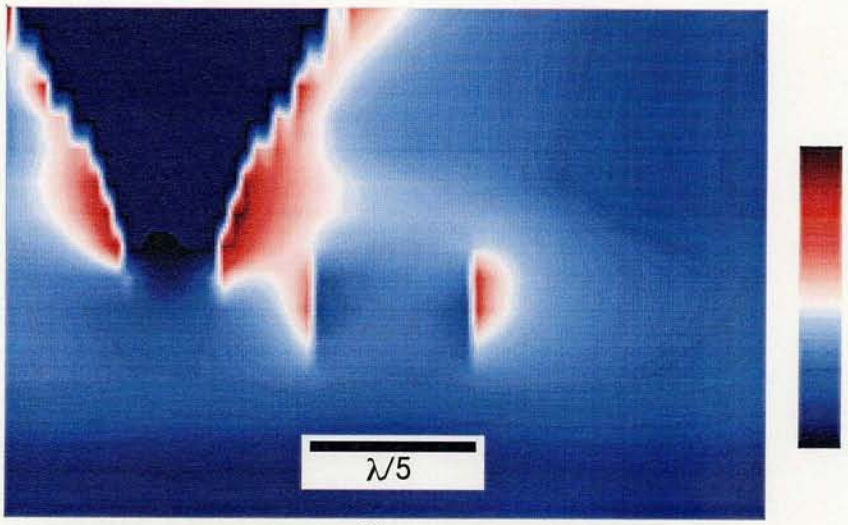
(b) 一定高度走査法

図２－７，多重散乱を含めた場合のＮＳＯＭ像（ｓ偏光）

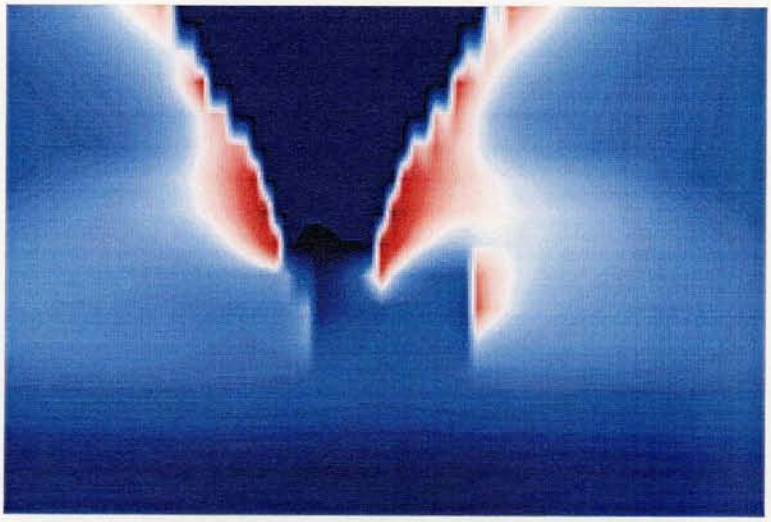
以上のように、プローブの散乱を考慮に入れて計算を行った場合には、試料上の場の分布とは異なったＮＳＯＭ像が得られる。この原因は、局在した電場がプローブにカップリングする様子を求めることで、理解できる。そこで、一定高度で走査しているときのプローブ先端付近の電場強度の変化を図２－８に示す。図２－８(a)から図２－８(c)にプローブが徐々に試料に近づく様子を示す。(a)のように、プローブが試料と離れている場合には、それぞれが独立にあるときとほぼ同じ電場分布が形成されている。(b)は、試料の片側のエッジ上にプローブが存在する場合である。このとき、エッジに局在していた電場が、プローブによって吸い込まれ、エッジ強度が減少している。(c)のように、試料突起部の中央にプローブがあるときは、試料両側の局在場がプローブによって散乱され、エッジの強度が減少している。プローブの両脇でも高い電場が局在しているが、これは金属表面における境界条件により存在しうる電場である。

図２－９は、画面表示のダイナミックレンジを変えて、ｐ偏光方向および、ｓ偏光方向のプローブ内部の電場が分かるように表示したものである。(a)～(c)はそれぞれ図２－８のプローブ位置に対応しており、プローブが試料突起に近づくときの様子である。(c)が示すとおり、プローブが試料の中央にあるときに、最も効率よくプローブ内部に光が導かれている。またｐ偏光方向に対応する断面では、プローブ内部では金属膜に沿って電場が深く透過している。これは、金属表面で、電子の疎密波である表面プラズマ波が励起されていることを示している。ｐ偏光方向の断面では、金属膜の表面に対して垂直な電場成分が存在するため、プラズモンが励起されるが、図２－１０に示すようにｓ偏光方向の断面に対しては金属膜の表面に対して平行な成分しかないため、プラズモンが励起されない。ｐ偏光で励起されたプラズモンでも、誘電率や励起角等の励起波数を決定するパラメーターがプラズモンの共鳴モードに一致していないので、減衰は大きい。ただし、この計算ではプラズモンの励起強度は入射光強度に対して線形であるとみなしているが、実験においても線形であると仮定して構わない。電子の振動が飽和状態するレーザー光の強度は、共鳴条件においても通常のCWレーザーを用いた測定では観測されない（プラズモン励起光の反射強度がほぼ０となる）ほど高いものであるため、この場合においても電子の振動が飽和することはないと考える。また、プローブ側面の金属膜部分も照明されているためにプラズモンが励起される可能性があるが、ここで用いたモデルでは側面の金属が厚いので、空気－金属界面の振動が誘電体－金属界面の振動に結合することはない。

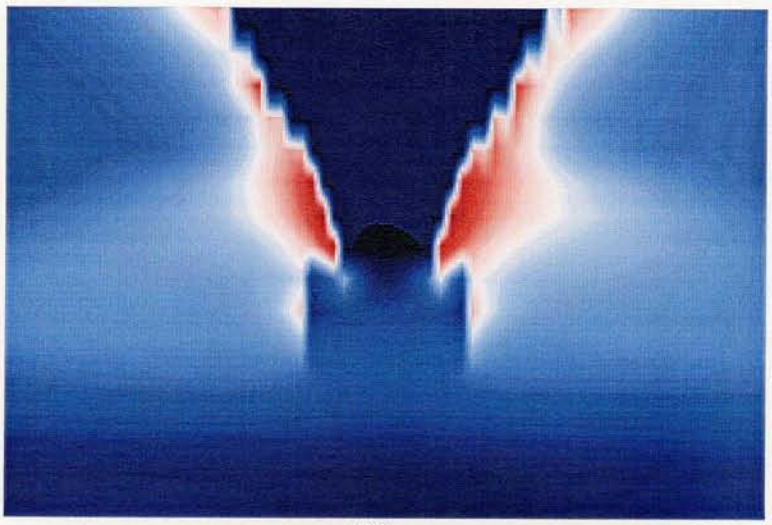
図２－１１に、プローブ内部の電場を３次元表示した。



(a)

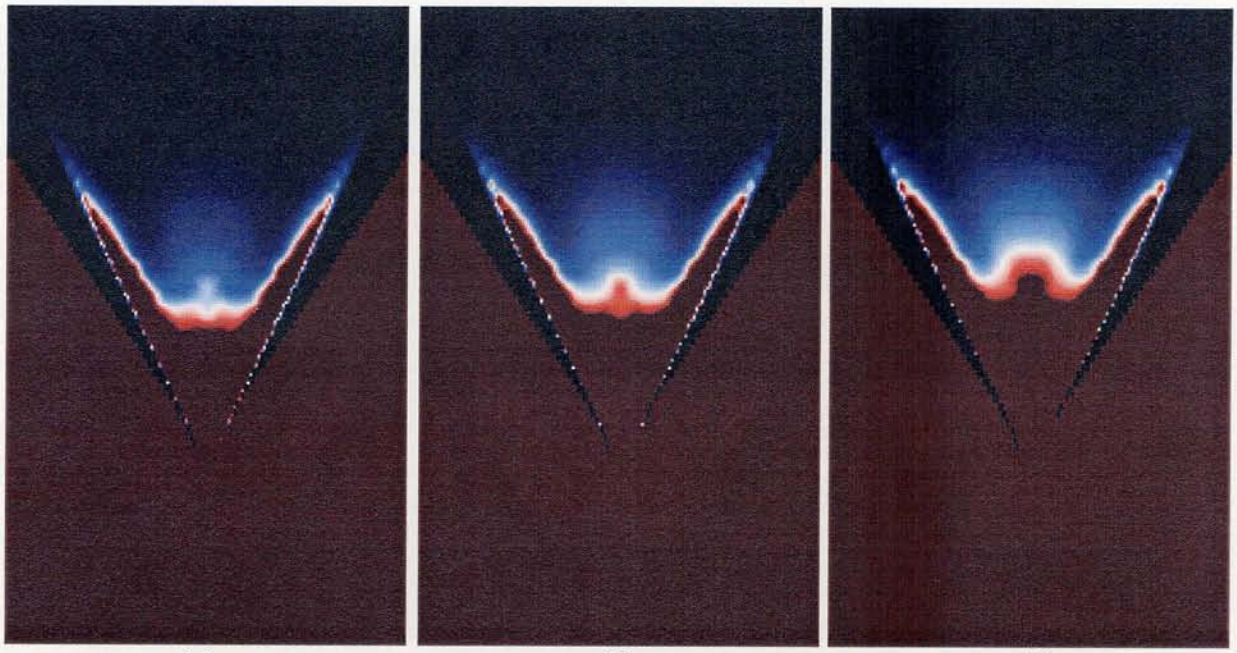


(b)



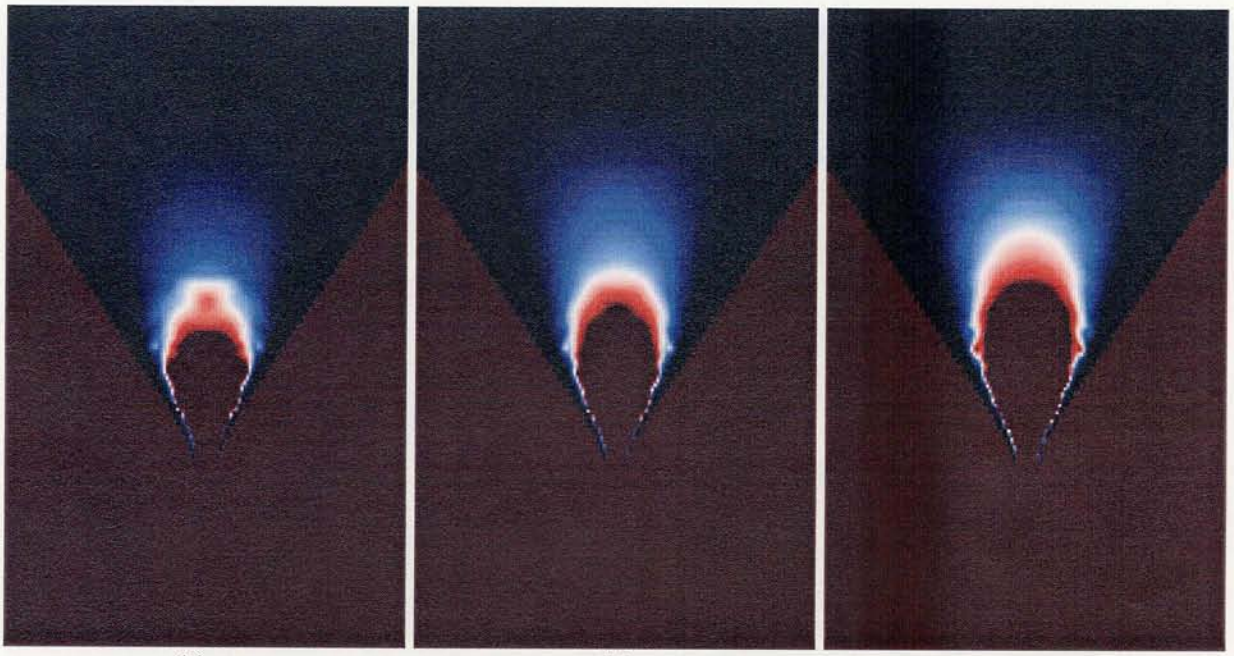
(c)

図２－８，プローブ先端近傍の電場分布（一定高度走査法）



(a) (b) (c)

図２－９，プローブ内部の電場分布（ｐ偏光方向）



(a) (b) (c)

図２－１０，プローブ内部の電場分布（ｓ偏光方向）

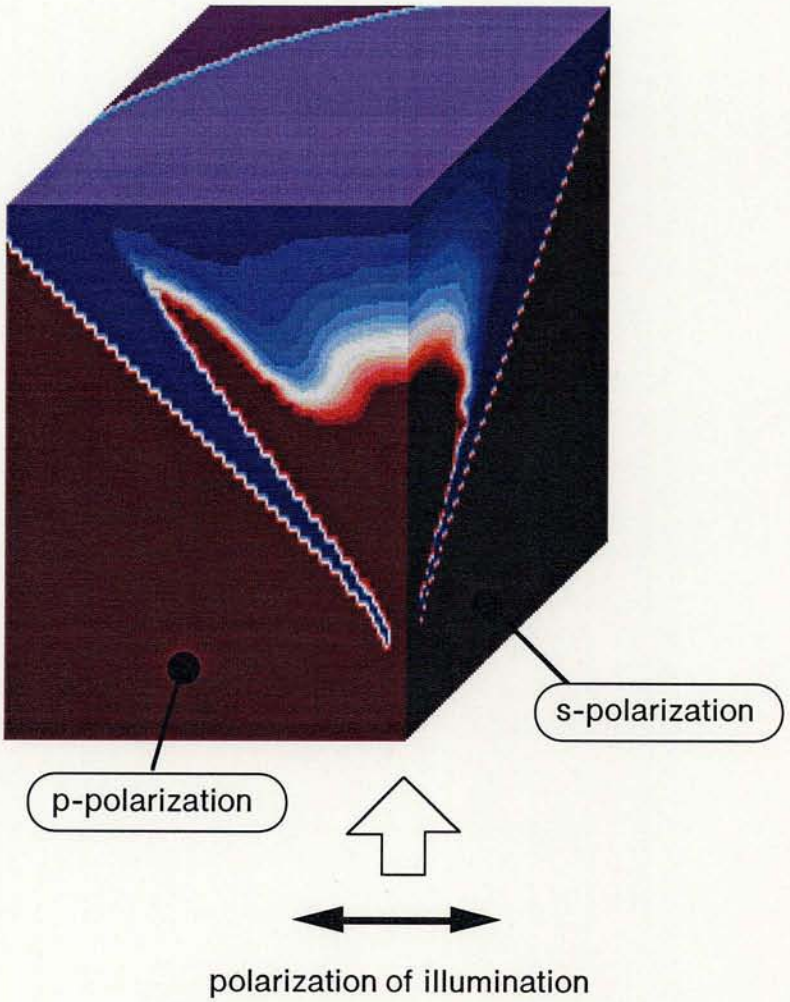


図２－１１，プローブ内部の電場分布（３次元表示）

２－５．プローブと試料との間の距離によるＮＳＯＭ像の差異

プローブと試料の間の距離がＮＳＯＭ像に与える効果を調べるために、プローブと試料との間の距離を変えて、ＮＳＯＭ像の計算をおこなった。一定距離走査法によるＮＳＯＭ像と、一定高度走査法を用いたときのＮＳＯＭ像を、それぞれ図２－１２(a) (b) に示す。プローブと試料間の距離は、一定距離走査法の場合には、プローブと試料との間隙（ギャップ）で定めており、一定高度走査法の場合には、試料突起の最上部からのプローブの高さで定めている。

図２－１２(a)に示すように、一定距離走査法では、プローブが試料から離れるに従って強度が低下してくる。プローブと試料との距離が近いときには、距離による相互作用効果のために、突起部分でもそれ以外の部分でも強度が高くなっている。距離が離れるに従って、突起部分のみで強度が高くなっている。これは、距離による相互作用の効果が薄れて、突起部分に局在する高波数のエバネッセント場がプローブにカップリングする成分の方が支配的になっているためであると考えられる。試料の直径はλ/5であるので、試料からλ/5程度離れた位置までは形状の空間周波数情報は保たれていると考えられる。そのため、6λ/70程度の距離でも超解像性を保っており、分解能はほとんど低下していない。

一定高度走査法で計算した結果を図２－１２(b)に示す。この走査法でも、6λ/70程度の距離では超解像性を保っている。距離が離れるに従って突起部分で強度は低下は低下している。一方、突起部分以外のところでは距離ｈが大きくなっても強度があまり変化していない。これは、プローブと試料の間の間隙が小さくなるに従って非線形的に検出強度が大きくなることを示している。

２－６　プローブの走査方法による像の差異

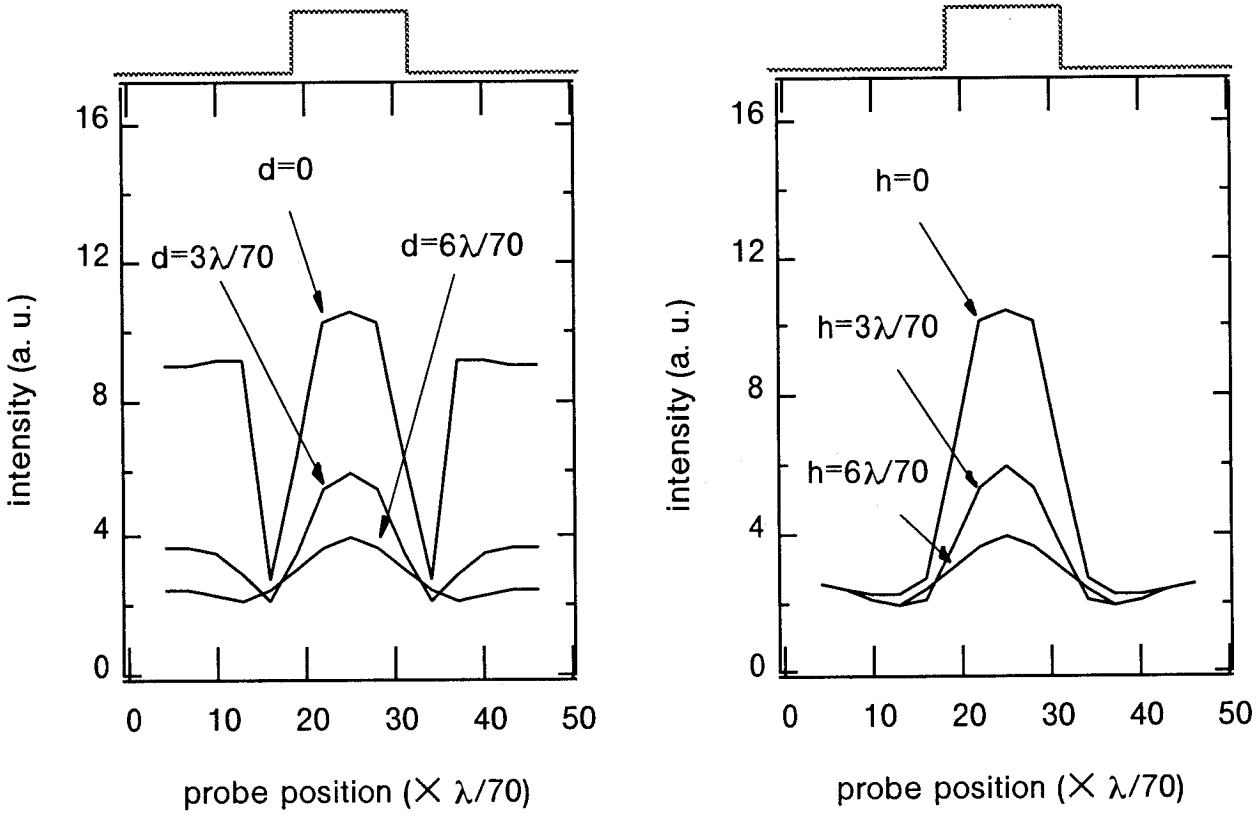
試料表面からの距離に応じてエバネッセント場は減衰するという考え方が一般的であったので、試料の光学特性を測定するためには、プローブは試料の表面形状に追従して走査するべきであると考えられていた。このため、現在では多くのＮＳＯＭシステムでは一定距離走査法が用いられており、走査電子顕微鏡（Scanning Tunnelling Microscope：ＳＴＭ）［Binning, 1982］・原子間力顕微鏡（Atomic Force Microscope：ＡＦＭ）・摩擦力顕微鏡（Shear Force Microscope：ＳＦＭ）などの表面形状に追従するフィードバックを行いながらプローブを走査する。しかしながら、図２－２でも明らかなように、光学特性の変化していない（屈折率分布のない）試料に対しても、試料の形状に沿ってエバネッセント場ができるわけではない。

光多重散乱はプローブと試料との間の距離に依存する部分が大きい。このため、一定高度走査法における像からは、プローブと試料間の距離、つまり試料の表面形状の情報を多く読みとることができる。

一方、一定距離走査法では、ランド部分（突起の部分以外の部分）でも強度が高くなっ

ている。これは、突起部分でもランド部分でも、プローブと試料との間が一定になっているためである。なお、一定距離走査法のエッジ部分で強度が低下する理由は、エッジ部を走査する時に、開口と試料の間が急に離れるためである。この現象は、階段状に結晶成長させた試料を観察する際に見られたという報告が成されている［Vanden Bout, 1996］。

図２－１２(a)と(b)との像は、ｄ，ｈが大きくなって6λ/70程度になると、似通ってくる。プローブと試料との間の距離が大きいときには、プローブとの相互作用の効果が薄れるため、走査方法によるＮＳＯＭイメージの違いが少ないからだと考えられる。



(a) 一定距離走査法　　(b) 一定高度走査法

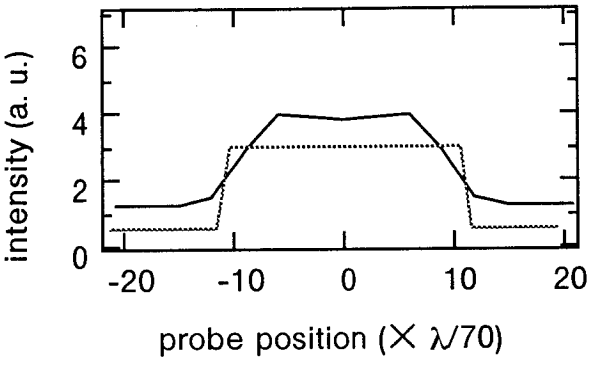
図２－１２，プローブ－試料間の距離とＮＳＯＭ像（ｐ偏光）

２－７．微小開口プローブが有する空間周波数特性

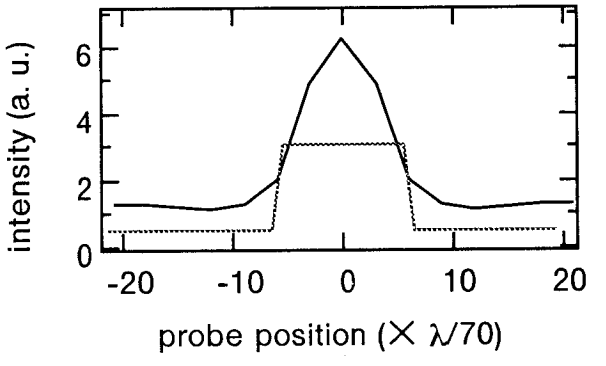
図２－１３に、試料突起の大きさを変えたときのＮＳＯＭ像について計算による比較を示す。プローブ走査方式は一定高度走査法とする。円柱状の試料の直径は、(a) は22λ/70（プローブ外径より大きい），(b)は 11λ/70（プローブの外径に等しい），(c) は7λ/70（プローブ開口に等しい）としたときのＮＳＯＭ像である。(a)の場合のように、試

料の円柱の直径がプローブ外径よりも大きいときには、形状を良く表した像が得られている。ただし、最も強度が高くなるのは構造のエッジであり、中央部ではそれより少し低い強度となっている。ここで注目したいのは、試料のエッジ付近での像である。図２－１３において、突起部分の左側から右へとプローブを走査させた場合、エッジに近づくにしたがって検出強度はゆるやかに減少する。一方、突起の中央から左へと走査したときには強度が増加する。このエッジにおける像は、位相物体の境界面を観察するときに見られるBecke線の振る舞いに類似している。このエッジ効果は、円柱の径が比較的大きいときには、左のエッジによるものと右のエッジによるものとが分離して表れている。ところが、(b)(c)のように円柱の直径がプローブ程度以下のサイズになるときは、左右のエッジによる効果が重畳し、中央部で検出強度が高くなっていると考えられる。

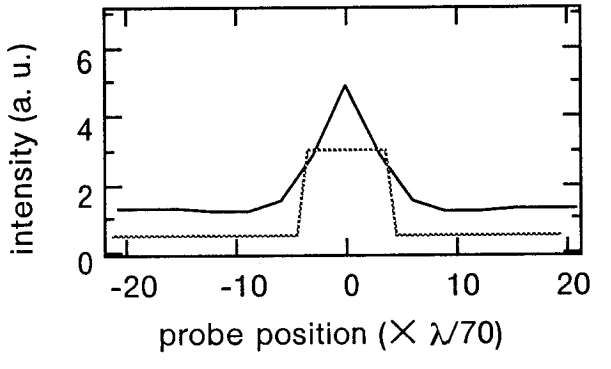
試料のサイズと中央部での検出強度の関係をグラフに示したものが、図２－１４である。最も高い検出光が得られるのは、試料のサイズが金属コートまでを含めたプローブの外径に一致するあたりである。試料のサイズがそれより大きくても小さくても、強度は減少する。プローブは、試料の空間周波数によって検出光の強度が異なるというフィルター特性を持っているということが分かる。



(a) $\phi = 22\lambda/70$



(b) $\phi = 11\lambda/70$



(c) $\phi = 7\lambda/70$

図２－１３，試料構造の大きさとＮＳＯＭ像との関係

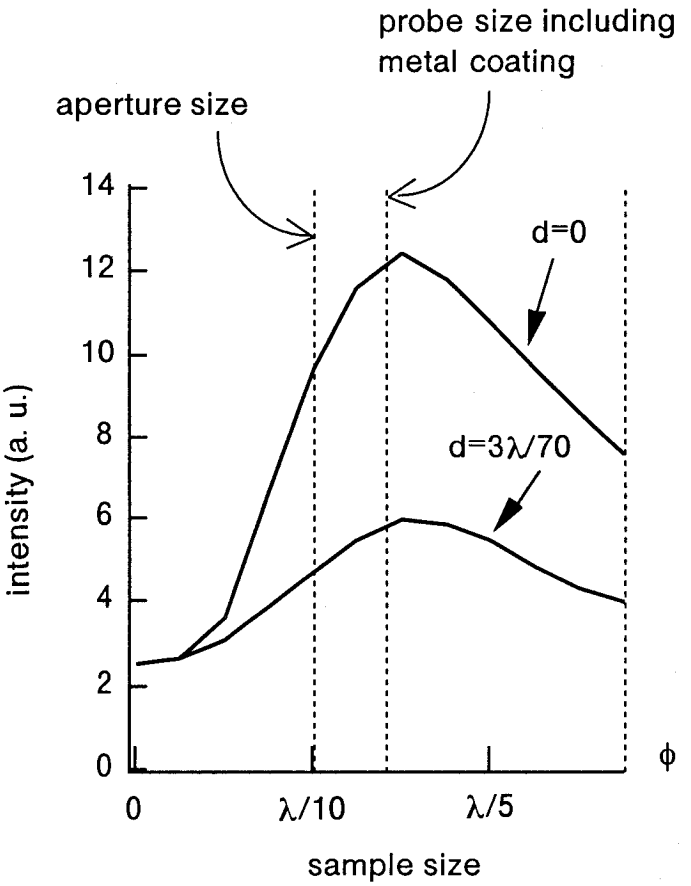


図２－１４，試料構造の大きさと検出強度との関係

２－８．複素屈折率分布をもつ試料に対するＮＳＯＭ像

この節では、試料が屈折率分布および吸収率分布をもつ場合のＮＳＯＭ像を求める。

計算に用いたモデルを図２－１５に示す。試料は表面形状が平らであり、表面には円形の領域に基板と異なる複素屈折率が分布しているとする。基板の複素屈折率をn_1、表面に分布している試料の複素屈折率をn_2とする。基板の複素屈折率は特に断らない限り、n_1=1.5 とする。プローブは、アルミニウムの薄膜（屈折率0.83+6.3i, 厚みλ/5）をコートした微小開口プローブである。先端に設けた開口径は、これまでと同じくλ/10とする。プローブの走査法は、試料表面が平らである場合には、一定距離走査法と、一定高度走査法とが同一となる。プローブと試料との間の間隙 d は、特に断らない限り d=3λ/70 に保たれている。

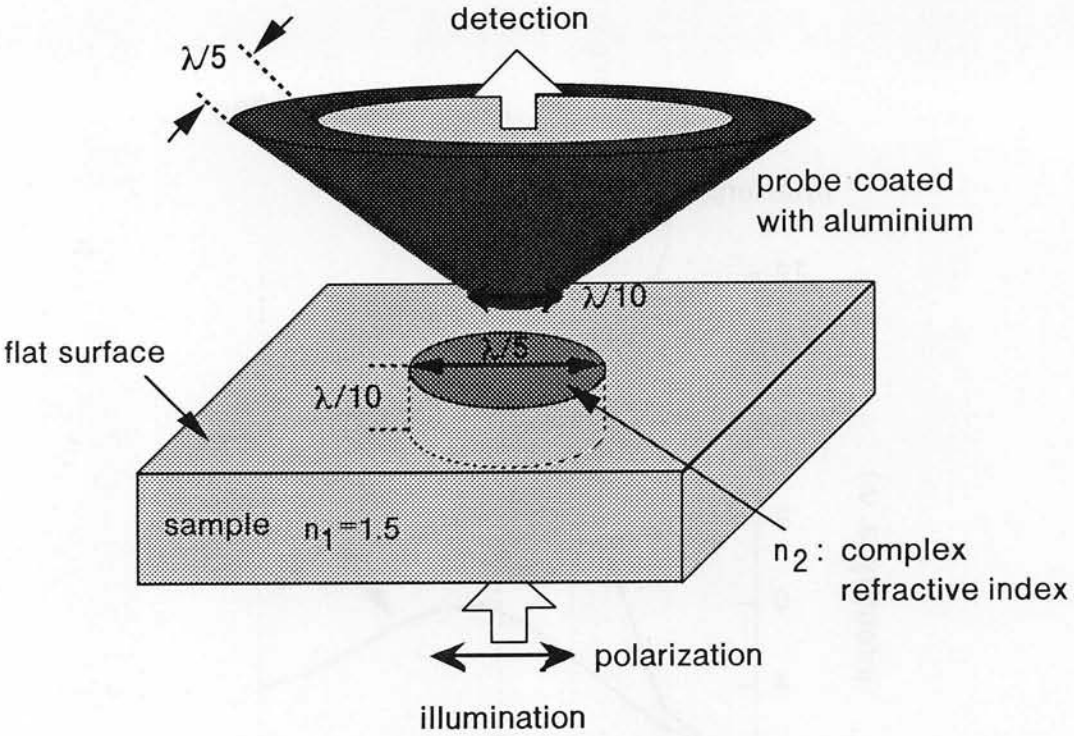
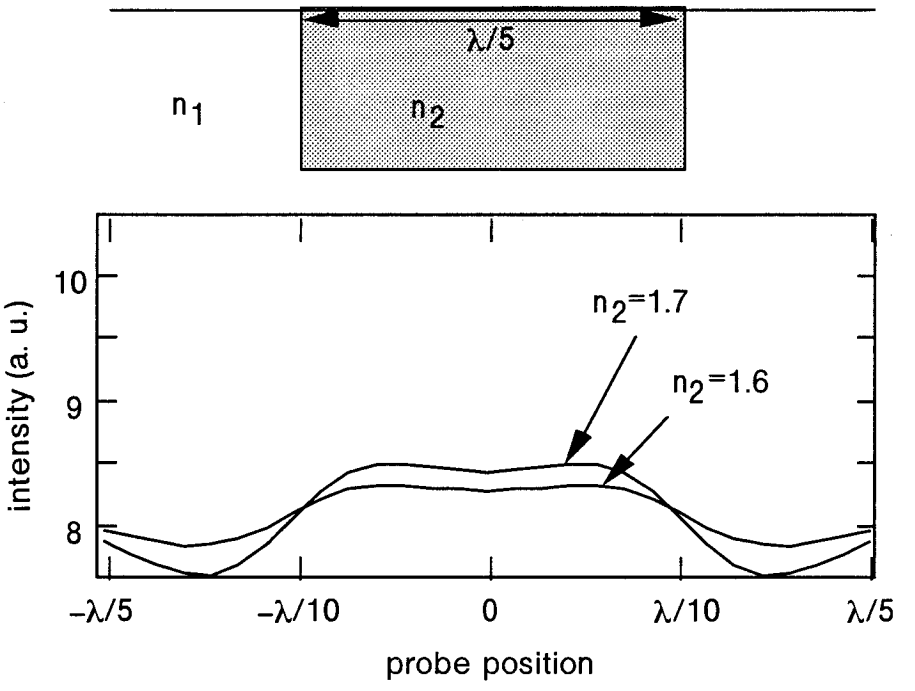


図２－１５，複素屈折率分布をもつ試料に対するＮＳＯＭモデル

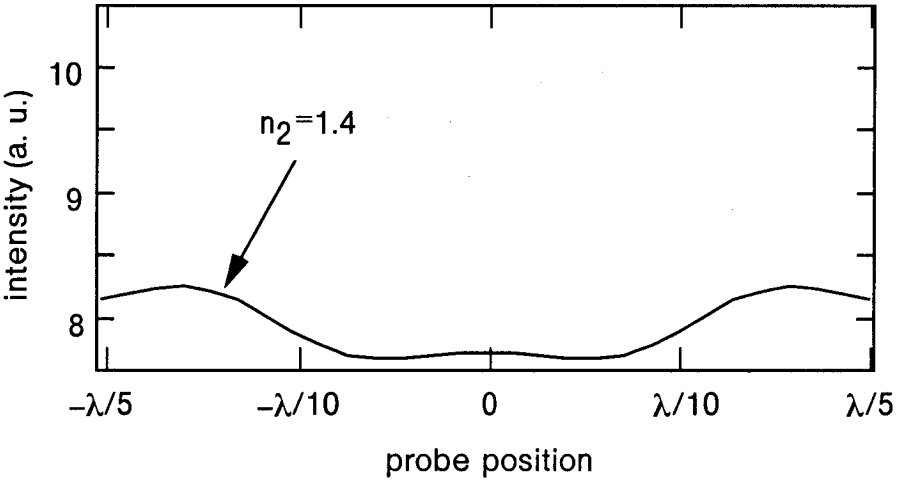
図２－１５のモデルをＦＤＴＤ法に従って３次元でモデル化し、ＮＳＯＭ像を求めた。

まず、試料の円形領域に、周囲の基板よりも高い屈折率分布（$n_1 < n_2$）を与えたときのＮＳＯＭ像を図２－１６(a) に示す。２つのグラフは、それぞれn_2=1.6, 1.7 としたときの計算結果である。屈折率の高い部分では、検出強度が高くなっている。この様子は、表面に突起をもつ試料のＮＳＯＭ像（図２－６）に類似しているが、屈折率1.5の誘電体（突起部分）が屈折率1.0の基板（空気）に埋められているとみなせば、同様の像が得られることに対応づけることができる。また、基板の屈折率との差が大きくなるほど、コントラスト良く屈折率分布の観察が行えることもわかる。

円形領域の屈折率を、周囲の基板よりも低く（$n_1 > n_2$）したときのＮＳＯＭ像を図２－１６(b) に示す。基板の屈折率n_1=1.5 に対して、n_2=1.4 としたときの計算結果である。屈折率が周囲より低いところでは、検出強度も低く観察されると言える。



(a) $n_1 < n_2$のとき



(b) $n_1 > n_2$のとき

図２－１６，屈折率分布を有する試料のＮＳＯＭ像
（基板の屈折率：n_1=1.5）

次に、同じ円形領域に、吸収を与えた試料に対するＮＳＯＭ像の計算結果を図２－１７に示す。円形領域の複素屈折率は、それぞれ n_2=1.5+0.01i, 1.5+0.1iとした。吸収率分布を観察したときには、吸収の高い部分で検出強度が低くなる。また、吸収が無く屈折率分布のみを有する試料（図２－１６）では、屈折率が変化する部分で検出強度に振動が見られたが、吸収分布試料の場合には見られない。この理由は、ここで与えた試料モデルでは屈折率の実部が試料の吸収部分とそれ以外の部分とで同じなので、互いの媒質

の境界で光の位相変化が生じにくく、吸収のある領域を通過した光と、それ以外を通過した光による干渉パターンが見られないためであろう。

これとは逆に、基板側の吸収が強く、円形領域に吸収が無い場合のＮＳＯＭ像を図２－１８に示す。この場合にも、吸収を有する部分で検出強度が低下し、吸収変化があるエッジにおける検出強度の振動も見られない。

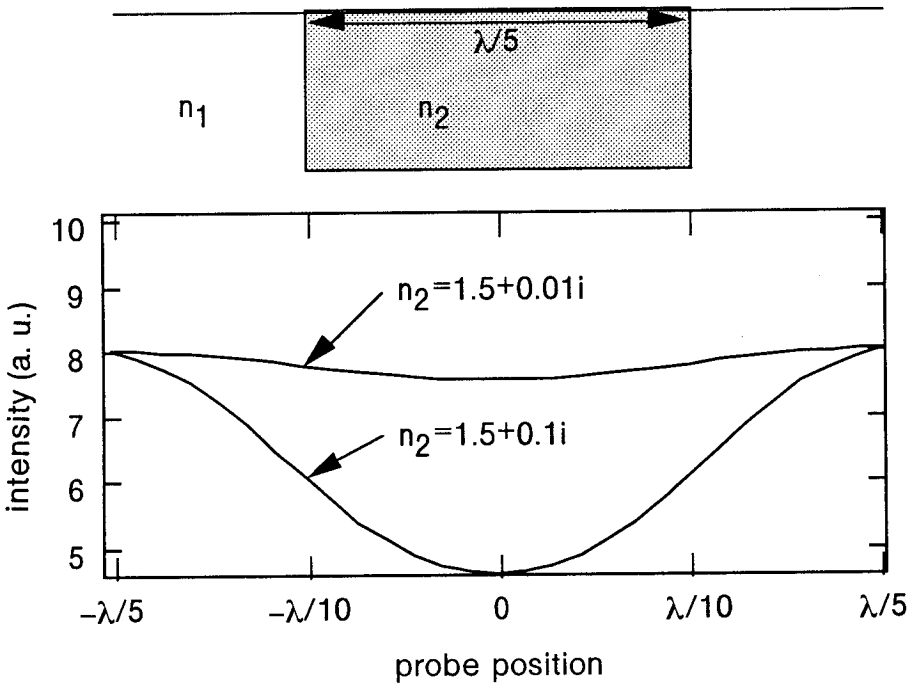


図２－１７，吸収率分布を有する試料のＮＳＯＭ像
（基板の屈折率：n_1=1.5）

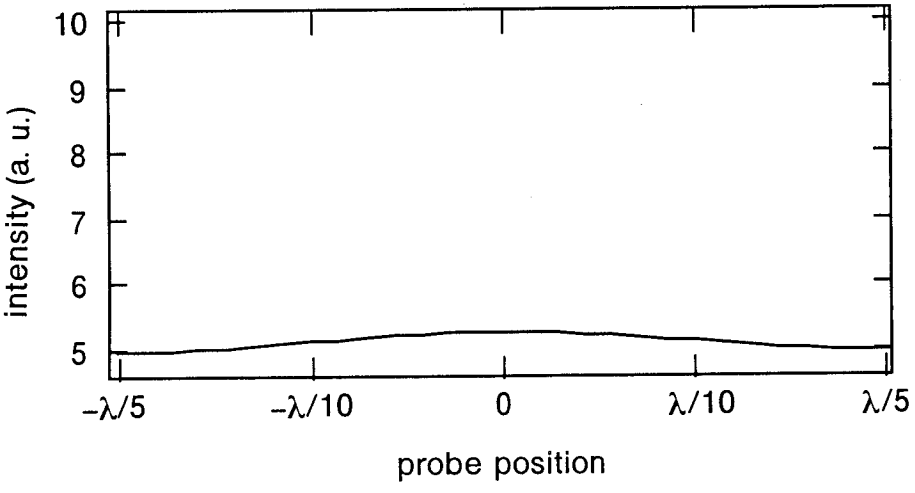


図２－１８，基板の吸収率の方が高い試料のＮＳＯＭ像
（n_1=1.5+0.01i, n_2=1.5）

屈折率n_2を与える領域をプローブ開口よりも小さくした試料に対して、ＮＳＯＭ像を

求めた。図２－１９に計算モデルを示す。屈折率n_1=1.5の基板に、複素屈折率n_2をもつ(3λ/70)×(3λ/70)×(λ/10)の領域が２カ所に分布しているとする。プローブおよびプローブ走査法については、前述の条件と同様である。

屈折率分布（n_2=1.6）に対するＮＳＯＭ像を求めた結果を図２－２０に示す。プローブと試料との間隙はd=0, 3λ/70の場合について調べた。屈折率n_2を与える領域がプローブ開口より小さい場合にも屈折率の高い部分で検出強度が高くなるが、図２－１６のときのようなエッジでの振動は見られない。屈折率n_2の領域が3λ/70なので、プローブと試料との間隙d=3λ/70程度になると、d=0の場合に比べて分解能が低下している様子が確認できる。

同様に、同じ領域に吸収率分布（n_2=1.5+0.01i）を有する試料のＮＳＯＭ像を図２－２１に示す。吸収を有する部分で検出強度が低下していることは、図２－１７の場合と同様である。

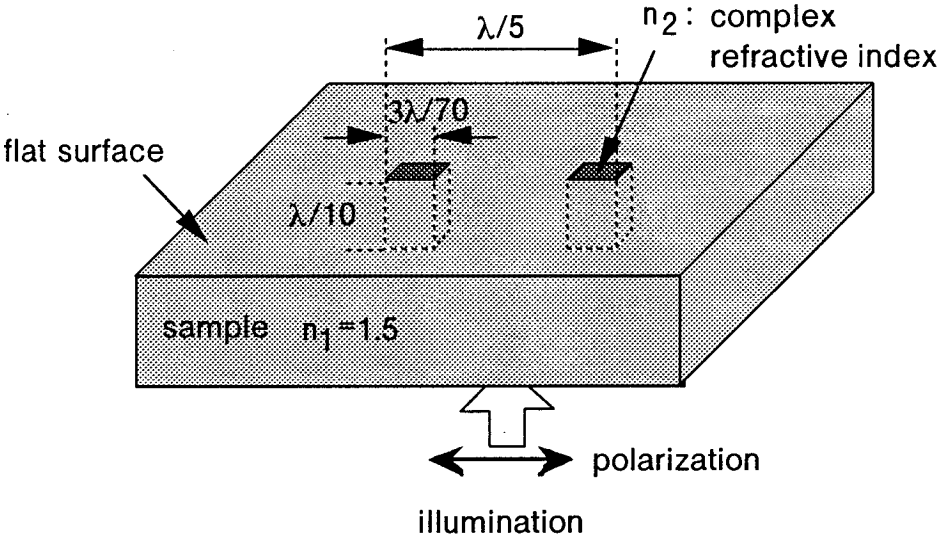


図２－１９，複素屈折率分布試料のＮＳＯＭ像の計算モデル（試料部分）

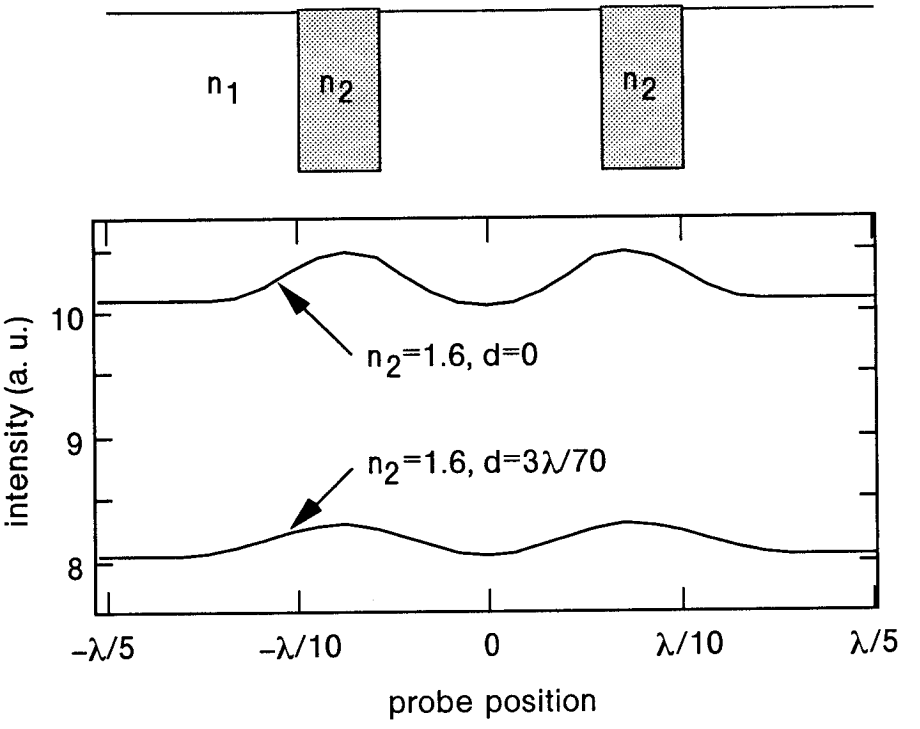


図２－２０，屈折率分布を有する試料のＮＳＯＭ像
（基板の屈折率：n_1=1.5）

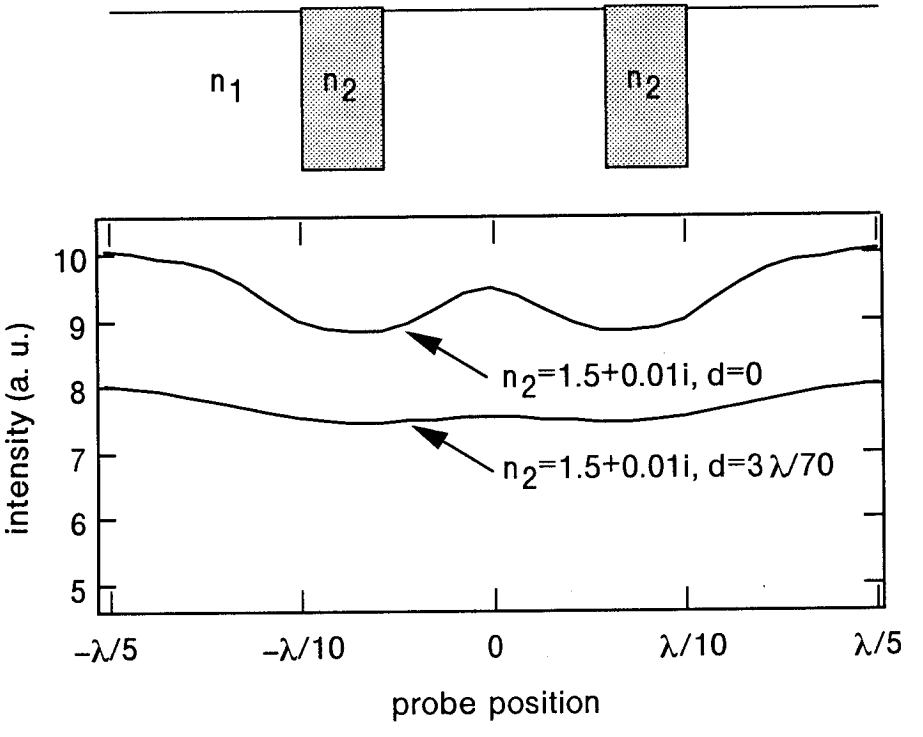


図２－２１，吸収率分布を有する試料のＮＳＯＭ像
（基板の屈折率：n_1=1.5）

2－9．考察

幾何学的な構造を持つ試料の像を求めた結果、ＮＳＯＭで得られる像は、試料表面で得られる電場の分布と異なっており、むしろ試料表面の形状を表した結果となっていることが分かった。特に、プローブを一定高度走査法で制御したときには、一定距離走査法の場合よりも良く試料形状を表している。ただし、この結果は、ＮＳＯＭ像から実際の試料の形状を求めるという逆問題については考慮していないためであり、今後は、逆問題についての解析から、それぞれの走査法がもつ特徴を検討する必要があると考えている。

本解析においては、光は試料側から垂直に入射している。ＮＳＯＭでは、全反射法による照明を行う場合が多いが、これは０次回折光（透過光）などの低次回折光の影響により、微細構造が検出しにくくなることを防ぐためである。試料の微細構造を表すエバネッセント場は、入射方向に関係なく形成される。ただし、全反射法をはじめとする偏斜照明を行った場合には、試料上のエバネッセント場は、試料の空間周波数が入射光の空間周波数に変調を受けた状態で表される。ここでは、この影響を避けるために垂直入射をおこなった。

また、入射光の偏光方向に対する依存性はほとんど見られなかったが、これは試料が異方性を持っていないからであり、グレーティングなどの方向性をもつ試料に対しては結果は異なるであろう［Inouye, 1995］。また、プローブには、試料構造の大きさに対するフィルター特性があることも確認した。最も効率よく検出される試料の構造のサイズは、その大きさがプローブの外径（金属コーティング部までを含めた直径）と同程度の場合である。これは、プローブによって検出される場は、プローブ開口内の電場だけではなく、開口の金属コート部付近にも強く関わっていることを示している。このため、空間分解能の高いニア・フィールド光学顕微鏡を作るには、金属コート部は、漏れのない限りできるだけ薄くなければならないと言える。

ここで示したように、ＮＳＯＭ像にはプローブと試料との間の多重散乱が強く関わっている。このプローブを挿入したことによって生じる作用は、試料の形状を表現することに関して、ＮＳＯＭ像に有利に働いていると言える。この効果を、さらに積極的に利用したイメージングの方法について検討する必要がある。ここで用いたプローブは、金属コートを施した光ファイバーの内部に光を導く形態であったが、さらに相互作用を高めるには、金属プローブを用いた散乱型ＮＳＯＭ［Inouye, 1994］をもちいる方法も有効であろう。金属は誘電体に比べてはるかに散乱係数が高いので、ファイバー中に光を導くよりも、散乱させる手法を用いる方が効率よく像を検出できると考えられる。

第３章　スリット・プローブの結像特性の解析とその赤外ＮＳＯＭへの応用

３－１．スリット・プローブ

微小円形開口をプローブに用いたＮＳＯＭでは、エバネッセント場が試料と相互作用する部分が開口内に限られる。このため検出される信号光強度が弱くなり、光量の問題を解決しなければならない。そこで微小円形開口の代わりに、１次元方向に延びた開口を持つスリットを設ければ、スリットに直交する方向に超解像性を持ち、かつ明るい光学系を実現することができる。多層膜断面の分析などの１次元的分布を有する試料に対して、このスリット・プローブはそのまま適用することができる。

２次元的に超解像を得ることは、Ｘ線ＣＴのバック・プロジェクションの原理を用いることで可能となる［河田, 1996］。スリット開口を通して検出できる光強度は、スリット開口全体での和となっているので、バック・プロジェクションを行うことと原理的に同等である。スリット・プローブを試料表面で１次元走査した後、角度を変えて１次元走査する。この操作を繰り返すことによって得られる多数の線積分データーに対して、ラドン変換を施し、２次元像を再構成することができる。ただし、プローブに偏光特性があれば、試料上のある特定の位置を測定する場合にも、スリットの向きによって検出強度が異なる。このときには、プローブの偏光特性を考慮する必要がある。

３－２．スリット・プローブに対する偏光特性

一般的な２次元構造を持つ試料に対して画像を得るためには、前節に述べたようにＣＴ的ラドン変換テクニックを使うことになる。このとき、問題となるのはプローブの偏光特性である。１次元ワイヤグリッドが赤外の偏光子として使われるように、１本のスリットもそれに直交する偏波面をもつ電場の伝達が支配的になることが予想される。そこで、入射場の偏光に対するスリットの射出側の電場を計算した。無限に薄い完全導体に設けられたスリット開口からの回折場は、解析的に解が得られている［Sommerfeld, 1954］。しかし、ここで考察している有限の導電率をもち、厚みのあるスリットに対する解を解析的に得ることは困難である。そこで、数値的な計算を行った。計算方法は、有限差分時間領域法［Yee, 1966］を用いた。計算のモデルを図３－１に示す。入射光の波長を6μm、スリット開口を0.2λ（1.2μm）とし、スリットの周りの金属は金（屈折率4.97+35.9ｉ（波長６μm）、厚さ300nm）とした。これは、後に示す実験と同じパラメーターである。

図３－２ (a) は、ＴＥ波（ｐ偏光）を入射波としたときのスリットによる回折場（電場強度分布）である。スリット開口のエッジ部で電場強度が強くなっている。ＴＥ波は、電場の振動方向がスクリーンに対して平行であるため金属表面での電場がほ

ぼ0となるが、開口内部のエッジ部分に対しては垂直であるため、金属面に電荷を誘起し、電場が局在している。また、ＴＥ波がスリットで回折すると、金属スクリーンに平行な成分 Ex（ｘ成分）と垂直な成分 Ez（ｚ成分）とを得る。それぞれの電場分布を図３－２ (b) と (c) とに示す。ｘ成分は境界条件よりスリットの開口幅以内で、ｚ方向に局在場を形成するのに対し、ｚ成分は、金属スクリーンに垂直な成分であるので開口の外に場を有している。しかし、合成された強度（図３－２ (a)）は、ほぼスリット幅程度の部分が支配的であり、波長よりは小さな広がりである。ｘ成分の強度はｚ成分の２倍程度である。

図３－２ (d) は、ＴＭ波（ｓ偏光）に対する回折場である。局在スポットは開口幅以内に存在するが、その強度はＴＥ波の1/14であり、(d) ではほとんどその分布は見られない。ＴＭ波は、電場の振動方向がスクリーンに対しても開口内部のエッジ部分に対しても、平行であるため金属表面での電場がほぼ０となる。このため、微小な開口を通ることがほとんどできない。これは、ＴＥ波が、開口を効率よく通過することに対照的である。したがって、スリットによる回折場はほぼＴＥ偏光の入射成分が形成しており、それはＴＥ偏光化していると言える。

結論として、プローブの偏光特性は極めて顕著である。ゆえに、自然偏光された光源（赤外の場合には熱源が光源として用いられるので、自然偏光である。）を用いる限り、ＣＴテクニックを用いて二次元再構成が実現できると考えられる。

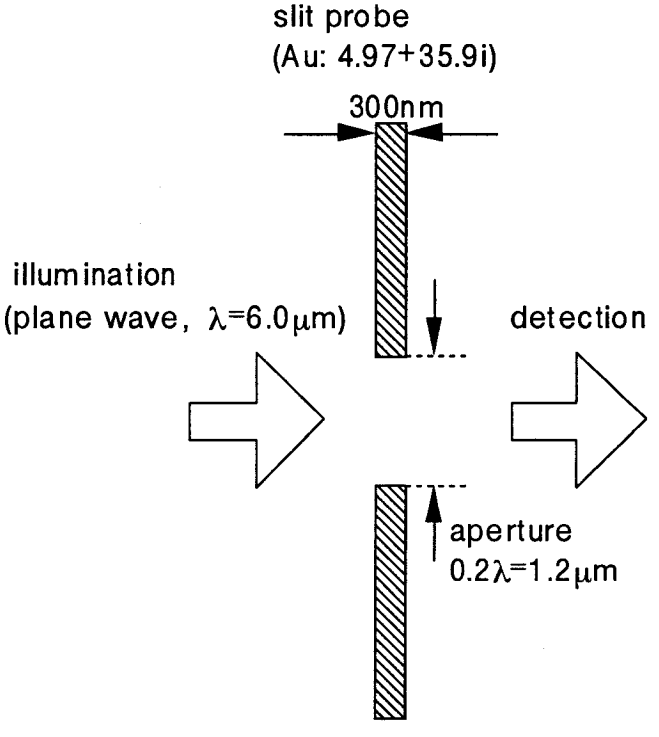
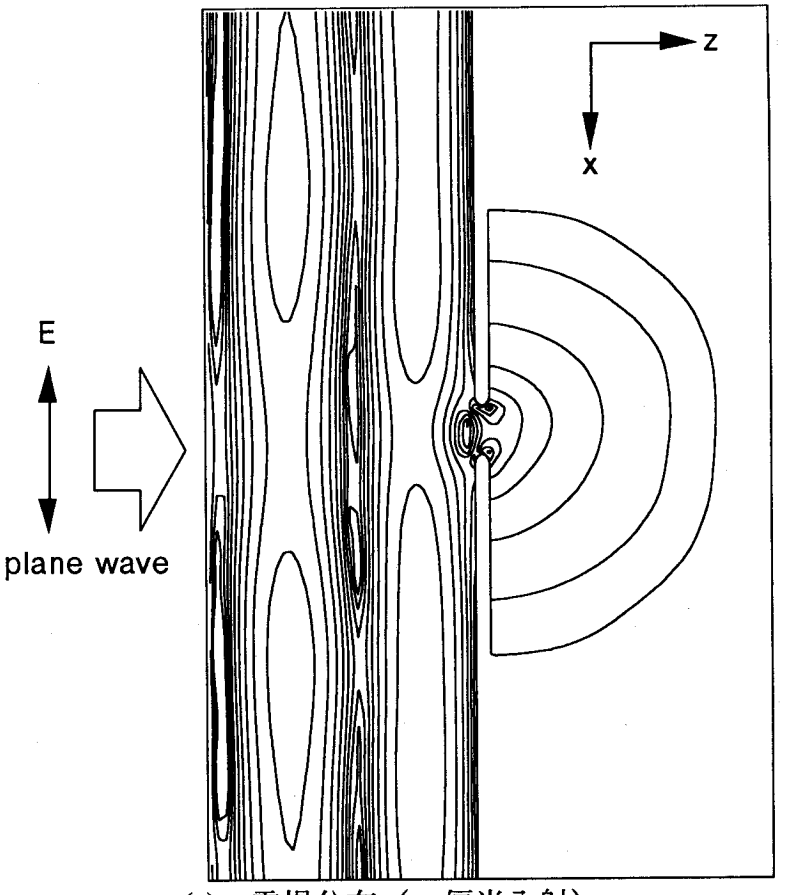
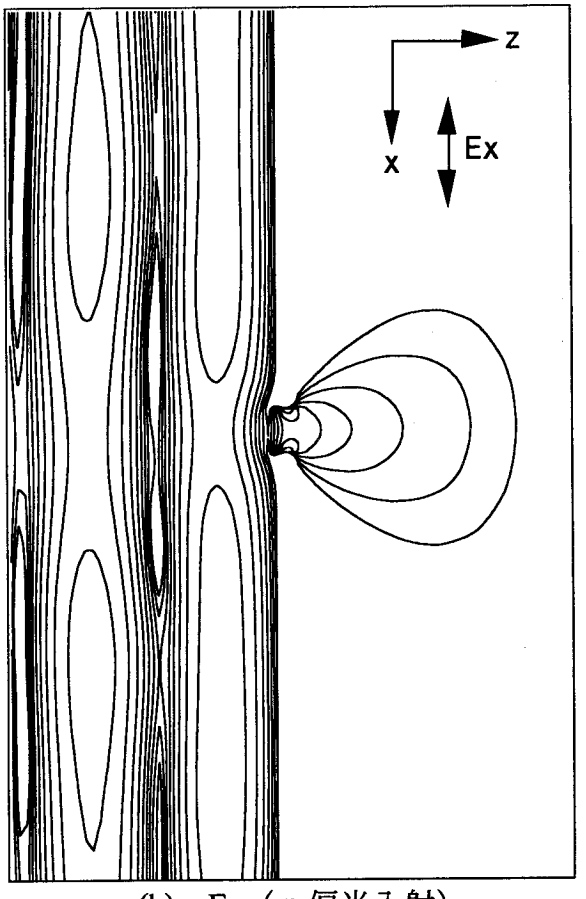


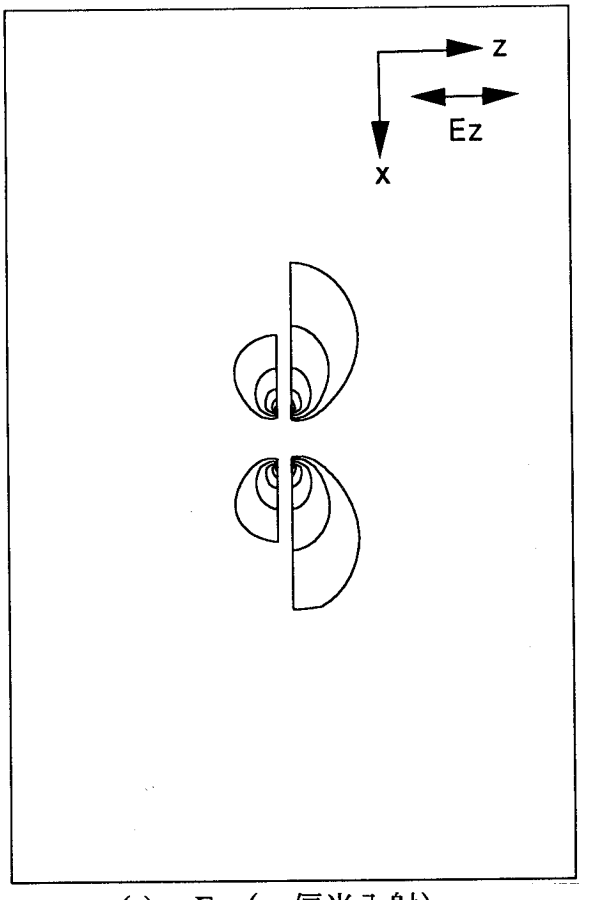
図３－１，スリット・プローブの電場計算モデル



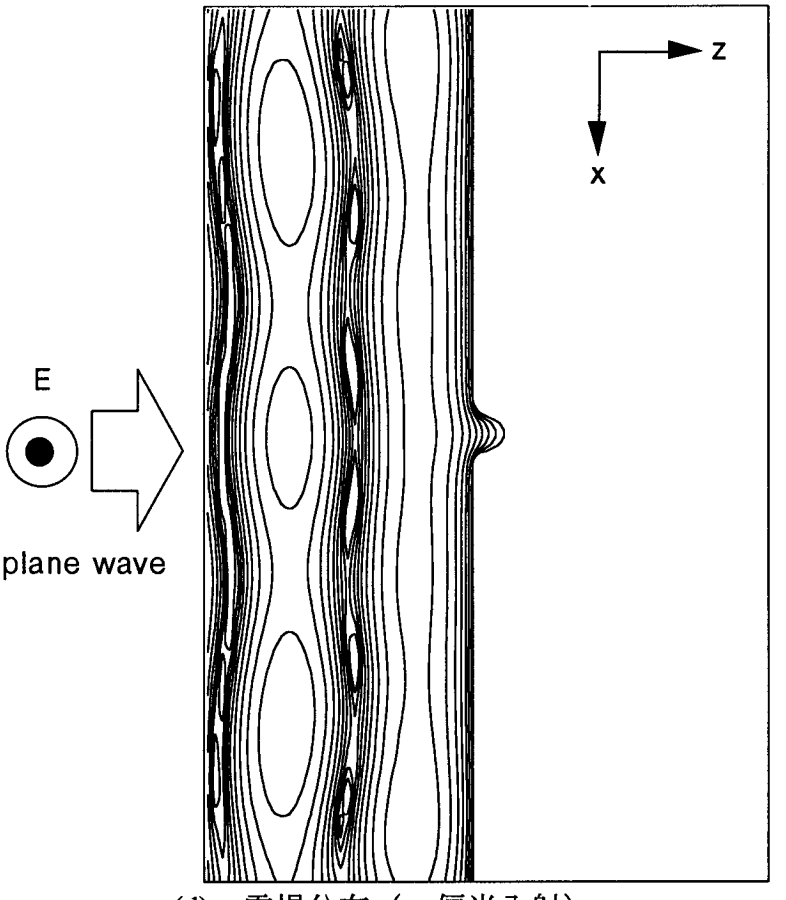
(a)　電場分布（p偏光入射）



(b)　Ex（p偏光入射）



(c)　Ez（p偏光入射）



(d)　電場分布（ｓ偏光入射）

図３－２，スリット・プローブに形成される電場分布

３－３．スリット・プローブの赤外顕微分光への応用

微小領域の有機物質の分析には、赤外顕微分光法が有効である。しかしながら、現在の赤外顕微分光法には、分解能と光量という２つの問題がある。

分解能の点では、赤外光の波長が2.5～25μmと長いために、観察像の空間分解能が低く、年々微細化されてきている材料分析・物質分析の要求を十分満足するものとは言えない。光量についても、赤外光領域では、明るい光源がないことや、広帯域で高感度な検出器がないこと、分光すればエネルギーを分けるのでさらに暗くなること、によるＳＮ比の低さの欠点がある。

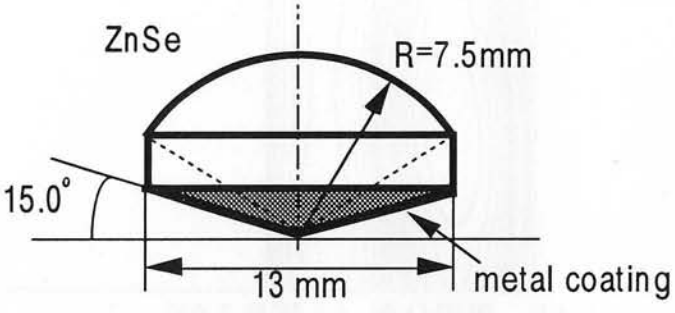
空間分解能を改善することは、ニア・フィールド光学顕微鏡を用いれば可能である。光量の問題については、これまで根本的な改善策が提案されていないが、これら赤外分光の問題点を緩和する試みはいくつか成されている。それは、レーザー光源を使ったＮＳＯＭ［Nakano, 1993］および全反射プリズムを用いたATRによるＮＳＯＭ［Nakano, 1994］が研究されてきた。それらにおいては、適当な成果を収めているものの、レーザー光源を使った場合については波長が固定されることによって分光分析

を行えないという点が問題になる。後者についてはプリズムの屈折率に比例するだけの空間分解能の向上が得られるが、波長による分解能の制限という問題の本質的な解決ではない。

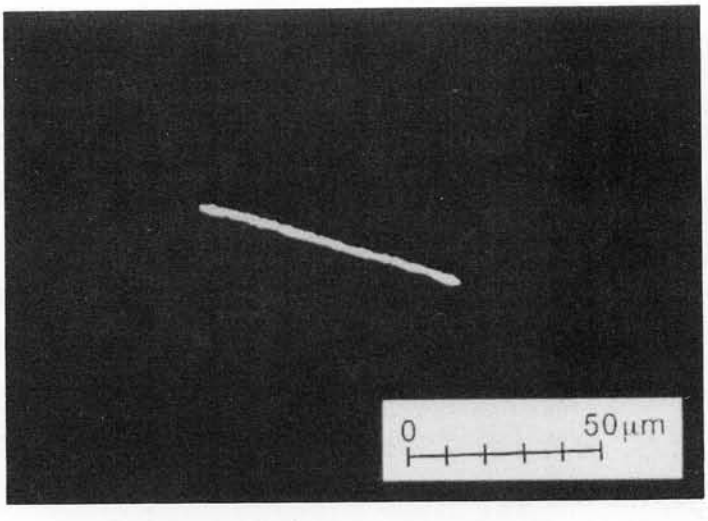
そこで、スリット・プローブを用いて赤外顕微分光の光量の問題点を解決し、かつ超解像性を有するＮＳＯＭの可能性を検討する。

３－４．スリット・プローブを用いた赤外ＮＳＯＭの実験

スリット・プローブを用いた赤外ニア・フィールド光学顕微鏡の実験について述べる［河田, 1996］。図３－３に、プローブの寸法と、先端に設けたスリット開口とを示す。



(a) プローブの寸法



(b) プローブ先端に設けたスリット開口

図３－３，実験に用いたスリット・プローブ

プローブの先端は可視のＮＳＯＭのように尖っておらず、鈍角とした。これは、先

端角が細くなると、光はほとんどプローブ内を導波できないからである。赤外の場合、光量を損なわないことは最も重要である。試料が深い凹凸を持たないように前処理するか、あるいは、凹凸のある試料に対しても、一定高度によるプローブ走査法を用いた観察を行えば、このプローブで問題はない。同様の理由から、プローブの反対側は半球状にした。これは透過率を高くするためと、プローブ先端に収差なく光束を絞るためである。スリットは先端が線状になったステンレス針をピエゾ素子でプローブに押しつけて開けた。このときの、プローブ上にできたスリットの幅は約１μmであり、長さは約70μmである。

図３－４は、試作した赤外ＮＳＯＭの全体のシステム構成である。これは、赤外フーリエ分光器（堀場製作所FT520）を改良したものである。Michelson干渉計から出た光は、Cassegrain対物鏡によって試料表面に集光される。試料は、ステージにより位置制御されており、プローブは、試料との距離が１μmになるように距離制御される。試料からの透過光は、プローブによって集められ、再びCassegrain対物鏡によりＭＣＴ検出器上に集光されて、検出される。出力信号はコンピューターによってフーリエ変換され、スペクトルが与えられる。

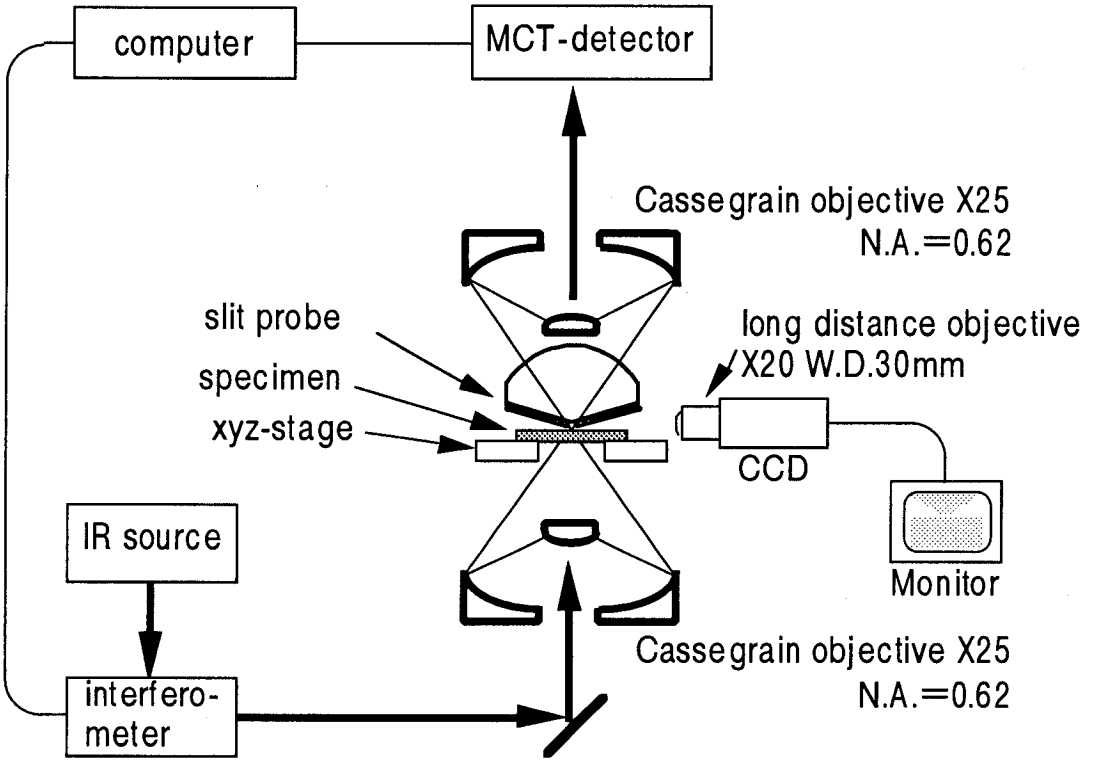


図３－４，赤外ニア・フィールド光学顕微鏡の実験系

この装置を用いて、有機膜の断面の観察を行った。試料は、エポキシ樹脂薄膜とポリプロピレン薄膜との２層フィルムの断面を用いる。２層フィルムをミクロトームで

厚み10μmに切断し、切断面に現れる２層の界面を観察する。ポリプロピレン層は、λ＝5.7μm（1741cm^{-1}）に強い吸収があり、エポキシ樹脂層にはこの波長に吸収はない。そこで、スリットを走査することによって得られた透過率スペクトルの空間分布のうち、λ＝5.7μmの空間分布を図３－５に示す。空間分布測定の結果、２つのフィルムの間を20%-80%で定義すると約1.4μm、10%-90%で定義すると約2.4μmの分解でエッジが観察できている。このとき用いたプローブのスリット開口幅は約１μmであった。波長5.7μmに対して明らかに超解像が得られていることが分かる。

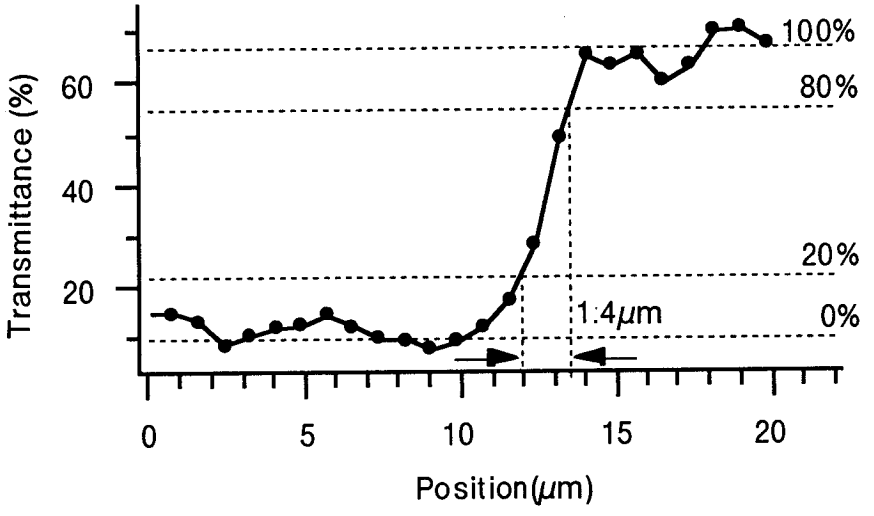


図３－５，有機薄膜のエッジ測定結果（λ＝5.7μm）

３－５．スリット・プローブによる超解像性の計算と実験結果との比較

図３－５の実験結果において、試料の厚みは10μmであった。10μmの厚みにおいて吸収される領域はスポットの広がりでもって積分化されるはずであるのに、実験結果では1.4μmの空間分解能が得られている。そこで、図３－４の実験系をモデルとして、ＦＤＴＤ法でシミュレーションして、ＮＳＯＭ像を求めた。計算のモデルを図３－６に示す。

プローブはZnSe（n=2.3）に金（n=0.27+7.1i）を厚さ300nmコートし、1.2μmのスリット開口を設ける。試料は、吸収の異なる２媒質（n_1=1.5, n_2=1.5+0.01i）から成る厚さ10μmの膜状とする。試料側から波長6.0μmの収束ガウシアン波［Davis, 1979; Barton, 1989］を、試料の上面が集光面となるように入射する。このときの集光面でのガウシアン波のビームウエストは、12μmとなるようにした。

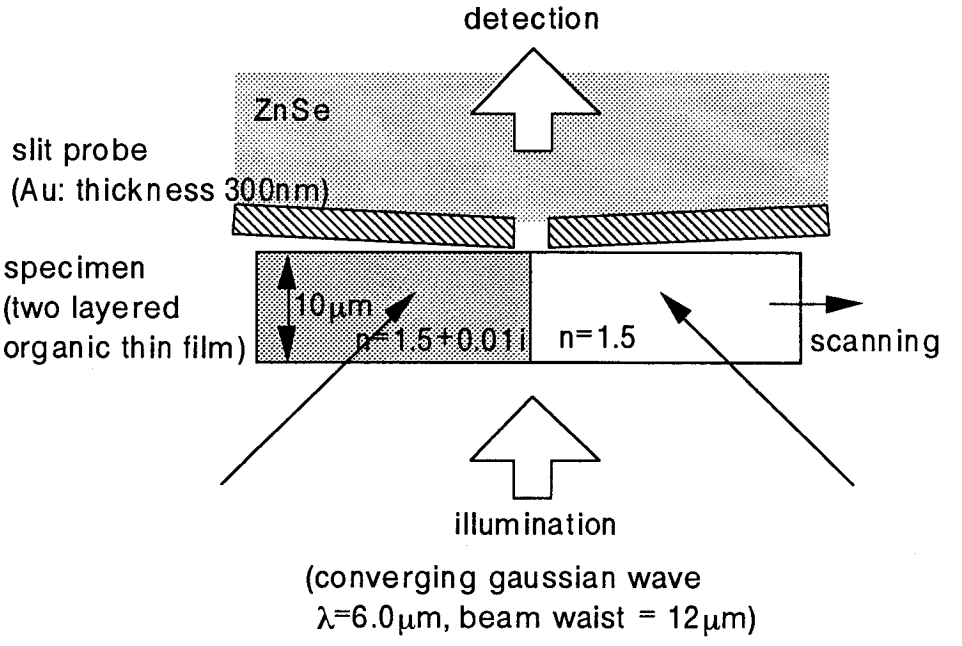


図３－６，赤外ニア・フィールド光学顕微鏡のシミュレーション・モデル

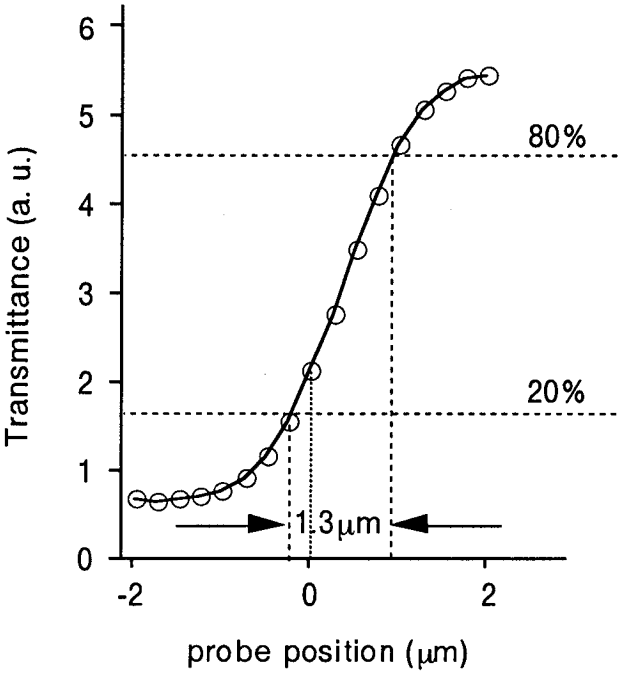


図３－７，吸収試料のエッジ像計算結果

ＮＳＯＭ像の空間分解能を評価した結果を図３－７に示す。このときの分解は、20%-80%で定義すると1.3μmであり、10%-90%で定義すると約2.0μmである。これはスリット開口幅の1.2μmより大きくなっているが、この理由は、プローブが開口よりも広い範囲の電場分布を開口内に導いているからである。プローブ側から光が入射し

ていると仮定すると、図３－２(a) に示したようにスリット開口の外側にもエバネッセント場を形成していることが分かる。これとは逆の過程により、開口の外側に局在するエバネッセント場は、スリット開口を通じて伝搬光に変換され得る。そのため、開口を用いたＮＳＯＭでは、像の空間分解能が開口幅よりも大きくなるということが理解できる。これは、光学におけるレシプロシティに従った考察からも述べられることである。つまり、試料の表面においてのみ、スリットプローブとの強い相互作用があるため、プローブ近くの電場分布が支配的になっているためであると考えられる。

３－６．スリット・プローブに対する位置と検出効率との関係

光学におけるレシプロシティーから、試料の厚みが10μｍであるにも関わらず、開口径程度の分解能が得られることが推測できるが、このことを検証するために、次のような計算を行った。

実験では吸収のある試料であったが、これはバビネの原理［Jackson, 1975］を考慮することにより、相補的に双極子放射とみなしても構わない。そこで、双極子がプローブに対してどの位置におかれたときに、プローブ開口からの検出強度が高くなるのかを求めることによって、プローブに対してどのような位置にある電場が効率よく検出できるかを見積もる。計算は、図３－８に示すように２次元のモデルとし、赤外ＮＳＯＭのパラメーターを用いた。スリットの試料側の面をｘ軸とし、開口の中心を原点とする。開口から離れる方向にｚ軸を設定する。双極子の振動数は真空中での波長６μｍに合わせて7.96THzとし、振動方向はｐ偏光に対応するようにｘ軸方向とした。スリットの開口幅は、1.2μｍ（= 0.2λ）である。

双極子が座標（ｘ，ｚ）にあるとき、スリット開口を通して検出される電場強度を図３－９に示した。双極子は、$-0.3\lambda < x < 0.3\lambda$, $0 < z < 0.12\lambda$ の空間内にあるときを計算した。双極子が、プローブのエッジ近傍に存在するときに、プローブで検出される効率が高くなっている。このことから、スリット・プローブによって検出される電場分布は、プローブ開口近傍の電場分布が支配的になっていることが分かる。また、図３－９は図３－２(a)に示した系の逆の現象（reciprocity）に対応しているとみなすこともできる。ただし、図３－２(a)では、プローブのエッジ近傍で電場のピークが形成されていたが、図３－９ではエッジ近傍で電場強度は急に増大するものの電場のピークは形成されていない。２つの相違の原因は、モデルが完全に逆の現象を示すものになっていないことが挙げられる。

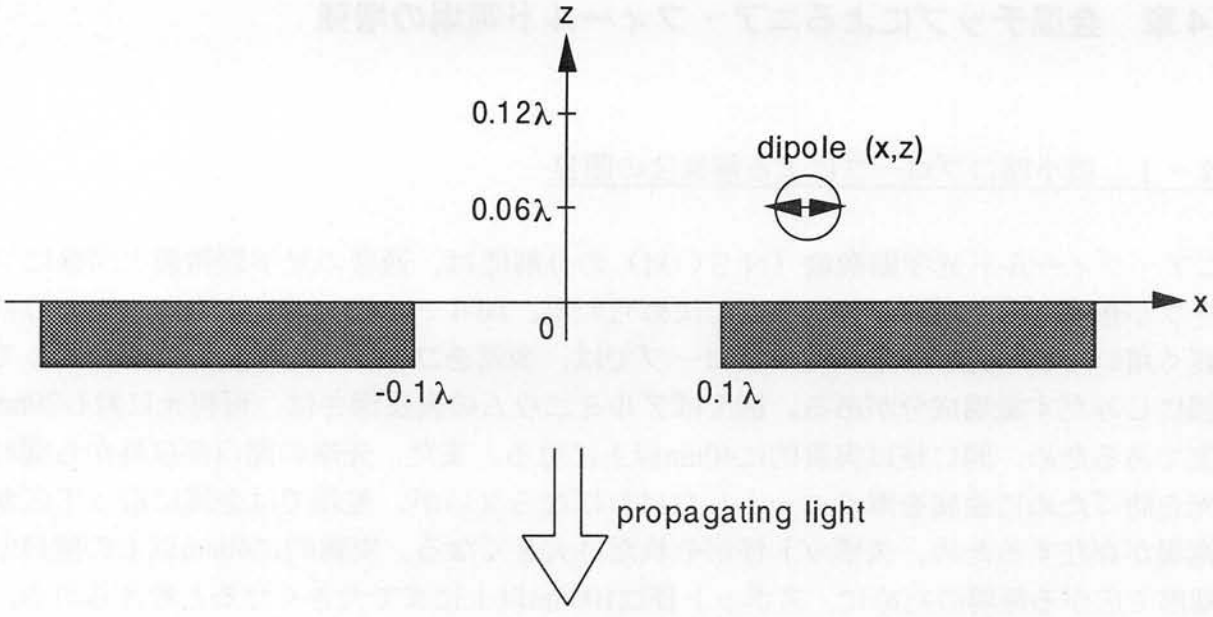


図３－８，スリット・プローブの開口付近に配置された双極子

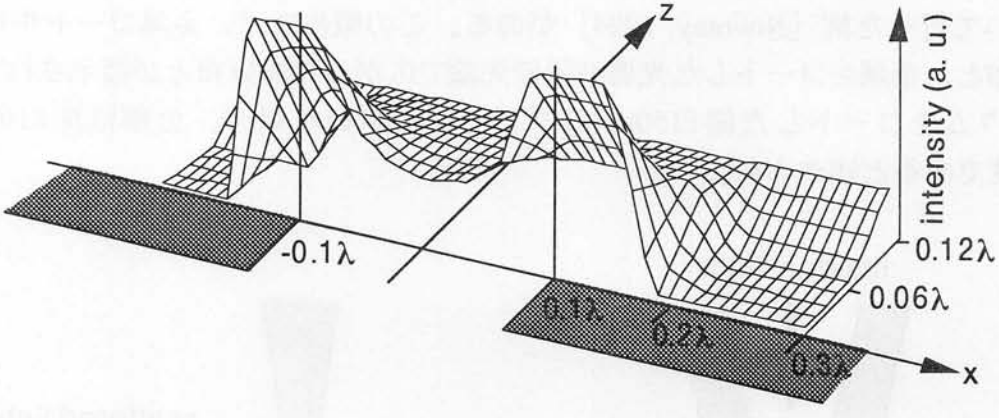


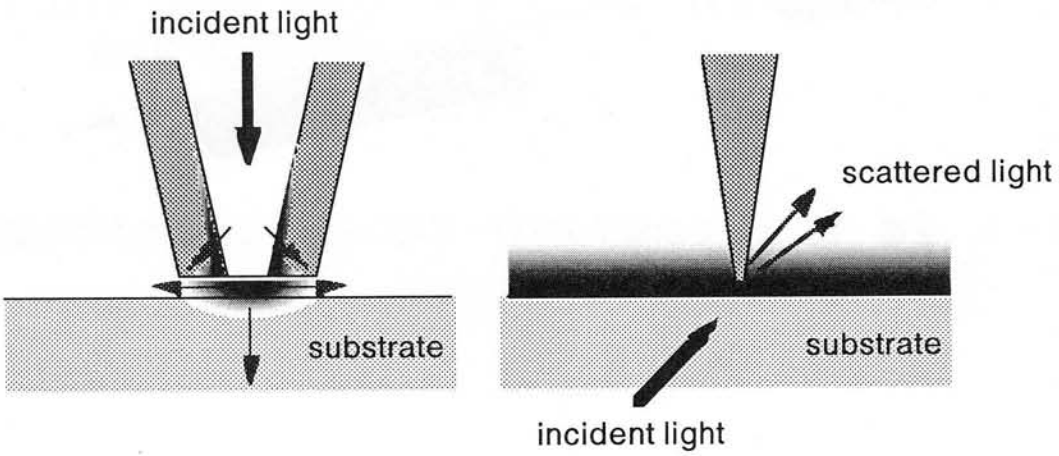
図３－９，座標（ｘ，ｚ）の双極子がプローブ開口を通じて放射する電場強度

第４章　金属チップによるニア・フィールド電場の増強

４－１．微小開口プローブによる解像度の限界

ニア・フィールド光学顕微鏡（ＮＳＯＭ）の分解能は、通常の光学顕微鏡と同様にプローブが形成するスポットの大きさで決められる。図４－１(a)に示すように、ＮＳＯＭで良く用いられる光ファイバー・プローブでは、金属をコートしても金属薄膜を通して外部にしみだす電場成分がある。例えばアルミニウムの表皮深さは、可視光に対し20nm程度であるため、開口径は実質的に40nm以上になる。また、先端の開口部以外から漏れる光を防ぐために金属を厚くコートしなければならないが、先端では金属に沿って広がる電場が存在するため、スポット径がそれだけ大きくなる。実質的に40nm以上の開口と先端部で広がる電場のために、スポット径は100nm以上にまで大きくなると考えられる。実験においても1992年のBetzigら以降、ＮＳＯＭ像の解像度の向上に大きな進展はみられておらず、微小開口プローブを用いたＮＳＯＭの分解は数十nm～100nm程度であると考えている。

金属をコートした光ファイバー・プローブの解析については、Novotnyらが二次元モデルを用いて行った例［Novotny, 1994］がある。この報告では、金属コート中にしみだす電場分布と、金属をコートした光導波路の先端で広がる電場分布とが図示されており、アルミニウムをコートした開口50nmのプローブを用いた場合、分解は開口の２倍の100nm程度であると述べられている。



(a) 金属コート微小開口プローブ　　(b) 金属針プローブ

図４－１，プローブに起因する分解能の限界

４－２．金属チップＮＳＯＭの特徴

微小開口のもつ分解能の欠点は、図４－１(b)に示されるようなアパーチャレス・プローブと呼ばれる金属針のプローブを用いて克服されている［Inouye, 1994; Zenhausern, 1994］。このＮＳＯＭの光学系の例を図４－２に示す。

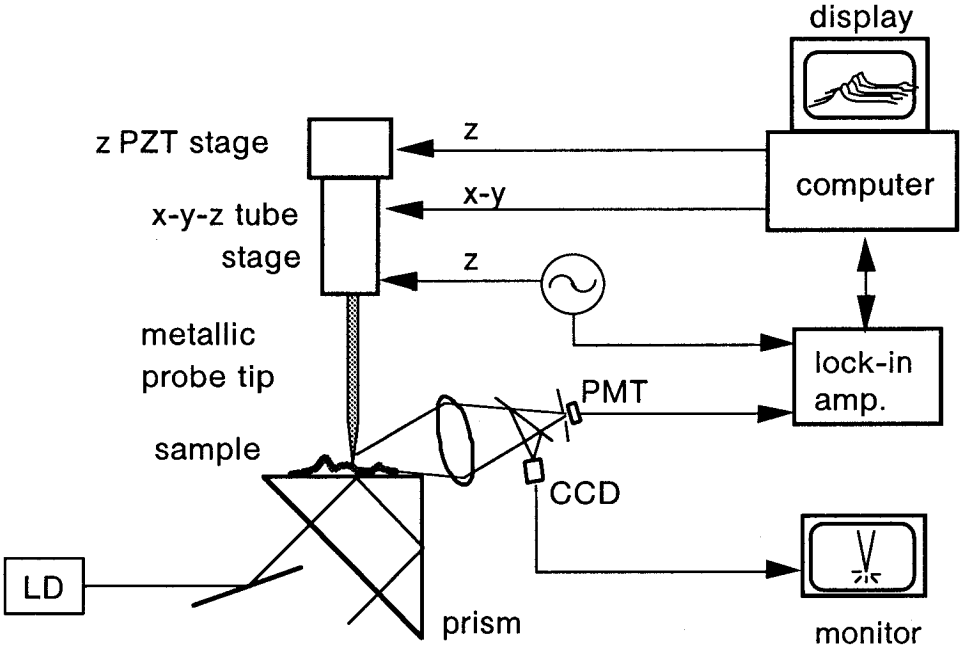


図４－２，金属チップをプローブとしたＮＳＯＭ［Inouye, 1994］

図４－２の光学系では、試料側から半導体レーザー（ＬＤ）によって光を入射し、試料表面に形成されたエバネッセント場を金属プローブによって散乱させる。散乱光は外部に設けた集光光学系を通じて検出器（ＰＭＴ）で測定する。このとき、散乱光にはプローブ先端以外からの散乱光もバックグラウンド・ノイズとして含まれている可能性があるので、ロックイン検出によりこの影響を取り除いている。この様式のＮＳＯＭは、散乱型ＮＳＯＭとも呼ばれる。金属針プローブは先鋭化することによって、光ファイバー・プローブより小さな領域に局在する光を散乱することができる。また、光ファイバーのように導波の際の損失もないので、プローブ先端の信号強度を、ほとんど低下させることなく検出できる。この方法では分解能の高い像が観察できるということが、実験的に証明されている［Inouye, 1995; Kawata, 1995; Zenhausern, 1995］。

一方で、この方式の欠点は、スポット付近の比較的広い範囲に光を照射することであると考えられる。この欠点のために、先端からの微弱な信号が、それ以外のはるかに広い領域からの散乱光に埋もれてＳＮ比を低下させるはずであるが、これまでの実験では、効率の良い観察が行えている。本章では、この理由を調べるために金属プローブに形成される電磁場分布の計算を行った。

４－３．金属チップＮＳＯＭの計算モデル

ここでもプローブと試料とが互いに近接しているため、計算には互いの電磁的相互作用を考慮する必要がある。解析的手法によっても、プローブのみを取り扱うことは可能であるが［Meixner, 1972; Van Blandel, 1985］、試料を含めた電磁場の計算や、プローブおよび試料に任意の形状を取り入れることは困難である。そこで、数値的手法によってこの問題を取り扱った。本章では、３次元モデルによる計算を行うため計算機メモリー容量を考慮して、Maxwell方程式を基にした有限差分時間領域法（ＦＤＴＤ）を用いた。

モデルとその入射平面での断面図を図４－３に示す。プローブは円錐形のプラチナ・イリジウム（Pt Ir）とした。プラチナ・イリジウムの波長 800nm, 400nm に対する屈折率は、それぞれ n=2.7+5.1i, 1.7+3.1i である。先端径は約20nmである。サンプルには、ガラスの屈折率n=1.6を与えた。入射光は、波長を800nmとし、ｐ偏光で試料側から臨界角以上の角度θ =45°で入射する。このモデルを200×200×50 cellsで離散化し、1cellは一辺 9.5nm の立方体とした。各点での電場及び磁場の値は、離散化した領域内の平均値である。

４－４．金属チップ先端での電場計算

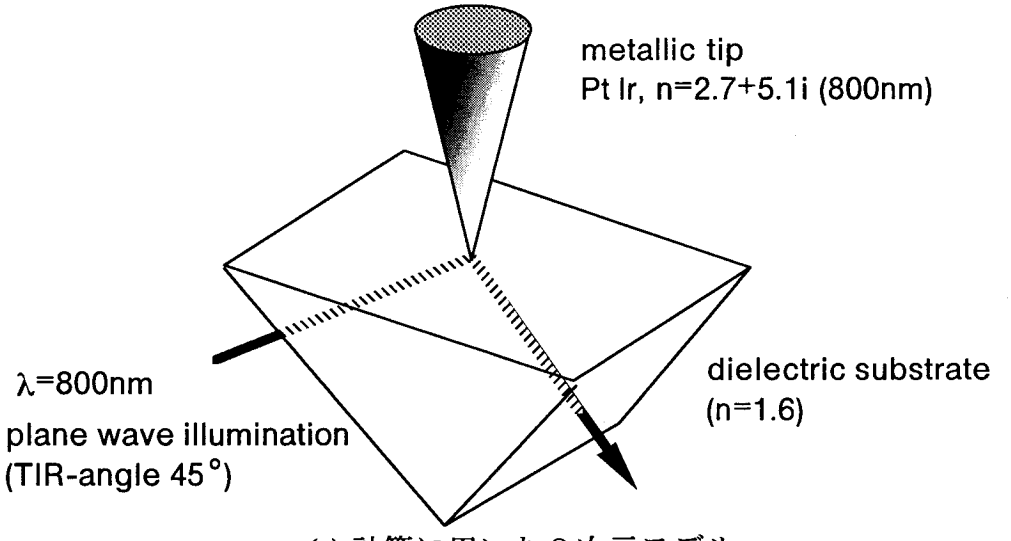
図４－３のモデルを用いて計算した電場分布の断面図を図４－４に示す。表示は、強度の最大値で規格化している。プローブの先端での電場強度が最大となっており、入射光に対して44倍の電場の増強効果が得られる。電場強度の高い部分は、エバネッセント場の波数ベクトルに対して前方散乱となる方向の金属プローブ表面にある。これはプローブが円錐形であるために、側面を回り込んだ表面波（creeping wave）が前方散乱の位置に集められるからである。基板の内部に生じる定在波は、入射光と全反射光との干渉によるものである。また、プローブに対して後方散乱となる方向にも定在波が生じているが、これは全反射によって生じたエバネッセント場とプローブによる反射光が干渉した結果生じたものである。

図４－４のｐ偏光入射時にはプローブ先端で強い電場が形成されていたが、図４－５に示すようにｓ偏光を入射したときには増強が見られないこと、および、図４－６に示すように誘電体プローブを用いたときには金属を用いたときよりも増強が弱い（7倍）ことを考慮すると、図４－４のｐ偏光入射による増強効果は、プローブ先端に局在した表面プラズモン［Raether, 1988］が励起されていることによるものと言える。このローカルモード・プラズモンの励起には、試料表面のエバネッセント場が直接励起している以外に、プローブ－試料間での多重散乱光も、関与していると考えられる。

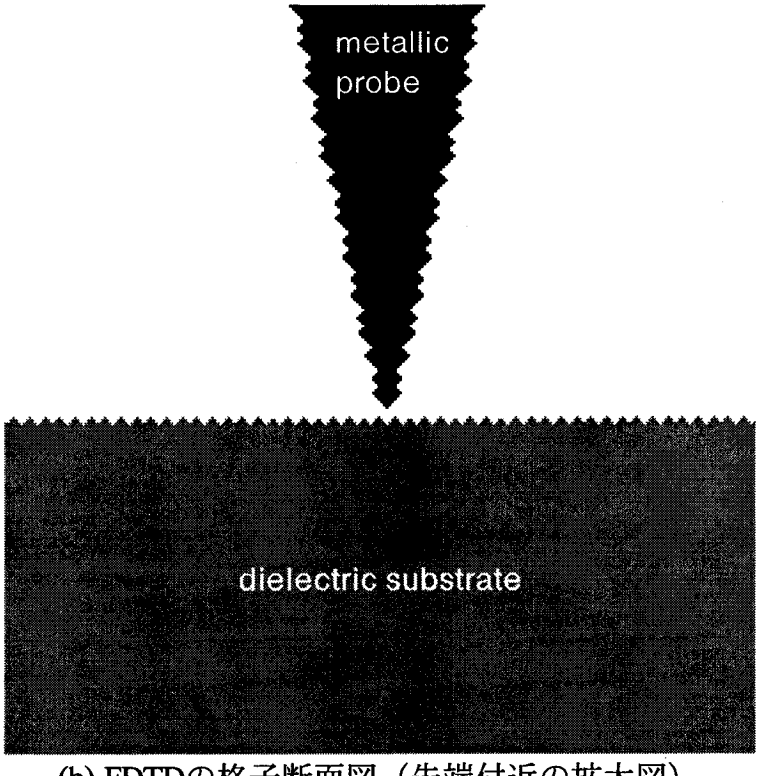
金属プローブによるスポット径を最大強度に対する$1/e^2$幅で定義すると約30nmとなり、波長 800nm に対して、27倍の超解像でスポットが形成できている。このことから、プローブ先端付近の電場応答が、選択的に取り出せることがわかる。

ここでは、ローカル・モードのプラズモンによる電場の増強が確認できたが、光で励

起するプラズモンとしては、表面モードが良く知られている。この表面モードのプラズモンを用いて電場を増強し、それに接する試料の屈折率および吸光度の測定効率を向上する研究が行われている。これと同様の原理によって、金属プローブを用いたＮＳＯＭにおいても、ローカル・モードのプラズモンによって増強された電場が試料の屈折率および吸光度の測定効率を向上することになり、試料像のＳＮ比を向上しているものと思われる。



(a) 計算に用いた３次元モデル



(b) FDTDの格子断面図（先端付近の拡大図）

図４－３，計算モデル

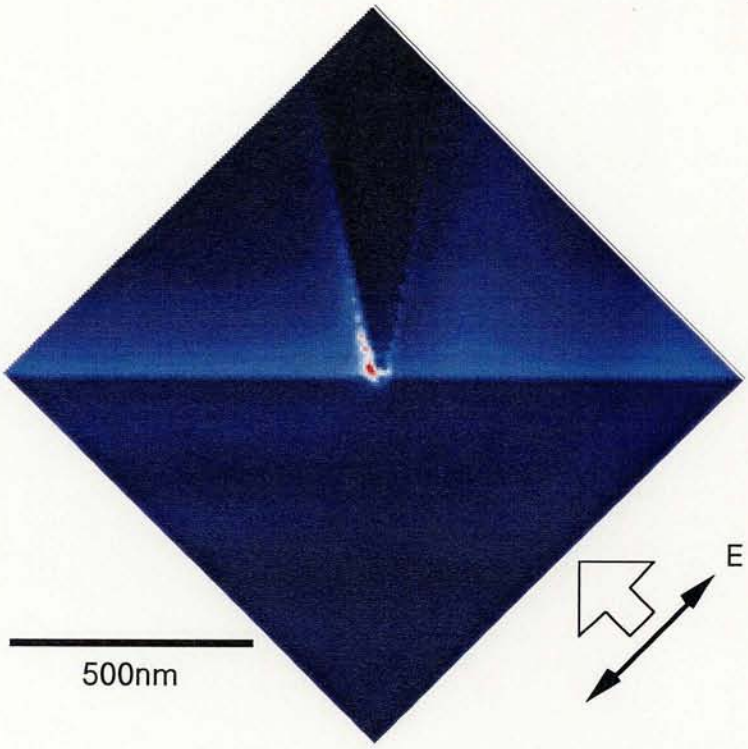


図４－４，ｐ偏光入射のときの金属チップ先端での電場増強
（入射波長800nm）

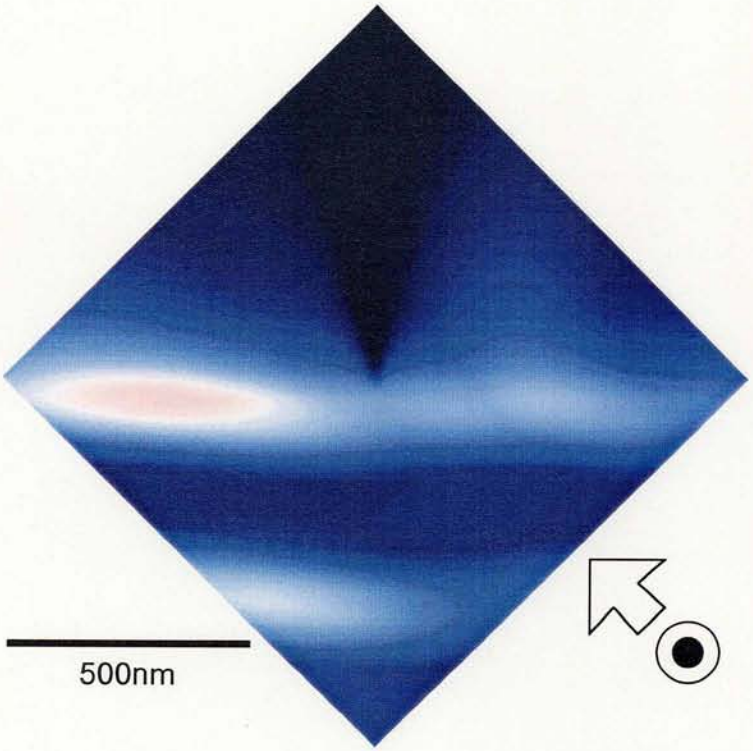


図４－５，ｓ偏光入射のときの金属チップ先端での電場分布
（入射波長800nm）

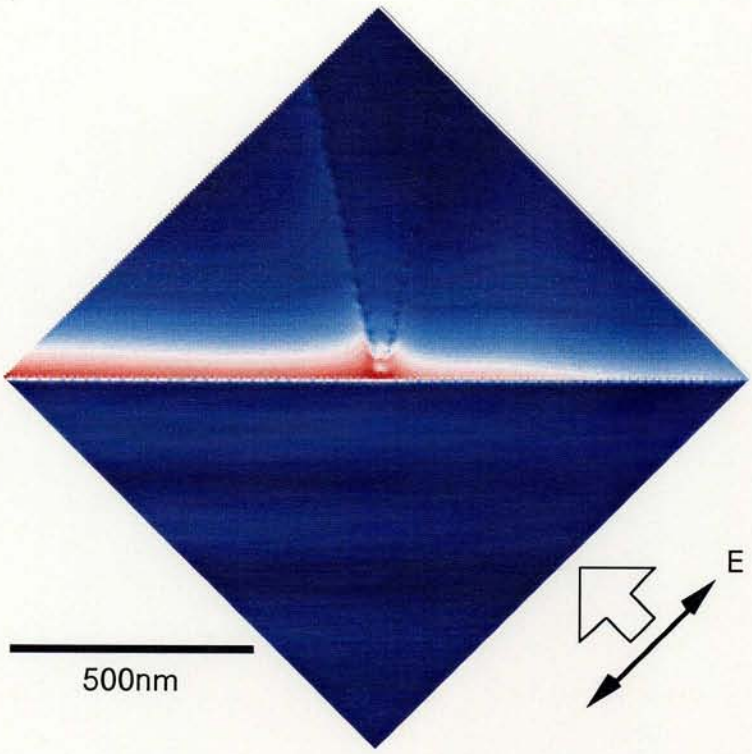


図４－６，誘電体チップ先端での電場分布（ｐ偏光入射）
（入射波長800nm）

４－５．増強電場を利用した高密度光記録への応用

ＮＳＯＭの微小光源を利用して、高密度光メモリーの研究が行われている［Betzig, 1992; Hosaka, 1996］。これらの研究では、微小な光源として、ＮＳＯＭシステムと同様に微小開口プローブ先端から照射される光を用いている。しかしながら、微小開口プローブから照射される光強度は非常に低くなっているため、記録に時間がかかることがメモリーとしての大きな欠点であった。これを解決するために、金属プローブの電場増強効果を用いることを提案する。金属プローブ自体は先端に光を導くものではないが、先端でローカルモードのプラズモンを励起することによって、局所的な強電場を作り出せることを前節までの計算で示した。この強電場を光源とすれば、記録時間の短い高密度光メモリーが実現できるのではないかと考える。しかも、そのスポット径は微小開口プローブよりも小さいので、記録密度をさらに向上させることが期待できる。最近、金属プローブの増強電場を利用して、光微細加工が行われたという報告も成されている［Jersch, 1996］。

４－６．増強電場を利用した２光子励起過程への応用

微小開口プローブから照射される光強度は非常に低くなっているため、非線形現象を励起することは困難であるが、金属プローブを用いるとその先端の電場強度は入射光よりもはるかに高くなり、２光子励起やＳＨＧなどの光学的非線形現象を効率的に起こすことができる。しかも、微小開口プローブよりも小さいスポットが形成できるので、ナノメトリックな領域でのみ非線形現象を励起できる。

例えば、生体試料の蛍光像の観察では色素の退色が問題となるが、プローブの先端でのみ強く蛍光を起こせるので、他の部分の退色を小さくしながら蛍光像を得ることができる。さらに、強電場を利用した２光子励起による蛍光を用いれば、プローブ先端以外の蛍光を励起しないので、退色をほとんど無くすことができる。そこで、プローブ近傍で励起される２光子蛍光の効率を、計算によって求めた。

波長400nmで励起される蛍光試料に対して、入射光の波長を800nmにし、２光子吸収を用いたときの電場分布を、図４－７に示す。２光子励起が起こる効率は電場強度の２乗に比例するので、波長800nmで計算した結果を２乗して表示している。表示は、電場強度の最大値で規格化している。

１光子励起の結果と比較するため、波長400nmの入射光を用いて計算した電場分布を図４－８に示す。波長と電場を２乗していない事以外のパラメーターは２光子吸収の場合と同じである。２光子励起の計算結果ではプローブ先端の強度は、入射光の強度に対して1900倍であるが、１光子励起の強度は18倍だけである。このことから、２光子励起を利用した蛍光イメージングの方が、プローブ先端で選択的にスポットの形成が行えることがわかる。また、２光子吸収の励起効率は電場強度の２乗に比例するため、１光子吸収に対して２倍の波長であるにも関わらず、励起されるスポットの半値全幅はほとん

ど変わっていない。

しかも、1光子吸収による蛍光イメージングでは、信号である蛍光強度に対して、バックグラウンドである励起光の強度が大きいため、信号の損失を小さくしながらバックグラウンドを取り除くことが大きな問題となるが、2光子蛍光では励起光の波長と蛍光の波長とが離れているため、比較的容易にスペクトルによる分離ができる。また、可視域での2光子蛍光を励起する光源には、波長の長い近赤外線の光源が用いられるが、一般的に波長が長いほど金属の導電率は高くなるため、プラズモンの励起効率も高くなる。そのため、電場の増強をより一層強めることができる。例えば、ここで用いた金属材料はPlutinum Iridiumであるが、波長400nmの光源に対する電場の増強度は18倍であるのに対して、波長800nmの光源に対する電場の増強度は44倍になっている。

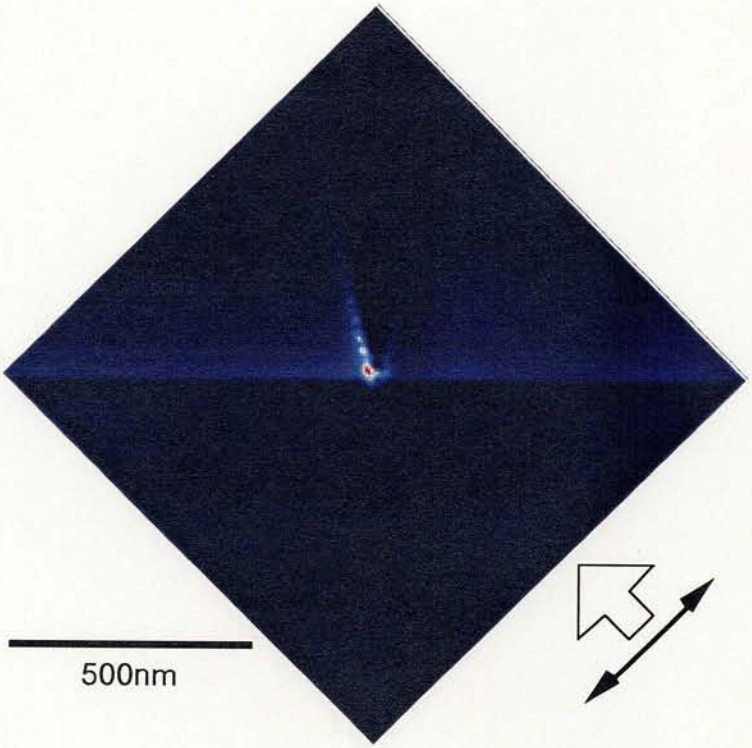


図４－７，金属チップ先端での２光子励起の効率（ｐ偏光入射）
（入射波長800nm）

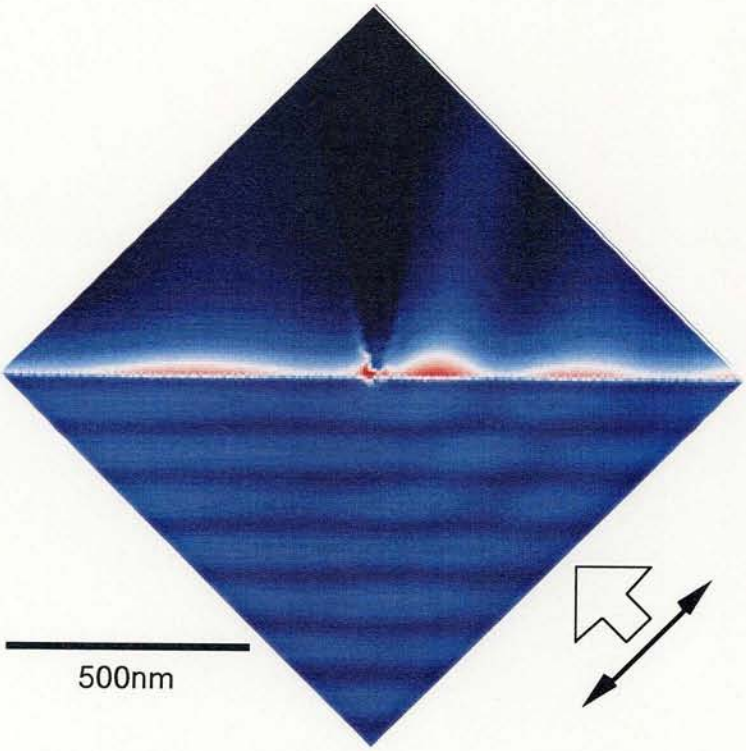


図４－８，１光子励起の効率（ｐ偏光入射）
（入射波長400nm）

4－7．考察

金属プローブをエバネッセント場中に挿入すると、先端で電場の増強が見られることを計算し、入射光に対してはるかに高い強度となっていることが分かった。金属プローブを用いたＮＳＯＭを用いた像形成過程においても、ローカル・モードのプラズモンによって増強された電場が、試料の屈折率および吸光度の測定効率を向上することになり、試料像のＳＮ比を向上している。これは、表面モードのプラズモンを用いて、試料像のＳＮ比を向上する表面プラズモン・センサーと同様の理由である。

また、この電場の増強方法は、局所的な非線形光学効果を励起する手法として有用であると考えている。その例として、金属プローブの先端での強い電場形成を、２光子蛍光イメージングに応用することを提案し、２光子蛍光の励起効率を計算した。その結果、２光子蛍光のイメージングには、金属プローブを用いた散乱型ＮＳＯＭが有効であることを示した。

ただし本章で示した励起効率は、電磁場分布のみから求めたものであり、蛍光物質が金属近傍にある際に起こる蛍光強度の減衰については考慮していない。これは、クエンチング（quenching）と呼ばれており、蛍光のエネルギーが金属に伝達することで蛍光が観測されなくなるために生じる現象である。クエンチングは、金属が蛍光物質の近傍（10nm以内）まで近づいたときに生じるので、金属プローブＮＳＯＭでも、それ以上の距離でプローブ制御を行うことが望ましい。

電場強度は格子空間内での平均値となっているが、電場強度は金属チップの先端で距離に対して非線形的な増加が見られる。しかしながら、ＦＤＴＤの計算のために用いた格子の大きさは図４－３(b) に示したとおり十分に小さなものとはなっていない。これは、計算機の主記憶容量に制限されているためである。電場の強度のピーク値はさらに高いものであり、半値幅もさらに小さいものであると推測することができる。

また、電場増強の励起効率は、金属の材質、プローブの形状、プローブと基板との距離に依存している。

ローカル・モードのプラズモンを効率よく励起するためには、金属の材質は、銀が良いと考えられる。プラズモンは電子密度の波であるが、電子移動の際の抵抗が小さいほど、一般にプラズモンの振幅が大きいためである。ただし、銀は酸化しやすいという欠点があるため、励起に用いる波長に応じて金やアルミニウムなどを検討すれば良いであろう。

プローブの形状を決定する際には、電荷密度と多重反射光という２つの要因を考慮する必要がある。電荷量が同じであるなら、曲率の小さい部分ほど電荷密度が高くなるため、金属チップの先端径は小さい程良い［Meixner, 1972］。一方、金属チップと誘電体基板との間の多重反射光も、入射光と共にローカル・モードのプラズモンを励起するが、多重反射光の強度を高くするには、金属チップの先端径を大きくする方が良い。この２つの相反する要因のため、チップ先端径には最適値が存在することが予想される。

プローブ先端での電場増強を効率よく試料に伝えるためには、プローブと基板との間隙を最適にする必要がある。間隙が０ならばプローブ先端の増強場は減衰することなく

試料表面に伝えられるが、一方、金属チップと誘電体基板との間の多重反射光が無くなるために、プラズモンを励起する効率が低下する。多重反射光が無視できるほどプローブ径が小さいならば、その効果は考えなくても良い。

今後、これらのパラメーターの依存性を調べ、高い増強効果を得るために適した条件を求める必要がある。

総括

本論文は、ニア・フィールド光学顕微鏡（ＮＳＯＭ）で検出される像を電磁論の立場から評価し、考察した結果について述べたものである。以下、本論文の総括をおこない、今後の課題について言及する。

序論では、ＮＳＯＭ像は、ニア・フィールドにおけるフォトンを介した相互作用を経て形成されるものであり、それによって特徴づけられているという本論文全般にわたる概念を述べた。

１章では、像形成の見通しの良い概念を、スカラー理論に基づいて示し、ＮＳＯＭで超解像性が得られる原理を述べた。さらに、ＮＳＯＭ像を評価するためには、プローブの効果を取り入れた、より正確な電磁場理論における検証が必要であることを述べ、ニア・フィールド光学に適した数値解法を検討した。

２章では、現在最も良く用いられている金属コートされた微小開口を用いたＮＳＯＭの像形成過程を解析した。マックスウェル電磁方程式を直接用いて、ＮＳＯＭ像を求めた。プローブが無い場合に試料表面上に形成される電磁場分布とＮＳＯＭで得られる像とを比較し、プローブの効果がＮＳＯＭ像に影響を与えていることを示した。プローブの効果を考慮した結果、試料の表面形状が回転対称であるモデルに対して、試料の構造をよく表すＮＳＯＭ像が得られることが分かった。また、プローブの開口径と試料構造の比によるＮＳＯＭ像の特性についても解析した。これから、検出画像には、光学定数の分布だけではなく、構造の大きさの効果も含まれていることを確かめた。

プローブ－試料間のフォトンを介した相互作用はＮＳＯＭの像形成に有効に働くので、積極的に利用する方法を用いるのがよい。そこで３章では、試料と相互作用する空間領域を増加し、ＮＳＯＭの検出光量の問題を解決するために、スリット開口をプローブとして用いたＮＳＯＭを検討した。光量の問題は、特に赤外光領域で深刻になるが、赤外ＮＳＯＭの実験からスリット・プローブの有効性を確かめ、分解能が計算値と良く合うことを示した。

スリット・プローブでは、１次元のＮＳＯＭ像を得るには有効である。二次元像を得ることも可能ではあるが、信号処理等の再構成が必要であり、煩雑となる。検出効率を高めるには、スリット・プローブで試料との相互作用領域を増加すること以外にも、プローブ先端での電場を高める方法が考えられる。電場を高めることができれば、ＳＮ比を高く保ちながら、直接２次元像を得ることが可能である。この手法について４章で検討し、金属チップの先端で電場の増強効果があることを確かめた。このことから、金属プローブを用いたＮＳＯＭでは、試料の吸収分布・屈折率分布の測定が、電場の増強効果によって高感度におこなえていると言える。一方、ここ考慮した金属プローブの効果は、電場の増強のみである。試料に与える他の効果には、試料自身の電場非線形応答や、金属を近づけることによって生じるクエンチング（蛍光の消失、quenching）、プローブが発する熱などがある。特に蛍光試料の観察を行う場合には、クエンチングの影響を考慮して励起光率を求める必要がある。今後検討したい。

また、金属プローブを用いたＮＳＯＭは、これまで観察システムであると考えられて

きたが、金属プローブの先端での局所的な電場を利用すれば、微小光源としての機能も持つことができる。この微小光源としての機能を積極的に利用すると、光化学過程をナノメトリック領域で励起することができるので、光微細加工・高密度光記録などが可能となる。しかも、電場強度は、入射光に対して非常に高くなっているので、非線形光学過程（多光子吸収、ＳＨＧ等）との併用も可能である。

このように、ＮＳＯＭの応用範囲は幅が広く、その基礎となるＮＳＯＭでの像形成過程の解析は重要である。しかしながら、ＮＳＯＭの像形成に関与するパラメーターは非常に多く、この論文で計算し、考察することのできた問題はその中の一部である。今後、さらに解析を続け、試料構造とＮＳＯＭ像との関係に関する知見を深めなければならない。

特に、最近になって、ＮＳＯＭ像には、プローブの距離制御法に起因する擬似的な情報（artifact）が混入するという問題が指摘されており、これに影響されていない像はどのようなものであるのかを知っておく必要があると考える。ＡＦＭやＳＴＭなどをＮＳＯＭプローブの距離制御に用いる場合には、極めて高い分解能で像が観測されたと錯覚する可能性があるので注意しなければならないだろう。

そして、試料構造とＮＳＯＭ像との関係に関する知見を元にして、ＮＳＯＭ像から試料の光学特性を知るという逆問題へ研究を進める必要があると考えている。被測定試料が、屈折率分布、吸収率分布、表面形状のうち、複数の特性をもつ場合には、これらをそれぞれ分離した情報を得ることも必要となる。

謝辞

本研究は、大阪大学大学院工学研究科応用物理学専攻において行ったものです。

本研究の全般にわたり終始懇切な御指導を賜りました河田聡教授に、心から感謝申し上げます。

本学大学院工学研究科の増原宏教授、並びに本学超伝導エレクトロニクス研究センターの萩行正憲教授には、論文作成にあたり御検討いただき、貴重な御教示と御示唆を頂きました。深く御礼申し上げます。南茂夫先生（現大阪電気通信大学学長）、及び内田照雄先生（現摂南大学教授）には、数多くの御助言と御指導を頂きました。深く感謝致します。本研究における電磁場計算の一部は、理化学研究所の研修生として行ったものです。御指導頂きました山口一郎主任研究員、岡本隆之研究員に厚く感謝致します。本学通信工学科の丸田章博助手には、研究の初期において、電磁場計算に関する有益な御助言を頂きました。謹んで御礼申し上げます。

本学大学院工学研究科の中村收助教授、川田善正助手、重岡利孝助手には、研究全般にわたり終始御指導と御討論を頂きました。厚く御礼申し上げます。

研究室の皆様には、多くのご支援をいただきました。井上康志博士（日本学術振興会研究員）、加野裕博士（日本学術振興会研究員）、高岡秀行氏（現オリンパス光学工業（株））には、実験に関する多大なる御協力と御助言を頂きました。各氏に深く感謝申し上げます。谷武晴氏（現富士写真フィルム（株））には、電磁場の計算に関して有益な御討論を頂きました。深く御礼申し上げます。田中拓男博士（現本学大学院基礎工学研究科助手）には、研究者の先輩として多くの御指導を頂きました。ここに感謝の意を表します。これまでの研究生活を良き同輩として支えて下さった丸尾昭二氏に、深く御礼申し上げます。鳥海亜希子氏、藤田克昌氏ほか研究室の皆様には本研究の遂行にさまざまな御協力を頂きました。深く感謝いたします。松永千鶴子氏には、研究を事務的な面から支えて頂きました。心より御礼申し上げます。

Appendix

A. 有限差分時間領域法によるニア・フィールドの計算

Maxwell方程式は電磁場の時間変化を表しているので、これを直接解くことによって電磁場の経時変化を求めることができる。有限差分時間領域法（finite-difference time-domain method：ＦＤＴＤ）は、Maxwell方程式の差分形を基本方程式とする。差分化は空間と時間の両方について行う。まず、Maxwell方程式の差分形を導く。

Maxwell方程式

$$\nabla\times\mathbf{H} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} + \sigma\mathbf{E} \tag{1}$$

$$\nabla\times\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \tag{2}$$

$$\mathbf{E} = (\mathrm{Ex}, \mathrm{Ey}, \mathrm{Ez}) \tag{3}$$

$$\mathbf{H} = (\mathrm{Hx}, \mathrm{Hy}, \mathrm{Hz}) \tag{4}$$

⇔

$$\frac{\partial \mathrm{Hz}}{\partial y} - \frac{\partial \mathrm{Hy}}{\partial z} = \varepsilon\frac{\partial \mathrm{Ex}}{\partial t} + \mathrm{Jx} + \sigma\mathrm{Ex} \tag{5a}$$

$$\frac{\partial \mathrm{Hx}}{\partial z} - \frac{\partial \mathrm{Hz}}{\partial x} = \varepsilon\frac{\partial \mathrm{Ey}}{\partial t} + \mathrm{Jy} + \sigma\mathrm{Ey} \tag{5b}$$

$$\frac{\partial \mathrm{Hy}}{\partial x} - \frac{\partial \mathrm{Hx}}{\partial y} = \varepsilon\frac{\partial \mathrm{Ez}}{\partial t} + \mathrm{Jz} + \sigma\mathrm{Ez} \tag{5c}$$

$$\frac{\partial \mathrm{Ez}}{\partial y} - \frac{\partial \mathrm{Ey}}{\partial z} = -\mu\frac{\partial \mathrm{Hx}}{\partial t} \tag{6a}$$

$$\frac{\partial \mathrm{Ex}}{\partial z} - \frac{\partial \mathrm{Ez}}{\partial x} = -\mu\frac{\partial \mathrm{Hy}}{\partial t} \tag{6b}$$

$$\frac{\partial \mathrm{Ey}}{\partial x} - \frac{\partial \mathrm{Ex}}{\partial y} = -\mu\frac{\partial \mathrm{Hz}}{\partial t} \tag{6c}$$

ここで空間を格子状に区切り、図Ａ－１に示すような直方体要素の集合体であるとする。各格子には、誘電率 ε、透磁率 μ、導電率 σ、電流密度 j を与えることによって、プローブや試料をモデル化する。

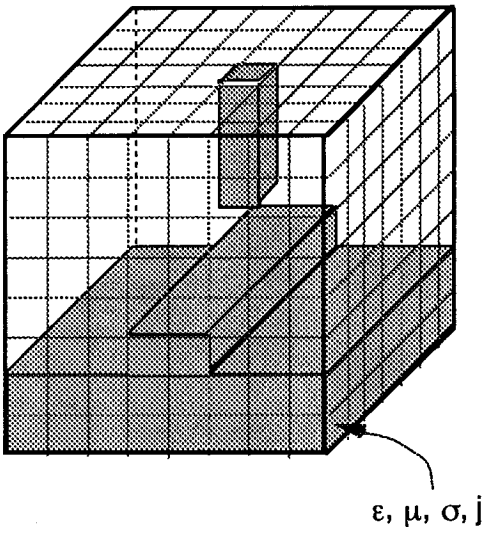


図１，格子で分割されたモデル空間
各格子には、誘電率ε、透磁率μ、導電率σ、電流密度j
を与えることによって、モデルを記述する。

基準点からx方向i番目、y方向j番目、z方向k番目、にある格子要素（（i,j,k）と表す）に注目する。単位直方体格子の辺上に電場成分を配置し、面上に磁場成分を配置する。

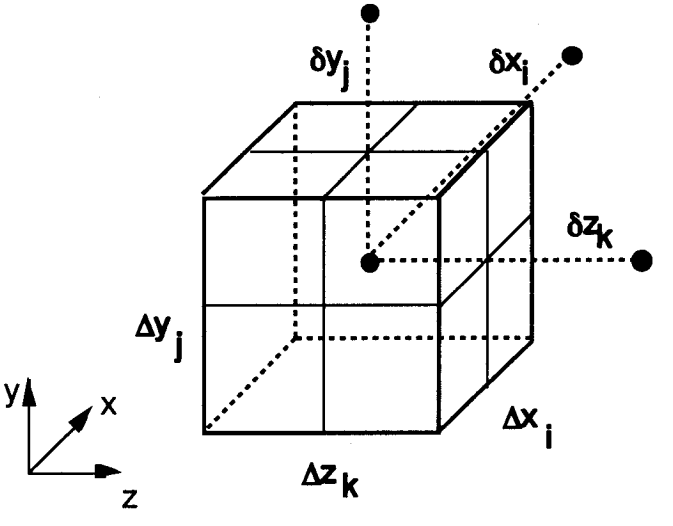
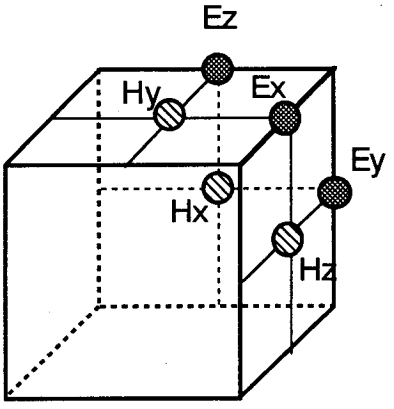


図１、格子（i, j, k）
黒丸は単位格子の中央点（座標（x_i,y_j,z_k））
Δx , Δy , Δz は格子の大きさ
δx , δy , δz は格子の中央点間距離



図Ａ－３、格子に配置された電磁場成分

格子（ｉ, ｊ, ｋ）の中央点の座標を（x_i, y_j, z_k）とする。また、格子（ｉ, ｊ, ｋ）の大きさをΔx_i, Δy_j, Δz_kとおく。このとき、格子の中央点間距離δx_i, δy_j, δz_kはそれぞれ、$\delta x_i = \Delta x_{i+1} - \Delta x_i$, $\delta y_j = \Delta y_{j+1} - \Delta y_j$, $\delta z_k = \Delta z_{k+1} - \Delta z_k$とおける。また、時間差分量を$\Delta t$とおく。この格子上の、図Ａ－３に示す位置に電磁場の成分を配置する。この格子は、Yee格子と呼ばれている［Yee, 1966］。このように直方体の格子以外にも、曲線を精度良くモデル化するために一般の六面体を用いた方法も提案されている［Jurgens, 1992］。

マックスウェル方程式を空間差分して、上図の単位直方体上の電場成分と磁場成分とを用いて表す［Tumolillo, 1977］。差分法は記憶容量節約のため１次差分を用いるが、計算精度の良い中心差分を行っている。

$$\frac{H_z\left(t;x,y+\frac{1}{2}\delta y,z\right)-H_z\left(t;x,y-\frac{1}{2}\delta y,z\right)}{\delta y}-\frac{H_y\left(t;x,y,z+\frac{1}{2}\delta z\right)-H_y\left(t;x,y,z-\frac{1}{2}\delta z\right)}{\delta z}$$
$$=\varepsilon_{(x,y,z)}\frac{E_x(t+\Delta t;x,y,z)-E_x(t;x,y,z)}{\Delta t}+J_x(t;x,y,z)+\sigma E_x(t;x,y,z) \quad (7a)$$

$$\frac{H_x\left(t;x,y,z+\frac{1}{2}\delta z\right)-H_x\left(t;x,y,z-\frac{1}{2}\delta z\right)}{\delta z}-\frac{H_z\left(t;x+\frac{1}{2}\delta x,y,z\right)-H_z\left(t;x-\frac{1}{2}\delta x,y,z\right)}{\delta x}$$
$$=\varepsilon_{(x,y,z)}\frac{E_y(t+\Delta t;x,y,z)-E_y(t;x,y,z)}{\Delta t}+J_y(t;x,y,z)+\sigma E_y(t;x,y,z) \quad (7b)$$

$$\frac{H_y\left(t;x+\frac{1}{2}\delta x,y,z\right)-H_y\left(t;x-\frac{1}{2}\delta x,y,z\right)}{\delta x}-\frac{H_x\left(t;x,y+\frac{1}{2}\delta y,z\right)-H_x\left(t;x,y-\frac{1}{2}\delta y,z\right)}{\delta y}$$
$$=\varepsilon_{(x,y,z)}\frac{E_z(t+\Delta t;x,y,z)-E_z(t;x,y,z)}{\Delta t}+J_z(t;x,y,z)+\sigma E_z(t;x,y,z) \quad (7c)$$

$$\frac{E_z\left(t;\,x,\,y+\frac{1}{2}\Delta y,\,z\right)-E_z\left(t;\,x,\,y-\frac{1}{2}\Delta y,\,z\right)}{\Delta y}-\frac{E_y\left(t;\,x,\,y,\,z+\frac{1}{2}\Delta z\right)-E_y\left(t;\,x,\,y,\,z-\frac{1}{2}\Delta z\right)}{\Delta z}$$

$$=-\mu_{(x,\,y,\,z)}\frac{H_x(t+\Delta t;\,x,\,y,\,z)-H_x(t;\,x,\,y,\,z)}{\Delta t} \tag{8a}$$

$$\frac{E_x\left(t;\,x,\,y,\,z+\frac{1}{2}\Delta z\right)-E_x\left(t;\,x,\,y,\,z-\frac{1}{2}\Delta z\right)}{\Delta z}-\frac{E_z\left(t;\,x+\frac{1}{2}\Delta x,\,y,\,z\right)-E_z\left(t;\,x-\frac{1}{2}\Delta x,\,y,\,z\right)}{\Delta x}$$

$$=-\mu_{(x,\,y,\,z)}\frac{H_y(t+\Delta t;\,x,\,y,\,z)-H_y(t;\,x,\,y,\,z)}{\Delta t} \tag{8b}$$

$$\frac{E_y\left(t;\,x+\frac{1}{2}\Delta x,\,y,\,z\right)-E_y\left(t;\,x-\frac{1}{2}\Delta x,\,y,\,z\right)}{\Delta x}-\frac{E_x\left(t;\,x,\,y+\frac{1}{2}\Delta y,\,z\right)-E_x\left(t;\,x,\,y-\frac{1}{2}\Delta y,\,z\right)}{\Delta y}$$

$$=-\mu_{(x,\,y,\,z)}\frac{H_z(t+\Delta t;\,x,\,y,\,z)-H_z(t;\,x,\,y,\,z)}{\Delta t} \tag{8c}$$

（7a）～（7c）式から、時刻 t+Δt の電場E=（Ex, Ey, Ez）が求められ、（8a）～（8c）式からは時刻 t+Δt の磁場H=（Hx, Hy, Hz）を求めることができる。

このようにして、ある時刻 t+Δt のときの電場および磁場が、時刻 t のときの値を用いて書き表される。電場を求める際には両隣の格子にある磁場の値が必要となるが、モデル領域の端では、片端の格子が無いために、内側の値を用いて外挿する。外挿方法は、モデル領域の端面が自由空間と等価であるような条件、つまり領域から外側に放射する電磁波が再び領域内に戻ってくることが無いような条件を用いることから、吸収境界条件と呼ばれている［Engquist 1977, Mur 1981］。論文中の計算で用いた吸収境界条件については後述する。一方、磁場を求める際には、注目した格子内のみの値しか用いないので、吸収境界条件を考える必要はない。

以上が空間と時間とで差分化されたマックスウェル方程式である。この方程式を、離散化された解析モデルに適用することによって、電磁波の伝搬を時間的にシミュレートする。開放領域における電磁場シミュレーションの手順を示す。

1．　初期値として、時刻 t のときの電場および時刻 t のときの磁場の値を設定する。
2．　入射波を電流源 J として与える。
3．　時刻 t+Δt のときの電場Eを、式（9a）を用いて求める。
4．　解析モデルの端面で、電場Eに対する吸収境界条件を適用する。
5．　時刻 t+Δt のときの磁場Hを、式（9b）を用いて求める。
6．　時刻を１ステップ増加し、2. に戻る。（時刻 t の電場Eの値を時刻 t+Δt の値で再定義する。）
7．　2.から6.までの過程を1ステップとし、定常状態になるまで繰り返す。

ＦＤＴＤの計算精度はモデル領域の端面での処理と１波長あたりに割り当てるcell数に

よるところが大きい。ニア・フィールドの問題では、波長よりも十分に細かいモデルを表現するために、十分なcell数を与えているので、これに関する誤差は少ないと言える。端面での誤差は、モデル領域内に反射光として表れる。誤差を小さくするためには、端面に到達する光量を小さくすると良いが、これは入射光と散乱光とが存在する場（total field）と入射光成分を引いた散乱光のみの場（scattered field）とを分離することで可能である。

また、吸収境界条件の精度を挙げるアルゴリズムに関するさまざまな報告が成されている［Tirkas, 1992; Mei, 1992; Berenger, 1994］。ＦＤＴＤの計算精度については、文献に詳しい［Sadiku, 1992］。

B. 吸収境界条件について

FDTD法では、ある格子内の電場を求める際に、その両隣の格子内の値を用いる。このため、計算モデルの端面に存在する格子では計算ができないことになる。そこで、この問題を解決するために、計算モデルの端面に存在する格子に対しては、両隣の値を用いるのではなく、片方の隣の値を用いて計算する方法が工夫されている。本論文ではMurにより示された１次の吸収境界条件を用いている［Mur, 1981］。解析モデルの端面に進行平面波が垂直入射したときに、その平面波を吸収するというアルゴリズムを用いる。

空間中の進行波をWとし、次のように表記する。

$$W = \mathrm{Re}[\ \Psi(\ t+Sx\ X+Sy\ Y+Sz\ Z)\ ] \tag{1}$$

$$Sx^2+Sy^2+Sz^2 = (1/c_0)^2 \tag{2}$$

c_0 は真空中の電磁波の速さを表し、Sx , Sy , Szはその逆数のX方向成分、Y方向成分、Z方向成分をそれぞれ表す。ｘ方向に進行する電磁波Wに対して、ｘ=aにおける吸収条件は、次式で表される。

$$(\ d/dx - Sx\ d/dt\ )\ \ W\ |_{X=a} = 0 \tag{3}$$

$\Leftrightarrow$

$$(\ d/dx - (\ (1/c_0)^2 - Sy^2 - Sz^2\ )^{1/2}\ d/dt\ )\ \ W\ |_{X=a} = 0 \tag{4}$$

ここで、左辺は、

$$\begin{aligned}(\ (1/c_0)^2 - Sy^2 - Sz^2\ )^{1/2} &= (1/c_0)\ (\ 1-(c_0Sy)-(c_0Sz)\ )^{1/2} \\ &= (1/c_0)\ (\ 1-\ (1/2)\ (\ (c_0Sy)^2+(c_0Sz)^2) + \cdot\cdot\cdot\ )\end{aligned} \tag{5}$$

であるから、第１項までの近似を用いると、（3）式の吸収境界条件は、次のように表

される。

$$(d/dx - (1/c_0)\, d/dt)\ W \mid_{x=a} = 0 \tag{6}$$

⇔

$$dW/dx \mid_{x=a} = (1/c_0)\, dW/dt \mid_{x=a} \tag{7}$$

(7) 式を用いると、片側の値からWの値を求めることができる。

この吸収境界条件は、境界に対して垂直に入射する光に対してはそれを吸収することができるという条件であり、斜入射光に対する精度が低い。このため、吸収効率を挙げる工夫［Mei, 1992; Berenger, 1994］が成されている。

C. 物質のモデル化

線形等方性物質の性質は、マックスウェル方程式あるいは電磁場に関して述べる限り、複素屈折率を用いて表すことができる。しかしながら、ＦＤＴＤ法に金属媒質を与える場合には計算が不安定になる可能性がある［Beggs, 1992; Joseph, 1991］。

金属に電磁場が入射すると、その境界で電束密度の符号が反転する。これは、物質のレスポンスが入射波の位相に対して半周期ずれているからであり、入射波が吸収されるときの時間と、原子から再放射される時間とのずれに起因したものである。このために、屈折率は虚部が実部よりも大きく、誘電率の実部が負となる。誘電率が正から負へと変化するところで、電束密度の値も符号を変える。ＦＤＴＤ法では通常ある時刻のみの電磁場を用いているので、このような急激な値の変化は、離散化した数値計算において不安定な値を引き起こす。

安定解を得るための方法は１つには、Yee格子の大きさを減衰に対して十分に小さくすることが挙げられる。金属のように減衰の急激な媒質をモデリングする際には、大きなメモリーが必要とされる。また、別の方法として、周波数領域でのモデル化を行う方法や、Lorentz分散モデルを利用する方法［Judkins, 1995］がある。

参考文献

[発表論文]

河田聡、高岡秀行、古川祐光, (1996) スリット・プローブを用いた赤外ニア・フィールド顕微分光法, 分光研究、**45**, no. 2, pp. 93-99.

H. Furukawa, S. Kawata, (1996) Analysis of image formation in a near-field scanning optical microscope : Effects of multiple scattering, Opt. Commun., **132**, no. 1-2, pp. 170-178.

H. Furukawa, Osamu Nakamura, and Satoshi Kawata, (1996) Self-consistent analysis of the image formation with near-field scanning optical microscope, JRCAT International Symposium on Atom Technology, Extended Abstracts, pp. 257-260.

H. Furukawa, S. Kawata, (1996) Image formation in the near-field scanning optical microscope, Proceedings of SPIE, **2778**, pp. 102-103.

H. Furukawa, S. Kawata, (1996) Field enhancement with a metallic probe tip for near-field optical microscopy, Proceedings of the first Asia-Pacific workshop on near-field optics, p. 27.

[その他の参考文献]

Ash E. A., Nicholls G., (1972) Super-resolution aperture scanning microscope, Nature, **237**, pp. 510-512.

Barton J. P., Alexander D. R., (1989) Fifth-order corrected electromagnetic field components for a fundamental Gaussian beam, J. Appl. Phys., **66**, pp. 2800-2802.

Beggs J. H., Luebbers R. J., Yee K. S., Kunz K. S., (1992) Finite-difference time-domain implementation of surface impedance boundaty conditions, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-40**, pp. 49-56.

Berenger J. P., (1994) A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves, J. Comp. Phys., **114**, pp. 185-200.

Bethe H. A., (1944) Theory of diffraction by small holes, Phys. Rev., **66**, pp. 163-182.

Betzig E., Trautman J. K. (1992) Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit, Science, **257**, pp. 189-195.

Binning G., Rohler H., Gerber Ch., Weibel E., (1982) Surface studies by scanning tunneling microscopy, Phys. Rev. Lett., **49**, pp. 57-61.

Born M., Wolf E., (1980) *Principles of Optics*, 6th ed., Pergamon Press, Oxford.

Bose J. C., (1897) On the influence of the thickness of air-space on total reflection of electric radiation, Proc. R. Soc. London Ser. A, **62**, pp. 300-310.

Brebbia C. A., (1978) *The boundary element method for engineers*, Pentech Press.

Christensen D. A., (1995) Analysis of near field tip patterns including object interaction using finite-difference time-domain calculations, Ultramicroscopy, 57, pp. 189-195.

Courjon D., Baida F., Bainier C., Labeke D. Van, Barchiesi D., (1995) Near field instrumentation: *Photons and local probes*, NATO ASI Series.

Davis L.W., (1979) Theory of electromagnetic beams, Phys. Rev. A, **19**, pp. 1177-1179.

Engquist B., Majda A., (1977) Absorbing boundary conditions for the numerical simulation of waves, Math. Comp., **31**, pp. 629-651.

Girard C., Courjon D., (1990) Model for scanning tunneling optical microscopy: a microscopic self-consistent approach, Phys. Rev. B, 42, pp. 9340-9349.

Hafner Ch., (1990) *The generalized multiple multipole technique for computational electromagnetics*, Artech, Boston.

Hosaka S., Shintani T., Miyamoto M., Hirotsune A., Terao M., Yoshida M., Honma S., Kaummer S., (1996) Scanning near-field optical microscope with a laser diode and nanometer-sized bit recording, Thin Solid Films, **273**, pp. 122-127.

Inouye Y., Kawata S., (1994) Near-field scanning optical microscope using a metallic probe tip, Opt. Lett., **19**, pp. 159-161.

Inouye Y., Kawata S., (1995) A scanning near-field optical microscope having scanning electron tunneling microscope capability using a single metallic probe tip, J. Microsc., **178**, pp. 14-19.

Jackson J. D., (1975) *Classical Electrodynamics*, 2nd ed., John Wiley and Sons, New York.

Jersch J., Dickmann K., (1996) Nanostructure fabrication using laser field enhancement in the near field of a scanning tunneling microscope tip, Appl. Phys. Lett., **68**, pp. 868-870.

Joseph R. M., Hangness S. C., Taflove A., (1991) Direct time integration of Maxwell's equations in linear dispersive media with absorption for scattering and propagation of femtosecond electromagnetic pulses, Opt. Lett., **18**, pp. 1412-1414.

Judkins J. B., Ziolkowski R. W., (1995) Finite-difference time-domain modeling of nonperfectly conducting metallic thin-film gratings, J. Opt. Soc. Am. A, **12**, pp. 1974-1983.

Jurgens T. G., Taflove A., Umashankar K., Moore T. G., (1992) Finite-difference time-domain modeling of curved surfaces, IEEE Trans. Antennas

Propagat., **AP-40**, pp. 357-365.

Kawata S., Inouye Y., (1995) Scanning probe optical microscopy using a metallic probe tip, Ultramicroscopy, **57**, pp. 313-317.

Keller J. B., (1957) Diffraction by an aperture, J. Appl. Phys., **28**, p. 426.

Lewis A., Isaacson M., Harootunian A., Muray A., (1984) Development of a 500Å spatial resolution light microscope 1. Light is efficiently transmitted through 1/16 diameter apertures, Ultramicroscopy, **13**, pp. 227-232.

Madrazo A., Nieto-Vesperinas M., (1996) Surface structure and polariton interactions in the scattering of electromagnetic waves from a cylinder in front of a conducting grating: theory for the reflection photon scanning tunneling microscope, J. Opt. Soc. Am. A, **13**, pp. 785-795.

Mei K.K., Fang J., (1992) Superabsorption - A method to improve absorbing boundary conditions, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-40**, pp. 1001-1010.

Meixner J., (1972) The behavior of electromagnetic fields at edges, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-20**, pp. 442-446.

Mie G., (1908) Beitrage fur Optik truber Meiden, speziell kolloidaler Metallosungen, Ann. d. Physik., **25**, p. 377.

Mur G., (1981) Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time-domain electromagnetic-field equations, IEEE Trans. Electromagn. Compat., **EMC-23**, pp. 377-382.

Nakano T., S. Kawata, (1993) Infrared evenescent-field microscope using CO_2 laser for reflectance measurement, Optik, **94**, pp. 159-162.

Nakano T., S. Kawata, (1994) Evanescent-field scanning microscope with fourier-transform infrared spectrometer, Scanning, **16**, pp. 368-371.

Novotny L., Pohl D. W., Regli P., (1994) Light propagation through nanometer-sized structures: the two-dimentional aperture scanning near-field optical microscope, J. Opt. Soc. Am. A, **11**, pp. 1768-1779.

Pincemin F, Sentenac A, Greffet J.-J., (1994) Near field scattered by a dielectric rod below a metallic surface, J. Opt. Soc. Am. A, **11**, pp. 1117-1127.

Pohl D. W., Denk W., Lanz M., (1984) Optical stethoscopy: image recording with resolution $\lambda/20$, Appl. Phys. Lett., **44**, pp. 651-653.

Press W. D., Teukolsky S. A., Vetterling W. T., Flannery B. P., (1992) *Numerical Recipes*, 2nd ed., Cambridge University Press, Cambridge.

Raether H., (1988) *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings*, Springer-Verlag, Berlin.

Sadiku M. N. O., (1992) *Numerical Technique in Electromagnetics*, CRC Press.

Sommerfeld A., (1954) *Optics*, Academic Press, New York.

Synge E. H., (1928) A suggested method for extending microscopic resolution into

the ultra-microscopic region, Phil. Mag. S. 7. **6**, pp. 356-362.

Tirkas P. A., Balanis C. A., Renaut R. A., (1992) Higher order absorbing boudary conditions for the finite-difference time-domain method, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-40**, pp. 1215-1222.

Tumolillo T. A.,Wondra J. P., (1977) MEEC-3D: A computer code for self-consistent solution of the Maxwell-Lorentz equations in three dimensions, IEEE Trans. Nucl. Sci., **NS-24**, p. 2449.

Van Bladel J., (1985) Field singularities at metal-dielectric wedges, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-33**, pp. 450-455.

Vanden Bout D. A., Kerimo J., Higgins D. A., Barbara P. S., (1996) Spatially resolved spectral inhomogeneities in small molecular crystals studies by near-field scanning optical microscopy, J. Phys. Chem., **100**, pp. 11843-11849.

Vigoureux J. M., Courjon D., (1992) Detection of nonradiative fields in light of the Heisenberg uncertainty principle and the Rayleigh criterion, Appl. Opt., **31**, pp. 3170-3177.

Weeber J. C., Fornel F. de, Goudonnet J. P., (1996) Numerical study of the tip-sample interaction in the photon scanning tunneling microscope, Opt. Commun., **126**, pp. 285-292.

Yee K. S., (1966) Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media, IEEE Trans. Antennas Propagat., **AP-14**, pp. 302-307.

Zenhausern F., O'Boyle M. P., Wickramasinghe H. K., (1994) Apertureless near-field optical microscope, Appl. Phys. Lett., **65**, pp. 1623-1625.

Zenhausern F., Martin Y., Wickramasinghe H. K., (1995) Scanning interferometric apertureless microscopy; optical imaging at 10 angstrom resolution, Science, **269**, pp. 1083-1085.

Zienkiewicz O. C., Morgan K., (1983) *Finite elements and approximation*, John Wiley & Sons.

Zhu S, Yu A. W., Hawley D., Roy R., (1986) Frustrated total internal reflection: A demonstration and review, Am. J. Phys., **54**, pp. 601-607.

大津元一, (1996) フォトン走査トンネル顕微鏡技術, 応用物理, **65**, pp. 2-12.

河田　聡, (1992) ニアフィールド顕微鏡の光学, 光学, **21**, pp. 766-779.