

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



# 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 二	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・フローフ	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

58
58

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

## 参考文献

### 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 $\lambda$ =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  $\lambda$ /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 $\lambda$ /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~ $\lambda$ /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> $\lambda$ /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 ロプローブを用いた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

## <u>1-1. ニア・フィールド光学顕微鏡(NSOM)</u>

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

第1章

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(Λ<λ,)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。

第1章



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。



(b) エバネッセント場の検出

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+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。 第1章



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、NS OM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2入/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6入/70、直径が入/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。

第2章



(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

第2章



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)



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。







λ/5 (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

第2章

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) 一定距離走查法

(b) 一定高度走查法





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。





(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)

第2章



図2-9, プローブ内部の電場分布 (p 偏光方向)



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: S TM) [Binning, 1982] ・原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope: A F M)・摩擦力 顕微鏡(Shear Force Microscope: S F M)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6入/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) 一定距離走查法

(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22  $\lambda$ /70(プローブ外径より大きい), (b)は11 $\lambda$ /70(プローブの外径に等しい), (c)は7 $\lambda$ /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。 第2章



図2-13, 試料構造の大きさとNSOM像との関係

#### 第2章



図2-14, 試料構造の大きさと検出強度との関係

<u>2-8. 複素屈折率分布をもつ試料に対するNSOM像</u>

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<sub>1</sub>、表 面に分布している試料の複素屈折率をn<sub>2</sub>とする。基板の複素屈折率は特に断らない限り、 n<sub>1</sub>=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<sub>1</sub><n<sub>2</sub>)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<sub>2</sub>=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。 第2章



(b) n<sub>1</sub>>n<sub>2</sub>のとき



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2-1 7に示す。円形領域の複素屈折率は、それぞれ n<sub>2</sub>=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。



 $(n_1=1.5+0.01i, n_2=1.5)$ 

屈折率n<sub>2</sub>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 - 1 9 に計算モデルを示す。屈折率n<sub>i</sub>=1.5の基板に、複素屈折率n<sub>2</sub>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=0,3 $\lambda$ /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3 $\lambda$ /70なので、プローブと 試料との間隙 d=3 $\lambda$ /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<sub>2</sub>=1.5+0.01i)を有する試料のNSOM像を図2-2 1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)

第2章



図2-21, 吸収率分布を有する試料のNSOM像 (基板の屈折率:n<sub>i</sub>=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。

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

## <u>3-1. スリット・プローブ</u>

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+35.9 i(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。T E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



第3章



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1 µm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10 $\mu$ m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、  $\lambda = 5.7 \mu$ m(1741cm<sup>-1</sup>)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、 $\lambda = 5.7 \mu$ m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1.4 $\mu$ m、10%-90%で定義すると約2.4 $\mu$ m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1 $\mu$ mであっ た。波長5.7 $\mu$ m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10 $\mu$ mであった。10 $\mu$ m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1.4 $\mu$ m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、 $1.2\mu$  mのス リット開口を設ける。試料は、吸収の異なる2媒質 (n<sub>i</sub>=1.5, n<sub>2</sub>=1.5+0.01i) から成る 厚さ10 $\mu$  mの膜状とする。試料側から波長6.0 $\mu$  m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、 $12\mu$  mとなるようにした。

41



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NS OM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 6  $\mu$ m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、1.2 $\mu$ m (= 0.2 $\lambda$ ) 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。

43



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。





#### 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。 <u>4-3. 金属チップNSOMの計算モデル</u>

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、プローブー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<sup>2</sup>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。



図4-3,計算モデル



(入射波長800nm)



第4章

#### 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。



#### 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

54

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

### 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。

プローブー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

56

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

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

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

$$\mathbf{E} = (\mathbf{E}\mathbf{x}, \mathbf{E}\mathbf{y}, \mathbf{E}\mathbf{z}) \tag{3}$$

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

 $\Leftrightarrow$ 

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

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

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

$$\frac{\partial Ez}{\partial y} - \frac{\partial Ey}{\partial z} = -\mu \frac{\partial Hx}{\partial t}$$
(6a)  
$$\frac{\partial Ex}{\partial z} - \frac{\partial Ez}{\partial x} = -\mu \frac{\partial Hy}{\partial t}$$
(6b)

$$\frac{\partial Ey}{\partial x} - \frac{\partial Ex}{\partial y} = -\mu \frac{\partial Hz}{\partial t}$$
(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  $\varepsilon$ 、透磁率  $\mu$ 、導電率  $\sigma$ 、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。

### Appendix



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<sub>i</sub>,y<sub>j</sub>,z<sub>k</sub>)) 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 $\Delta x_i, \Delta y_j, \Delta z_k$ とおく。このとき、格子の中央点間距離  $\delta x_i, \delta y_j, \delta z_k$  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。

$$\frac{H_{z}(t; x, y+\frac{1}{2}\delta y, z) - H_{z}(t; x, y, \frac{1}{2}\delta y, z)}{\delta y} - \frac{H_{y}(t; x, y, z+\frac{1}{2}\delta z) - H_{y}(t; x, y, z-\frac{1}{2}\delta z)}{\delta z} = \varepsilon_{(x, y, z)} \frac{E_{x}(t+\Delta t; x, y, z) - E_{x}(t; x, y, z)}{\Delta t} + J_{x}(t; x, y, z) + \sigma E_{x}(t; x, y, z) \quad (7a)$$

$$\frac{H_{x}(t; x, y, z+\frac{1}{2}\delta z) - H_{x}(t; x, y, z-\frac{1}{2}\delta z)}{\delta z} - \frac{H_{z}(t; x+\frac{1}{2}\delta x, y, z) - H_{z}(t; x-\frac{1}{2}\delta x, y, z)}{\delta x} = \varepsilon_{(x, y, z)} \frac{E_{y}(t+\Delta t; x, y, z) - E_{y}(t; x, y, z)}{\Delta t} + J_{y}(t; x, y, z) + \sigma E_{y}(t; x, y, z) \quad (7b)$$

$$\frac{H_{y}(t; x+\frac{1}{2}\delta x, y, z) - H_{y}(t; x-\frac{1}{2}\delta x, y, z)}{\delta x} - \frac{H_{x}(t; x, y+\frac{1}{2}\delta y, z) - H_{x}(t; x, y-\frac{1}{2}\delta y, z)}{\delta y} = \varepsilon_{(x, y, z)} \frac{E_{z}(t+\Delta t; x, y, z) - E_{z}(t; x, y, z)}{\Delta t} + J_{z}(t; x, y, z) + \sigma E_{z}(t; x, y, z) \quad (7c)$$

#### Appendix

$$\frac{\frac{E_{z}(t; x, y+\frac{1}{2}\Delta y, z) - E_{z}(t; x, y-\frac{1}{2}\Delta y, z)}{\Delta y}{\Delta y} - \frac{E_{y}(t; x, y, z+\frac{1}{2}\Delta z) - E_{y}(t; x, y, z-\frac{1}{2}\Delta z)}{\Delta z} \qquad (8a)$$

$$\frac{= -\mu(x, y, z)}{\frac{H_{x}(t+\Delta t; x, y, z) - H_{x}(t; x, y, z)}{\Delta z} - \frac{\frac{\Delta t}{E_{z}(t; x+\frac{1}{2}\Delta x, y, z) - E_{z}(t; x-\frac{1}{2}\Delta x, y, z)}{\Delta x} \qquad (8b)$$

$$\frac{\frac{E_{y}(t; x+\frac{1}{2}\Delta x, y, z) - E_{y}(t; x-\frac{1}{2}\Delta x, y, z)}{\Delta x} - \frac{\frac{E_{x}(t; x, y+\frac{1}{2}\Delta y, z) - E_{x}(t; x, y-\frac{1}{2}\Delta y, z)}{\Delta y} - \frac{E_{x}(t; x, y, z-\frac{1}{2}\Delta y, z)}{\Delta y} \qquad (8b)$$

(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。
- 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

#### Appendix

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。

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

$$Sx^{2}+Sy^{2}+Sz^{2} = (1/c_{0})^{2}$$
(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。

$$\left( \frac{d}{dx} - Sx \frac{d}{dt} \right) W |_{x=a} = 0$$
(3)

⇔

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

ここで、左辺は、

$$((1/c_0)^2 - Sy^2 - Sz^2)^{1/2} = (1/c_0) (1 - (c_0Sy) - (c_0Sz))^{1/2}$$
  
= (1/c\_0) (1 - (1/2) ((c\_0Sy)^2 + (c\_0Sz)^2) + · · · ) (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。

$$(d/dx - (1/c_0) d/dt) W |_{x=0} = 0$$
 (6)

⇔

$$dW/dx \mid_{X=a} = (1/c_0) dW/dt \mid_{X=a}$$
(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、その境界で電東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、電東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<sub>2</sub> 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.