

赤外領域における近接場分光実験

岡村英一¹、池本夕佳²、森脇太郎²、木下豊彦²、石川迪雄³、中嶋悟³

¹神戸大院理、²JASRI-SPring-8、³阪大院理

Near-field spectroscopy in the infrared range

H. Okamura¹, Y. Ikemoto², T. Moriwaki², T. Kinoshita², M. Ishikawa³, S. Nakashima³

Kobe University¹, JASRI-SPring-8², Osaka University³

<Synopsis>

We will first review the infrared near-field scanning optical microscopy (IR-NSOM) experiments in the literature, done with various IR sources such as lasers, synchrotron radiation (SR), and thermal (black body) sources. We will then describe recent results on the FT-IR-based, broadband IR-NSOM experiments using SR by Ikemoto et al., and those using a thermal source by Ishikawa et al.

波動光学の回折限界を超える空間分解能（超解像）が得られる近接場光学（NSOM）が近年急速に進歩しており、波長よりもずっと小さな空間スケールで固体試料のキャラクタリゼーションが行われている[1]。赤外・THz 分光は固体の低エネルギー励起をプローブできる有用な手法だが、分子振動の指紋領域で 5-10 μm 程度（波数 1000-2000 cm^{-1} に対応）、THz 領域ではサブ mm 程度と波長が長いため、NSOM 技術の併用により従来の空間分解能を向上させようという研究が行われてきた。赤外 NSOM 研究では、微弱な NSOM 信号を十分な S/N 比で得るため、各種の赤外レーザー光源による研究が多く行われている。特に Keilmann らは様々なテーブルトップ赤外レーザーを用い、金属チップ先端からの近接場光を利用する、散乱型 NSOM 配置を用いて多くの研究を行ってきた[2]。彼らは波長 10 μm （波数 1000 cm^{-1} ）程度のレーザー光源を用い、SiC や Si などの半導体に基づくナノ構造や生体試料などに対して 20 nm という高い空間分解能で、キャリア密度や特定の分子振動などのマッピングを成功させている[2]。（彼らが開発した赤外 NSOM 装置は商品化されている[3]）またレーザーに基づく光源としては他にも、赤外自由電子レーザー[4]や、時間領域 THz 分光装置による NSOM 実験[5]も報告されている。一方、分子振動の指紋領域や半導体デバイスにおけるキャリアのプラズマ振動数に対応する波数 700-2000 cm^{-1} （波長 5-13 μm ）程度の領域をカバーするためには、白色光源を用いたブロードバンドな実験が望ましい。そこで非線形結晶によるレーザー差周波発生を用いた幅 200 cm^{-1} 程度の準白色赤外光による実験[2]や、黒体輻射に基づく熱光源による実験[6-8]、そして赤外放射光（IR-SR）による実験[9,10]などが行われている。特に IR-SR

による実験では、赤外全域をカバーするブロードバンドかつ高輝度な光源である特長が生かされると期待される。

本発表では以上の進展をレビューした後、最近 SPring-8 と阪大で行われている、フーリエ変換赤外分光法 (FTIR) と NSOM を組み合わせた、ブロードバンドな赤外近接場分光について紹介する。SPring-8 での研究は池本ら[9,10]によりビームライン BL43IR にて放射光を用いて行われ、阪大での研究は石川、中嶋ら[6,8]により通常の熱光源を用いて行われている。いずれの場合も SR や熱光源からの赤外光を、市販の FTIR のマイケルソン干渉計経路で散乱型 NSOM のチップ先端へ集光している。そして発生した近接場光から得られる干渉波形 (インターフェログラム) をフーリエ変換することでスペクトルを得ている。ここで微弱な近接場光を非常に強い単純散乱光のバックグラウンドと区別するため、チップと試料間の距離をピエゾ素子で変調してロックイン検出している。これにより IR-SR でも熱光源でも、チップ先端直径である 100 nm 程度の空間分解能で、700-2000 cm^{-1} 程度の領域をカバーするブロードバンド近接場分光を行えることが示された[6,8-10]。講演では cERL における赤外・THz 近接場分光の可能性についても言及したい。

- [1] 例えば“Nano-Optics and Near-Field Optical Microscopy” (A. Zayats and D. Richards, ed., Artech House, Boston, 2009).
- [2] レビューとして F. Keilmann and R. Hillenbrand, “Near-Field Nanoscopy by Elastic Light Scattering from a Tip”, Chapter 11 in Ref. [1].
- [3] URL: <http://www.neaspec.com/>.
- [4] 例えば S. C. Kehr, M. Cebula, O. Mieth, T. Hartling, J. Seidel, S. Grafstrom, L. M. Eng, S. Winnerl, D. Stehr, M. Helm: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 256403.
- [5] 例えば H.-G. von Ribbeck, M. Brehm, D. W. van der Weide, S. Winnerl, O. Drachenko, M. Helm, F. Keilmann: Opt. Express **16** (2008) 3430.
- [6] M. Ishikawa, M. Katsura, S. Nakashima, K. Aizawa, T. Inoue, H. Okamura, Y. Ikemoto: Opt. Express **19** (2011) 12469.
- [7] F. Huth, M. Schnell, J. Wittborn, N. Ocelic, R. Hillenbrand: Nat. Mater. **10** (2011) 352.
- [8] M. Ishikawa, M. Katsura, S. Nakashima, Y. Ikemoto, H. Okamura, Opt. Express **20** (2012) 11064.
- [9] Y. Ikemoto, T. Moriwaki, T. Kinoshita, M. Ishikawa, S. Nakashima, H. Okamura: e-J. Surf. Sci. Nanotech **9** (2011) 63.
- [10] Y. Ikemoto, M. Ishikawa, S. Nakashima, H. Okamura, Y. Haruyama, S. Matsui, Y. Moriwaki, T. Kinoshita: Opt. Commun. **285** (2012) 2212.