

近接場光による超高空間分解能イメージングに関する研究

学位論文内容の要旨

近接場光学は、従来より用いられてきた伝搬光の常識を打ち破る新しい概念である。その特徴は、回折限界の制限を受けず、しかも、物質との相互作用が強いという性質を有するということである。近接場光を用いる技術はナノフォトニクスと呼ばれ、計測、記録、加工など、多くの分野への波及が期待されている。その範囲は3次元的な微小領域で発生するいわゆる「純粋な」近接場光のみではなく、全反射で生じるエバネッセント光や、金属で生じるプラズモンなども含んだ大きな領域となり、産業的にも重要な技術となりつつある。このような研究開発に際し、実際には、近接場光の性質自体も十分に解明されていないこと、近接場光をハンドリングする技術が、いまだ未熟であることなどから、さまざまな課題が横たわっていることも事実である。本研究の目的は、今後、必須の技術になると予測されるナノフォトニクスの実用化のための課題を探り、そして、新しい技術構築を行うことである。企業で研究を行っている筆者の立場から、ナノフォトニクスの領域として、「純粋な近接場光学」に限定せず、より実用性の高い、エバネッセント光や表面プラズモンを含む広い範囲を想定した。それらの技術において ①物質との強い相互作用、②回折限界の影響を受けない超高分解能性を2つの重要な性質として位置付け、それに関する基礎、応用研究をおこなった。

本論文は11章で構成される。第1章で序論、第2章でナノフォトニクスの原理を述べる。第3章が物質との強い相互作用性に関する研究、第4章から第10章が回折限界の影響を受けない超高分解能性に関する研究の報告である。そして、第11章で本研究全体の結論を述べる。以下に、それぞれの章の概要を述べる。

第1章では、本研究の背景、歴史的経緯そして研究の意義などについて述べる。

第2章では、本研究の根幹を成す近接場光(エバネッセント光、表面プラズモン、近接場光)の発生原理について説明する。以下にそれぞれの研究の概要を示す。

第3章では、物質との強い相互作用を利用するナノフォトニクス応用技術であるSPRセンサの高性能化について述べる。金属薄膜で生じる表面プラズモン共鳴を用いるセンシングの高S/N化や、高スループット化を研究のターゲットとし、新たに開発した角度差分方式および波長安定化レーザの導入により、従来よりも1桁以上高いS/Nを実現した。さらに、プリズム一体成型チップを開発し、高スループット化という観点で、世の中で求められる性能を満たすことができる技術の可能性を示した。

第4章では、本技術の根幹である近接場光学顕微鏡について原理、制御法などの説明をおこなう。

第5章では、Cモード近接場光学顕微鏡によるバイオサンプルの観測について述べる。人工的に作製が難しい24 nmで安定形状のサンプルを天然から得て、近接場光の特性に関する研究を行った結果について述べる。本研究では、プローブを単なる近接場アンテナとしてだけではなく、近接場光-伝搬光変換をするシステムとして考えたことに大きな意義がある。

第6章では、Cモード近接場光学顕微鏡による液中バイオサンプルの観測についての研究結

果を述べる。本研究では、液中のサンプルを光フィードバック制御を用いる C モード近接場光学顕微鏡によって光学的に観測する手法を開発し、液中観測が可能であることを示した。

第 7 章では I モード近接場光学顕微鏡による銀塩結晶の観測に関する研究結果を述べる。基板上に分散した銀塩結晶の観測実験により、I モードの近接場光学顕微鏡で得られる画像が、サンプルプローブ間距離制御に用いられるシェアフォース制御に大きく影響を受け、アーチファクトが発生することを示した。さらに、微小部の散乱などが画像に与える影響について考察した。

第 8 章 I モード近接場光学顕微鏡による銀塩結晶上色素の蛍光観測について報告する。銀塩結晶上に分布する色素の蛍光を、回折限界以下の分解能で観測することに成功した。この測定により、銀塩結晶上に分布していても、蛍光を発する部分が限られていることがわかった。

第 9 章では発蛍光色素を用いる光記録について述べる。筆者らは、光照射によって非蛍光体から蛍光体に変化する物質を発見した。この物質を用いて近接場光記録再生の実験をおこない、回折限界以下の寸法での蛍光パターン記録に成功した。

第 10 章では、近接場光リソグラフィに関する研究結果について報告する。マスクを用いる一括露光型近接場光リソグラフィに 2 層レジストプロセスを導入し、高アスペクトのパターンを得ることに世界で初めて成功した。この章では、実験とともに、数値シミュレーションで得たいくつかの課題について述べる。これらの実験、シミュレーションにより、実用上、非常に重要である、マスク形状、レジスト膜厚、偏光特性と得られるパターンとの相間関係を明らかにした。

第 11 章では、本論文全体の結論を述べる。

本研究で新たに明らかになった、もしくは新たに実現した結果のうち、主なものは以下のとおりである。

(1) 金属薄膜で生じる表面プラズモン共鳴を用いるセンシングにおいて、新たに開発した角度差分方式および波長安定化レーザの導入により、従来よりも 1 桁以上高い S/N を実現した。さらに、プリズム一体成型チップを開発し、高スループット化という観点で、世の中で求められる性能を満たすことができる技術の可能性を示した。

(2) 近接場光学顕微鏡で得られる画像に対するプローブ形状、サンプルプローブ間距離、偏光の影響、プローブ制御法によるアーチファクトの影響を、実験的に観測し、その原理を説明した。

(3) 光フィードバックを用いる C モード近接場光学顕微鏡によって、液中のバイオサンプルを破壊することなく観測できるとことを示した。

(4) 2 層レジストを用いる近接場光リソグラフィにより、高分解能かつ高アスペクト比のパターニングに成功し、この手法が実用的に利用可能であることを示した。さらに、この研究を通して、近接場光の面露光においては、近接場光を発生するマスクの周期や被加工物（レジスト）の膜厚などに依存する多重反射干渉の影響が強いことを、実験およびシミュレーションで示した。特に、高屈折率基板界面では、伝搬光で生じるウィナー干渉の影響が大きいことを予測した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 馬 場 直 志

副 査 教 授 山 下 幹 雄

副 査 教 授 森 田 隆 二

学 位 論 文 題 名

近接場光による超高空間分解能イメージングに関する研究

近接場光の特徴は、回折限界の制限を受けず、しかも、物質との相互作用が強いということである。ナノフォトニクスと称される近接場光を用いる研究は、計測、記録、加工など多くの技術分野への波及が期待されている。その範囲は3次元的な微小領域で発生するいわゆる“純粋な”近接場光のみではなく、全反射で生じるエバネッセント光や、金属で生じるプラズモンなども含んだ大きな領域となり、産業的にも重要な技術となりつつある。しかし、実際には、近接場光の性質自体も十分に解明されていないこと、近接場光をハンドリングする技術がいまだ未熟であることなどから、さまざまな課題が横たわっている。本研究は、ナノフォトニクスの実用化のための課題を探りながら、新しい技術構築を行うことを目的としている。

本論文は11の章で構成されている。

第1章では、本研究の背景、歴史的経緯そして研究の意義などについて述べている。

第2章では、近接場光(エバネッセント光、表面プラズモン、近接場光)の発生原理について説明している。

第3章では、物質との強い相互作用を利用するナノフォトニクス応用技術である表面プラズモン共鳴センサの高性能化について述べている。金属薄膜で生じる表面プラズモン共鳴を用いるセンシングの高S/N化や、高スループット化をターゲットとし、新たに開発した角度差分方式および波長安定化レーザの導入により、従来よりも1桁以上高いS/Nを実現している。

第4章では、近接場光学顕微鏡の原理、制御法などの説明を行っている。

第5章では、コレクションモード(Cモード)近接場光学顕微鏡によるバイオサンプルの観測について述べている。ここでは、プローブを単なる近接場アンテナとしてだけでなく、近接場光-伝搬光変換をするシステムとして考えている。

第6章では、Cモード近接場光学顕微鏡による液中バイオサンプルの観測について述べている。液中のサンプルを光フィードバック制御を用いるCモード近接場光学顕微鏡によって光学的に観測する手法を開発し、液中観測が可能であることを示している。

第7章では、イルミネーションモード（Iモード）近接場光学顕微鏡による銀塩結晶の観測結果を述べている。基板上に分散した銀塩結晶の観測実験により、Iモードの近接場光学顕微鏡で得られる画像が、サンプルプローブ間距離制御に用いられるシェアフォース制御に大きく影響をうけ、アーチファクトが発生することを示している。さらに、微小部の散乱などが画像に与える影響について考察している。

第8章では、Iモード近接場光学顕微鏡による銀塩結晶上色素の蛍光観測について述べている。銀塩結晶上に分布する色素の蛍光を、回折限界以下の分解能で観測することに成功している。

第9章では、発蛍光色素を用いる光記録について述べている。著者らは、光照射によって非蛍光体から蛍光体に変化する物質を発見している。この物質を用いて近接場光記録再生の実験をおこない、回折限界以下の寸法での蛍光パターン記録に成功している。

第10章では、近接場光リソグラフィに関する研究結果について述べている。マスクを用いる一括露光型近接場光リソグラフィに2層レジストプロセスを導入し、高アスペクトのパターンを得ることに世界で初めて成功している。実験およびシミュレーションにより、マスク形状、レジスト膜厚、偏光特性と得られるパターンとの相関関係を調べている。

第11章は、論文全体の結論となっている。

これを要するに、著者は（1）金属薄膜で生じる表面プラズモン共鳴を用いるセンシングにおいて、新たに開発した角度差分方式および波長安定化レーザの導入により、従来よりも1桁以上高いS/Nを実現した。（2）近接場光学顕微鏡で得られる画像に対するプローブ形状、サンプルプローブ間距離、偏光の影響、プローブ制御法によるアーチファクトの影響を、実験的に観測してその原理を説明した。（3）光フィードバックを用いるCモード近接場光学顕微鏡によって、液中のバイオサンプルを破壊することなく観測できるところを示した。（4）2層レジストを用いる近接場光リソグラフィにより、高分解能かつ高アスペクト比のパターニングに成功し、この手法が実用的に利用可能であることを示し、近接場光の面露光においては、近接場光を発生するマスクの周期や被加工物（レジスト）の膜厚などに依存する多重反射干渉の影響が強いことを、実験およびシミュレーションで示した。

本研究によって得た知見はフォトニクス、応用物理学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。