

超高速・超並列ナノメカクス

Ultrafast Ultraparallel Nanomechanics

川 勝 英 樹*

Hideki Kawakatsu

1. はじめに

走査型力顕微鏡¹⁾ (以下, AFM, atomic force microscope) の力センサは, 通常, 長さ 100 ミクロンオーダーのカンチレバーの先端に, 数ミクロンの高さの探針を固定したものが用いられている. 試料と探針の相互作用の大小は, カンチレバーの静的変位や, 固有振動数や振幅の変化として計測されている. カンチレバーの種類を大別すると, 探針を試料に接触させた状態で走査するコンタクトモード用と, 探針を振動させてほぼ非接触に表面を走査するノンコンタクトモード用に分類される. 前者の場合, バネ定数が数 mN/m から N/m, 固有振動数が数 10 kHz, 後者の場合, バネ定数が数 10 N/m, 固有振動数が 300 kHz 程度である. カンチレバーを振動させてセンサーとして用いる場合, 固有振動数や Q 値を高く, バネ定数を低くすることが感度向上に有効である. 力分解能としては, $(fQ)^{-1/2}$, 質量分解能としては, $(f^5Q)^{-1/2}$ に比例する. ここで, f は固有振動数, Q は Q 値である. カンチレバーの小型化は, バネ定数を従来のものと大きく変えることなく, 固有振動数 f を高くすることを可能とし, 質量分解能を大きく向上させる可能性がある. また, 小型化は, カンチレバーの高集積化を可能とする. 本解説では, カンチレバーの小型化とそれに伴う原子間力顕微鏡の作動周波数の高周波化, 並びに並列化について述べ, 今後の展望に言及する.

2. ナノカンチレバー

走査型力顕微鏡の力検出素子は 1980 年代後半, スタンフォード大学の C. Quate, Akamine らによるシリコンマイクロ加工を通じて, 追試性の高い素子として実現された²⁾. カンチレバーのナノ化の試みは, 走査型トンネル顕微鏡³⁾ の発明者の一人, H. Rohrer の提案に基づき, V. Binh らにより 1992 年頃から開始されている. 彼らは, 1960 年代に

発見された製法で, 鋭利な金属探針を真空中で加熱し, 先端に頭部の直径が 100 nm, 頸部の直径が数 nm のこけし状の振動子状のものが生じる方法を用いていた⁴⁾. 著者らは, この製法の追試を行い, 実用性が確保できないことを

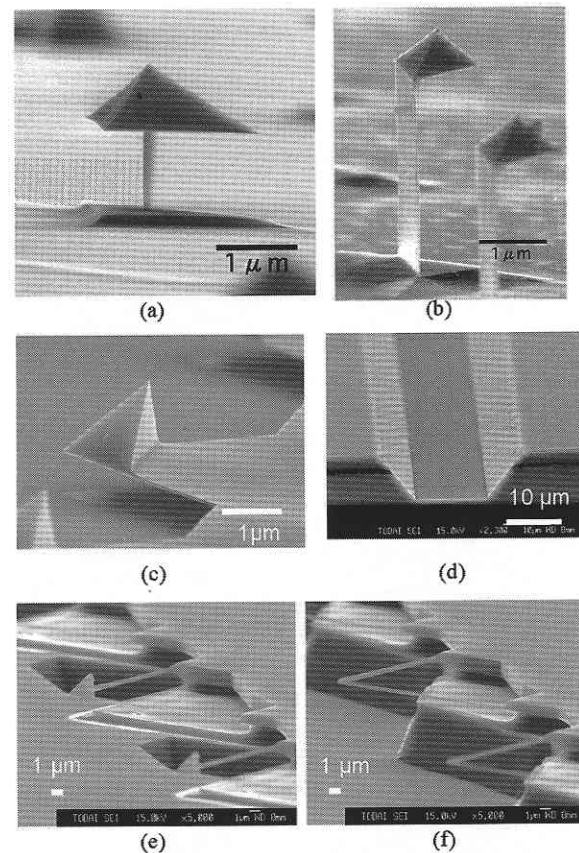


図 1. (a) シリコンの KOH による異方性エッチングを用いて得られた四面体探針と酸化シリコンの頸部からなる振動子, (b) ポリシリコンの斜め蒸着により得られたカンチレバー. シリコン <111> 面 2 面を用いた平行バネも作製可能である, (c) 単結晶シリコンからなる探針とカンチレバー, (d) シリコン <111> 面と <100> 面の交線を支持部に持つカンチレバーアレー, (e) ナノ細線により構成されるカンチレバー.

*東京大学生産技術研究所 マイクロメカトロニクス国際研究センター

確認し、シリコンを用いたナノカンチレバーの製法の研究を始めた⁵⁾。作製に当たっては、シリコンの KOH に対する異方性エッチング特性を用い、リソグラフィーの精度に大きく影響されることなく均質なカンチレバーが作製される様配慮した。なお、シリコンの異方性エッチングの研究として、Hashiguchi らの研究が挙げられる^{6,7)}。図 1 に作製したカンチレバーの例を示す。図 1(a) の振動子は探針とベースが単結晶シリコン、頸部が酸化シリコンからなる。(b) はポリシリコンの斜め蒸着により得られた、厚さ 30 nm、高さ 3 ミクロンの板状のカンチレバー、(c) は探針とカンチレバーのすべての面が結晶面から構成されるカンチレバー、(d) はシリコン <111> 面と <100> 面の交線を用いてカンチレバーの支持部を定義したもの、(e)、(f) はシリコン <111> 面 2 面と、シリコン <100> の底面から構成される細線を部材とするカンチレバー及びグループである。図 2 に図 1(c) のカンチレバーの作製方法を示す。他のカンチレバーの製法についても主に異方性エッチングを用いている⁸⁻¹²⁾。他の微小カンチレバーの例として、

Hosaka ら、Yang ら、Chand らの報告がある¹³⁻¹⁵⁾。

3. ナノカンチレバーの機械特性の評価

3.1 静的機械特性評価

市販の走査型電子顕微鏡（以下、SEM, scanning electron microscope）の試料台に装着される、大きさ 100 mm × 100 mm × 30 mm 程度の AFM を実現した^{16,17)}。AFM の試料台はピエゾ素子を用いた xyz の粗動機構を有し、SEM と AFM の観察位置を一致させることが可能である。この装置を用いて、AFM 探針を 3 次元ナノ構造物の所定の位置に位置決めし、バネ定数の測定や、試料の破断強度の測定が可能となった。図 3 に測定中の SEM 像を示す。電子線を AFM 探針と試料の接触位置近傍に数分間照射することにより、真空チャンバ内のコンタミナントを用いた接着が可能となり、引っ張り力の印加も可能である。

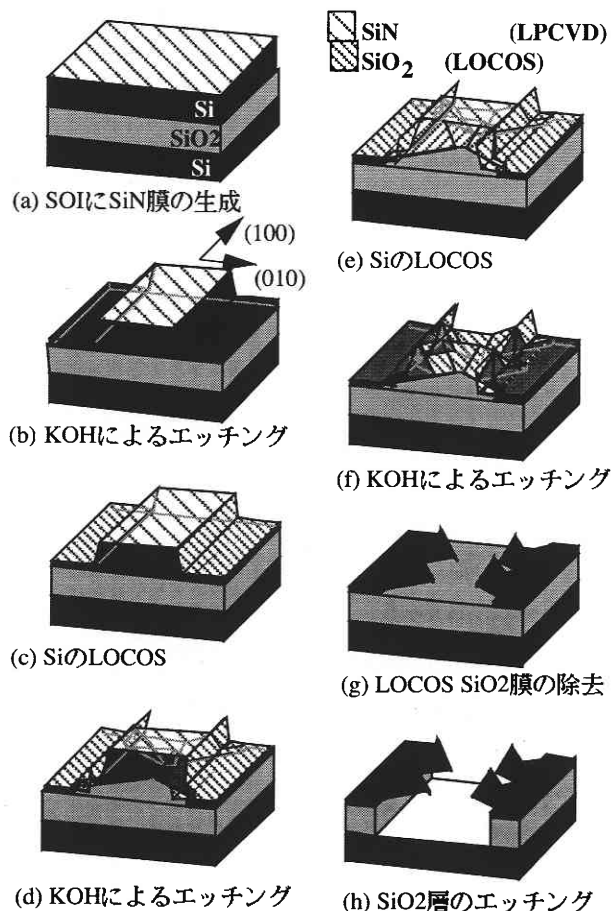


図2 単結晶シリコンカンチレバーの作製方法

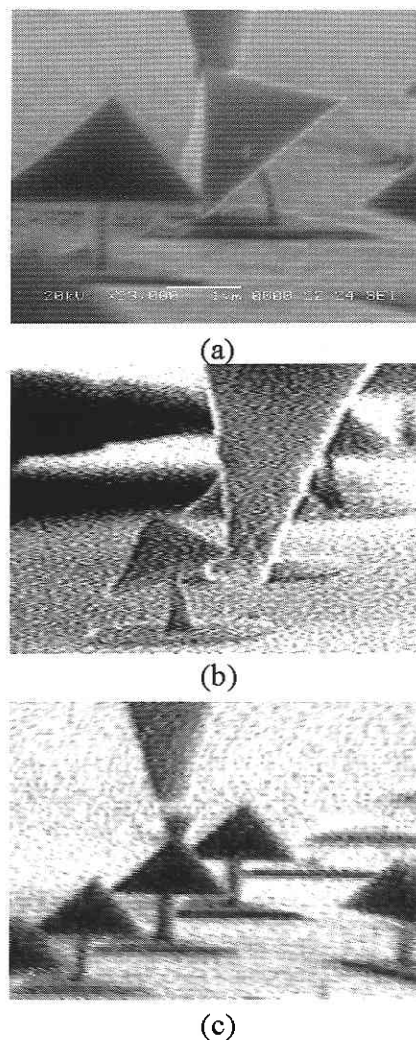


図3. 走査型電子顕微鏡内走査型力顕微鏡による3次元ナノ構造物の強度やバネ定数の測定の様子。

3.2 動的機械特性評価

ナノカンチレバーの大きさは、サブミクロンオーダーで、その固有振動数は MHz から GHz に達する。光学検出方法として、従来からある、光てこ¹⁸⁾ や、ホモダイン干渉計¹⁹⁾ は使用が困難であると考え、新規に光励振機能を有するヘテロダインレーザドップラー計を実現した。図4に光学系を示す。ヘリウムネオン管の 890 MHz における縦モード間ビートと 200 MHz の光音響変調素子を用いることにより、1.1 GHz のキャリア周波数を有する。その結果、200 MHz 程度までの速度計測が可能である。今までに、長さ 2 ミクロン、幅 100 nm、固有振動数 90 MHz の両持ち梁や、60 MHz のカンチレバーの固有振動数や Q 値の測定を実現している。また、レーザドップラー計の出力をカンチレバーの励振機構に帰還することにより、自励の発生を確認している。加振の方法としては、 piezo 素子や強度変調されたレーザ光が使用可能である。後者に関しては、1 GHz 程度まで対応可能なため、高周波化に適している。カンチレバーを自励させた状態で探針を試料に近づけ、周波数変化や振幅変化を計測することにより、ノンコンタクトモード AFM としての作動が可能である²⁰⁾。質量分解能の計算値は、既に作製したカンチレバーを例にとると、固有振動数 40 MHz、Q 値 8000、バネ定数 10 N/m、振幅 10 nm のものでは、 10^{-22} g オーダとなる。100 MHz のカンチレバーで同様の Q 値のものが実現されると、質量分解能は 10^{-23} g となり、原子レベルの質量分解能が得られることになる。なお、高真空で行っている予備実験では、周波数揺らぎが計算値の数 10 倍あり、今後の低温超高真空での結果をもって本手法の実際の分解能を評価する必要がある。また、Q 値が 20 万程度あるカンチレバーでも、振動の非線形性が数 nm の比較的低振幅で顕在化するものがあり、その様なカンチレバーでは、周波数ノイズが期待値ほど下がらないことも観察された。今後、計測系とカンチ

レバーの双方で、周波数ノイズの発生要因を明らかにし、その低減を図る必要がある。この節で紹介した計測方法では、少なくとも 100 nm の幅のターゲットの振動を計測することが可能であり、様々なナノ構造物の周波数特性やその検出素子としての分解能の評価に応用可能である。

4. ラテラルフォース顕微鏡

レーザドップラー計のレーザスポットは直径 1 ミクロン程度で、局所速度計測が可能である。市販のカンチレバーは、その幅が 20 ミクロン程度あるため、カンチレバーの長手方向の一辺の近傍にレーザスポットを当てると、カンチレバーの捻れを計測したり、そのモードを自励させることが可能である。市販のノンコンタクトモード用カンチレバーの場合、たわみの 1 次と 2 次、捻れの 1 次と 2 次が 300 kHz から 8 MHz の間に計測されている。カンチレバーに捻れ自励を生じさせると、探針先端は円弧運動を行い、探針を試料面方向に位置変調する計測が可能となる。ドップラー計測は速度計測であるため、同一振幅であっても振動数が高くなると信号レベルが高くなる。そのため、カンチレバーの高周波化や高次モードの使用に適している。1 次の捻れ自励にドップラー計の出力帰還を用いた場合、適切なフィルタの使用を通じ、2 MHz において 0.1 nm の振幅で安定した自励の持続が可能であった。このような捻れ自励を生じさせた状態で探針を黒鉛の結晶面に近接させ、周波数シフトを +20 Hz に保つように試料台を上下させながら探針の走査を行った。図5に試料台の piezo 素子に印加した電圧を xy に対しプロット下ものを示す。結晶ステップが 2 個観察された。外側のステップは高さの差が 0.3 nm あったため、単原子ステップと考えられる。ステップ近傍での周波数シフトの増大に抗して試料台が下がるため、壁の様なアーティファクトが見られた。なお、シリコン

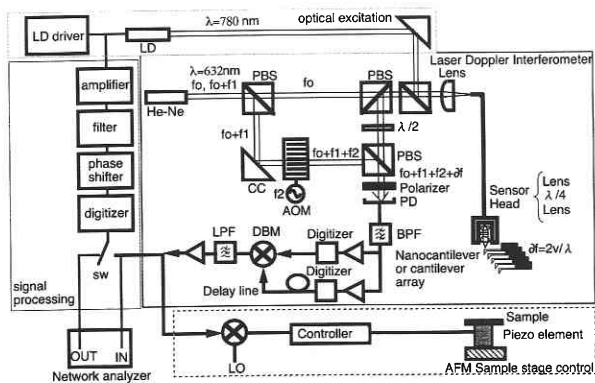


図4 1.1 GHz のキャリア周波数を有するヘテロダインレーザドップラー計を有する AFM の構成図。幅 50 nm 程度のカンチレバーの周波数計測が可能であった。

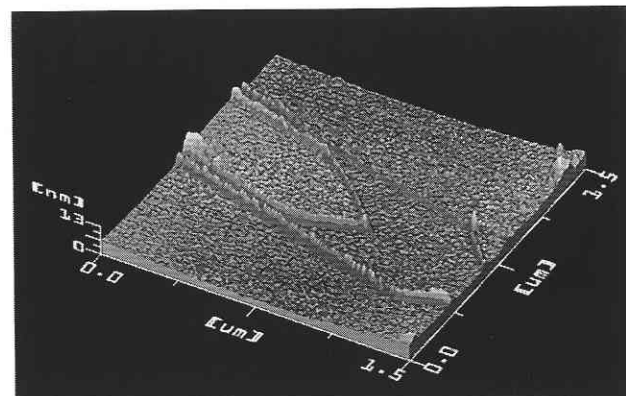


図5 ラテラル力顕微鏡によるグラファイトの原子ステップ像。市販のシリコンノンコンタクトモード用カンチレバーを捻れの 1 次モード 2 MHz で自励させた。振幅約 1 nm、周波数シフト +20 Hz。単原子ステップでの大きな周波数シフトが観察される。

< 111 > 7×7 に関しては、原子分解能の取得に成功している。ラテラルフォース顕微鏡による原子分解能の取得としては音叉を用いた Gissibl の研究²¹⁾、光てこを用いた Meyer²²⁾ の研究がある。但し、これらはトンネル電流を用いて探針試料間距離を制御している。また、コンタクトモードの捻れ自動で異なる自己生成分子膜のコントラスト像が得られている²³⁾。

5. カンチレバーの並列化

5.1 カンチレバーアレーの計測

カンチレバーの小型化を通じ、多数のカンチレバーを集積することが可能となった²⁴⁾。従来の研究では、カンチレバーないしそのベースに変位計測のための回路やグレーティングなどの構造を作製する例がほとんどであった²⁵⁻³⁰⁾。本研究では、カンチレバーアレーに回路等を組み込むことは取立てを行わず、光学的検出により計測を行うことを目指した。その理由は、高集積化を行うこと、カンチレバーの修飾を行うこと、容易に多数のカンチレバーに対応しうること、マイクロファブリケーションの研究にしめる比重を大きくしないこと、などである。現在実現しているカンチレバーは個々には z 方向の位置決め機構を有さないため、その使用法は若干限定される。予想される使用例としては、(i) z 方向無制御での試料との接触走査と、各カンチレバーの静的変位の計測、(ii) 磁気力顕微鏡などの、比較的遠距離での試料計測が可能な顕微鏡への応用、(iii) 各カンチレバーを所定の物質で修飾し、特定の物質を捕捉したことを静的たわみや周波数変化として捉えること³¹⁻³²⁾、等が挙げられる。カンチレバーの位置計測のため、カンチレバーと基板のなす空隙を干渉キャビティに用い、レーザスポットを基板の上に位置決めしたところ、良好なフリンジの計測が可能となった。ビジビリティは 0.1 であった²⁴⁾。基板としてはシリコンを用い、波長 1.3 ミクロンのレーザダイオードを用いた。

レーザの走査により、順次カンチレバーの変位ないし固有振動数が計測可能となると考えられる。図 6 に 88 本のカンチレバーが並んだ物を示す。基板としては、シリコンや透明基板での作製が可能である。前述した、光励振機能を有するヘテロダイナミックドップラー計を用い、励振光と計測光を一点に集めた上で走査することにより、カンチレバーの順次励振と周波数計測が可能である。ネットワークアナライザを用いて励振光の変調周波数を掃引することにより、一括で各カンチレバーの周波数が計測可能である。今後、1 秒で数百から千のカンチレバーの周波数変化の計測を可能とすると共に、各カンチレバーに物質捕捉用の修飾を行い、周波数情報から複数の物質検出を可能とする。

5.2 無摩擦摺動や同時加工

10 ミクロンピッチのカンチレバーアレーで、各カンチ

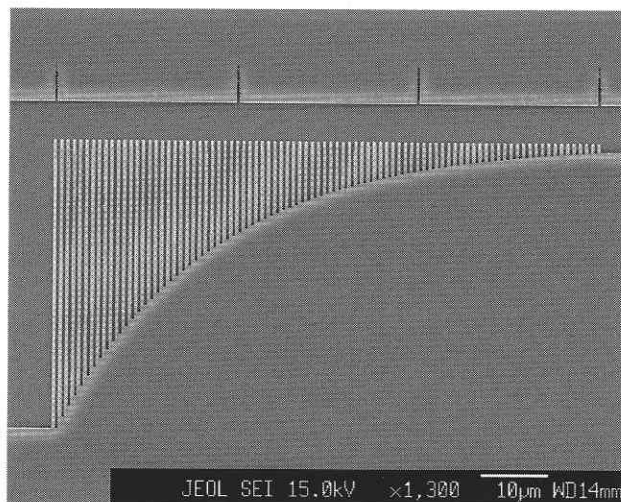


図 6 ナノピアノの電子顕微鏡図。周波数は 1 MHz から 100 MHz。調律は平均律とした。

レバーのバネ定数が 1 N/m 程度のもので作製可能となった。このようなカンチレバーアレーのチップは、1 平方センチメートルで自重約 0.1 g、カンチレバーの本数は 100 万本である。各探針でチップの自重を均等に支えると、各探針の受け持つ力は、 $0.1 \text{ gf}/10^6 = 1 \text{ nN}$ となる。つまり、能動制御を用いることなく、通常のコンタクトモード AFM で用いられているようなレベルの力が達成可能となる。従来からの研究で、AFM 探針を雲母や黒鉛に摺動させた場合、力が 50 nN 程度を越えないと原子レベルで摩擦が進まないことが観察されている³³⁾。100 万点による摺動でも、吸着水の影響等を考慮すれば、同様の現象が実現できると考えられる。また、探針一本の AFM でいままでに報告されている、陽極酸化法やコンタクトプリンティング法などのリソグラフィ技術のカンチレバーアレーに展開し、規則正しいパターンニングに応用することが期待できる。ここでも重要な点は、各探針がコンプライアントに支持されており、制御によらず nN オーダの接触力が得られる点である。押しつけ力が弱いと欠落を生じ、強いと分解能が低下する、といった従来のパターンニング加工の問題点が解決されると考えられる。

6. 今後の展望と課題

ナノカンチレバーに関しては、力分解能と質量分解能のそれぞれについて、性能の極大点を見いだす。周波数ノイズの低減を図りつつ、分子や原子のスイッチングによる周波数シフトの離散化を確認し、物質同定の可能性を調べる。最近、100 nm 以下のターゲットの周波数計測が可能となり、ウイスカ結晶やナノチューブなどの振動子センサとしての評価が可能となった。シリコンと平行してこれらの材料の応用を検討する。走査型力顕微鏡としては、原子分解

能のラテラルフォース顕微鏡を確立し、サイト別の振動エネルギー散逸、方位別散逸の計測や、試料の周波数特性のマッピングを行う。この手法によっても、表面の異なる物質や状態の間でコントラストが得られると考えている。カンチレバーアレーに関しては、用途によって数種類の形態が考えられる。磁気力顕微鏡や物質センシングを念頭に、周波数計測を主眼においた光学系と、細胞のラテラル力の多点計測を念頭に置いたアレー構造に力点を置いて研究を進めたい。

謝 辞

本解説に記した研究成果は以下の諸氏との研究や議論を通じて得られた。ナノカンチレバー：東大藤田博之教授、年吉洋助教授、小林大 JST 研究員、佐谷大輔元博士研究員、大学院生川井茂樹氏、大学院生永塩正徳氏、大学院生長野泰昌氏、星泰雄助手、池田耕吉技術官、レーザドップラー計：目黒栄氏、走査型力顕微鏡：北村真一氏、ここに感謝の意を表したい。本研究の一部は、文部科学省科研費、JST 権利化試験事業研究費、ならびに JST 戦略的創造研究事業費によって行われた。

(2003 年 9 月 10 日受理)

参 考 文 献

- 1) G. Binnig, C. F. Quate, Ch. Gerber, "Atomic Force Microscope," *Phys. Rev. Lett.* (1986) 930.
- 2) Akamine S, Barrett RC, Quate CF: Improved atomic force microscope images using microcantilevers with sharp tips, *Appl. Phys. Lett.* 57, (1990), 316.
- 3) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel: Surface studies by scanning tunneling microscopy *Phys. Rev. Lett.*, (1982) 57.
- 4) V. Binh, N. Garcia, A. Levanyuk : A mechanical nanosensor in the Gigahertz range-where mechanics meets electronics, *Surf. Sci.* 301 (1994) L 224.
- 5) H. Kawakatsu, D. Saya, H.-J. Guentherodt H. Hug, and M. deLabachellerie: Feasibility studies on a nanometric oscillator fabricated by surface diffusion for use as a force detector in scanning force microscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.* 6 B, (1999) 3954.
- 6) G. Hashiguchi, H. Mimaura: New fabrication method and electrical characteristics of conical silicon field emitters, *Jpn. J. Appl. Phys.* 34 (1995) 1493.
- 7) G. Hashiguchi, H. Mimaura: Fabrication of silicon quantum wires using separation by implanted oxygen wafer, *Jpn. J. Appl. Phys.* 33 (1994) L 1649.
- 8) H. Kawakatsu, H. Toshiyoshi, D. Saya, K. Fukushima, H. Fujita: Strength measurement and calculations on silicon-based nanometric oscillators for scanning force microscopy operating in the gigahertz range, *Appl. Surf. Sci.* 157, (2000) 320.
- 9) H. Kawakatsu, D. Saya, K. Fukushima, H. Toshiyoshi, and H. Fujita: Fabrication of a silicon based nanometric oscillator with a tip form mass for scanning force microscopy operating in the GHz range, *J. Vac. Sci. Technol. B*, (2000) 607.
- 10) H. Kawakatsu, H. Toshiyoshi, D. Saya and H. Fujita: A silicon based nanometric oscillator for scanning force microscopy operating in the 100 MHz range, *Jpn. J. Appl. Phys.* 6 B, (1999) 3962.
- 11) D. Saya, K. Fukushima, H. Toshiyoshi, H. Fujita, G. Hashiguchi, and H. Kawakatsu: Fabrication of Silicon-Based Filiform-Necked Nanometric Oscillators, *Jpn. J. Appl. Phys.* 39, (2000) 3793.
- 12) D. Saya, K. Fukushima, H. Toshiyoshi, G. Hashiguchi, H. Fujita, and H. Kawakatsu: Fabrication of single-crystal Si cantilever array, *Sensors and Actuators A* 95, (2002) 281.
- 13) J. Yang, T. Ono, M. Esashi: Mechanical behavior of ultrathin microcantilever, *Sen. Actuat. A* 82, (2000) 102.
- 14) S. Hosaka, K. Etoh, K. Kikukawa, H. Koyanagi: Megahertz silicon AFM cantilever and high-speed readout in AFM-based recording, *J. Vac. Sci. Technol. B* 18 (2000) 94.
- 15) A. Chand, M.B. Viani, T.E. Schaffer, P.K. Hansma: Microfabricated small metal cantilevers with silicon tip for AFM, *J. Microelectromech. Syst.* 9 (2000) 112.
- 16) K. Fukushima, D. Saya, and H. Kawakatsu: Development of a Versatile Atomic Force Microscope within a Scanning Electron Microscope, *Jpn. J. Appl. Phys.* 39, (2000) 3747.
- 17) K. Fukushima, S. Kawai, D. Saya and H. Kawakatsu: Measurement of mechanical properties of three dimensional nanometric objects by an atomic force microscope incorporated in a scanning electron microscope, *Review of Scientific Instruments* 73, (2002) 2647.
- 18) G. Meyer and N. M. Amer: Novel optical approach to atomic force microscopy, *Appl. Phys. Lett.*, (1988) 1045.
- 19) D. Rugar, H. J. Mamin, R. Erlandsson, J. E. Stern, and B. D. Terris: Force microscope using a fiber-optic displacement sensor, *Rev. Sci. Instrum.* (1988) 2337.
- 20) H. Kawakatsu, S. Kawai, D. Saya, M. Nagashio, D. Kobayashi, H. Toshiyoshi, and H. Fujita: Towards Atomic Force Microscopy up to 100 MHz, *Review of Scientific Instruments* 73, (2002) 2317.
- 21) F. Giessibl, M. Herz, J. Mannhart: Friction Traced to the single atom, *PNAS* 99, (2002) 12006.
- 22) O. Pfeiffer, R. Bennewitz, A. Baratoff and E. Meyer: Lateral-force measurements in dynamic force microscopy, *Phys. Rev. B* 65, (2002) 161403.
- 23) T. Kawagishi, A. Kato, Y. Hoshi, and H. Kawakatsu: Mapping of lateral vibration of the tip in AFM at the torsional resonance of the cantilever, *Ultramicroscopy* 91 (2002) 37.
- 24) H. Kawakatsu, D. Saya, A. Kato, K. Fukushima, H. Toshiyoshi, and H. Fujita: Millions of cantilevers for atomic force microscopy, *Review of Scientific Instruments*, 73, (2002) 1188.
- 25) M. Despont, J. Brugger, U. Drechsler, U. Duerig, W. Haeblerle, M. Lutwyche, H. Rothuizen, R. Stutz, R. Widmer, G. Binnig, H. Rohrer, P. Vettiger: VLSI-NEMS chip for parallel AFM data storage, *Sens. Actuat. A* 80 (2000) 100.
- 26) M. Lutwyche, C. Andreoli, G. Binnig, J. Brugger, U. Drechsler, W. Haeblerle, H. Rohrer, H. Rothuizen, P. Vettiger, G. Yaralioglu, C. F. Quate: 5 by 5 2-D AFM cantilever arrays. A first step towards a terabit storage device, *Sens. Actuat. A* 73, (1999) 89.
- 27) E. M. Chow, H.T. Soh, H.C. Lee, J.D. Adams, S.C. Minne, G. Yaralioglu, A. Ataler, C.F. Quate, T. W. Kenny: Integration of through wafer interconnects with a two-dimensional cantilever array, *Sens. Actuat. A* 83 (2000) 118.
- 28) E.M. Chow, G. Yaralioglu, C. Quate: Characterization of a two-

- dimensional cantilever array with through-wafer electrical interconnects, *et al.* Appl. Phys Lett 80 (2002) 664.
- 29) N. Abedinov, P. Grabiec, T. Gotszalk, T. Ivanov, J. Voigt, I. Rangelow: Micromachined piezoresistive cantilever array with integrated resistive microheater for calorimetry and mass detection, J. Vac. Sci. Technol. A 19, (2001) 2884.
- 30) M. Poggi, L. Bottomley, P. Lillehei: Scanning probe microscopy, Anal. Chem. 74. (2002) 2851.
- 31) M. K. Baller, H. P. Lang, J. Fritz, Ch. Gerber, J. K. Gimzewski, U. Drechsler, H. Rothuizen, M. Despont, P. Vettiger, F. M. Battiston, J. P. Ramseyer, P. Fornaro, E. Meyer, and H.-J. Guentherodt: A cantilever array-based artificial nose, Ultramicroscopy, (2000) 1.
- 32) B. Ilic, D. Czaplewski, M. Zalalutdinov, and H. G. Craighead, P. Neuzil, C. Campagnolo and C. Batt: Single cell detection with micromechanical oscillators, J. Vac. Sci. Technol. B 19, (2001), 2825.
- 33) J. Hu, X. Xiao, D. Ogletree and M. Salmeron: Atomic-scale friction and wear of mica, Surf. Sci. 327, (1995) 358.