慶應義塾大学学術情報リポジトリ
Keio Associated Repository of Academic resouces

Title	近接場光学熱顕微鏡を用いたナノスケールその場温度イメージングとナノデバイス制御
Sub Title	Nanoscale optical thermometry using near-field optics for thermal control of nanodevices
Author	田口, 良広(Taguchi, Yoshihiro) 牧, 英之(Maki, Hideyuki)
Publisher	
Publication year	2018
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2017.)
JaLC DOI	
Abstract	本研究では, 動作中のナノデバイスの温度分布をナノスケール空間分解能でセンシング可能な新しい測定技術を開発し, ナノデバイス制御へと応用することを目的としている。本研究において, ナノスケール空間分解能を実現する近接場蛍光熱顕微鏡ならびに近接場偏光熱顕微鏡を開発し, その妥当性を解析的かつ実験的に明らかにした。特に, 融着型近接場ファイバプローブを新たに提案し, 高感度に局所的な温度センシングに成功している。また, ナノデバイスの構造を制御することで, ホットスポットを制御できることを明らかにした。 The nanoscale optical thermometry is strongly demanded for the thermal design of nanodevices. In this study, non-contact temperature measurement techniques using a near-field fluorescence and a near-field polarization were developed. The highly efficient near-field optical fiber probe was proposed using the fusion splicing technique with the photonic crystal fiber. In the experiments, the temperature dependence of the near-field fluorescence and the near-field polarization was detected with 70 nm apertured near-field optical fiber probe, and the validity of the methods was analytically and experimentally confirmed. Furthermore, these findings indicated the adequacy of the thermal control of nanodevices.
Notes	研究種目 : 基盤研究(B)(一般) 研究期間 : 2015 ~ 2017 課題番号 : 15H03934 研究分野 : ナノ熱工学
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_15H03934seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成　３０　年　　６　月　　１　日現在

機関番号：　３２６１２
研究種目：　基盤研究(B)（一般）
研究期間：　2015～2017
課題番号：　１５Ｈ０３９３４

研究課題名（和文）近接場光学熱顕微鏡を用いたナノスケールその場温度イメージングとナノデバイス制御

研究課題名（英文）Nanoscale Optical Thermometry using Near-field Optics for Thermal Control of Nanodevices

研究代表者

田口　良広（Taguchi, Yoshihiro）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・准教授

研究者番号：３０４３３７４１

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　12,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、動作中のナノデバイスの温度分布をナノスケール空間分解能でセンシング可能な新しい測定技術を開発し、ナノデバイス制御へと応用することを目的としている。本研究において、ナノスケール空間分解能を実現する近接場蛍光熱顕微鏡ならびに近接場偏光熱顕微鏡を開発し、その妥当性を解析的かつ実験的に明らかにした。特に、融着型近接場ファイバプローブを新たに提案し、高感度に局所的な温度センシングに成功している。また、ナノデバイスの構造を制御することで、ホットスポットを制御できることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：The nanoscale optical thermometry is strongly demanded for the thermal design of nanodevices. In this study, non-contact temperature measurement techniques using a near-field fluorescence and a near-field polarization were developed. The highly efficient near-field optical fiber probe was proposed using the fusion splicing technique with the photonic crystal fiber. In the experiments, the temperature dependence of the near-field fluorescence and the near-field polarization was detected with 70 nm apertured near-field optical fiber probe, and the validity of the methods was analytically and experimentally confirmed. Furthermore, these findings indicated the adequacy of the thermal control of nanodevices.

研究分野：　ナノ熱工学

キーワード：　温度センシング技術　熱物性　近接場光

１．研究開始当初の背景

近年、低次元ナノ材料を用いた様々なデバイスの開発が飛躍的に進んでおり、特にスーパーコンピューター等電子デバイスの光インターコネクト用発光素子としてカーボンナノチューブやグラフェンのジュール発熱による熱ふく射を利用したナノ発光デバイス[1-4]の開発が注目されている。これらカーボン系低次元ナノ材料を用いた次世代ナノ発光デバイスは従来のインジウムなどの希少元素やヒ素などの有害元素を使用することなく容易に電子デバイス上に集積化でき、その優れた高速変調特性と発光波長特性から光・電子集積回路のみならずバイオ分析チップまでの幅広い分野においてブレークスルーをもたらすと期待されている。しかしながら、時間応答性や波長選択性を実用化レベルに向上させるためには動作中のナノデバイスにおける温度分布と温度応答特性をナノスケールで明らかにし、基板と低次元ナノ材料の接触状態や欠陥配置を高度に制御する必要がある。

デバイスの熱的性質あるいは温度分布を測定する試みはこれまでに多く行われており、微細孔を有するシリコン薄膜におけるフォノン散乱効果やナノ薄膜の熱伝導率サイズ効果などナノ熱工学分野の進展は目覚ましい。しかしながら、動作中の次世代ナノ発光デバイスの温度分布あるいは温度応答特性を非接触かつナノスケール分解能で測定した例は国内外でも例は無い。これは、ナノデバイスのその場温度イメージングに際して、非接触性と高時空間分解能を両立しなければならず技術的要求レベルが高いためであり、現状ではバルク的分析に留まっている。

２．研究の目的

本研究は、動作中のナノデバイスについて温度分布および温度応答特性を非接触かつナノスケール分解能でイメージング可能な新しい計測技術を開発し、熱工学的観点からナノデバイス特性の制御実現を目指す。本研究開発により、ナノ熱工学システムデザインに基づくナノデバイス制御を世界に先駆け創出することが可能となり、熱工学ばかりでなく材料工学、電子デバイス工学分野の発展に寄与する。

３．研究の方法

動作中のナノデバイスの温度分布および温度応答特性を非接触かつナノスケール分解能でイメージングするために、本研究では近接場光を用いたセンシング技術を開発する。具体的には、下記に示す２つのセンシング技術を開発し、ナノデバイスへの適用性とナノデバイス制御に向けた検討を行った。

（１）近接場蛍光寿命を用いたナノスケール温度測定技術の開発

（２）近接場偏光に着目した高感度サーマルセンシング技術の開発

４．研究成果

（１）近接場蛍光熱顕微鏡の開発

蛍光寿命の温度依存性を利用して、デバイスの温度分布をナノスケールで計測可能なシステムを新しく構築した（図１）。光の波長よりも小さな開口が形成された近接場ファイバプローブに励起光をカップリングし、試料表面に修飾された蛍光分子を励起し、蛍光発光を再び近接場ファイバプローブで検出することでナノスケール空間分解能を達成することができる。

ナノ領域からの微弱な蛍光発光を高感度に検出するために、本研究では図２に示す融着型近接場ファイバプローブを提案した。従来のファイバでは励起光に起因したファイバからの自家蛍光が極めて大きく、近接場信号は自家蛍光に埋もれてしまい検出することが不可能であった。提案する融着型近接場ファイバプローブは自家蛍光がないフォトニッククリスタルファイバと先鋭化に必要なファイバを融着することで自家蛍光の低減を行っている。融着パラメータや先鋭化エッチングパラメータなどのファブリケーションプロトコルを構築し、開口径 70 ㎚ の融着型近接場ファイバプローブを作製することに成功した。

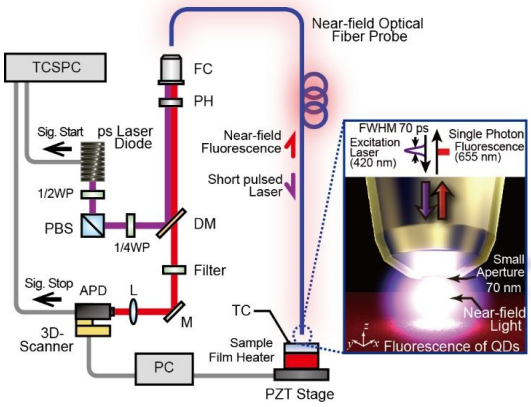


図１　近接場蛍光熱顕微鏡の概要。

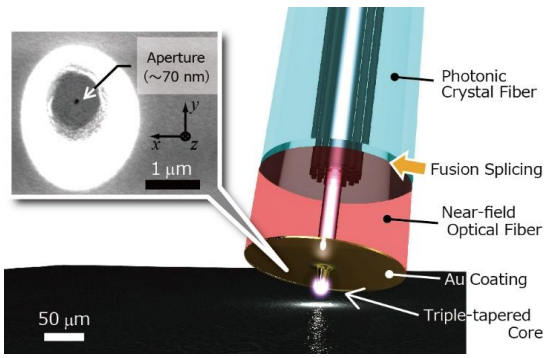


図２　融着型近接場ファイバプローブ

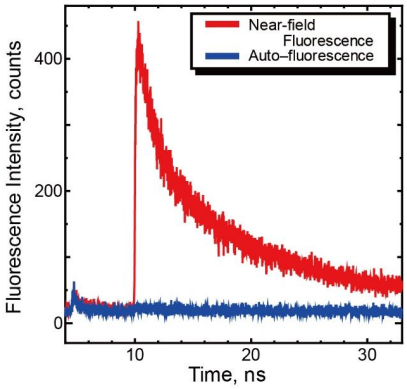


図３　提案手法によるノイズ抑制効果

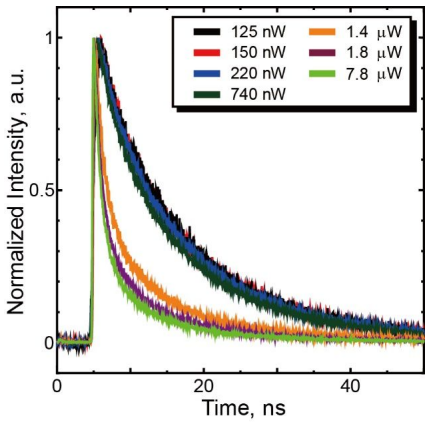


図４　検出波形の励起光強度依存性

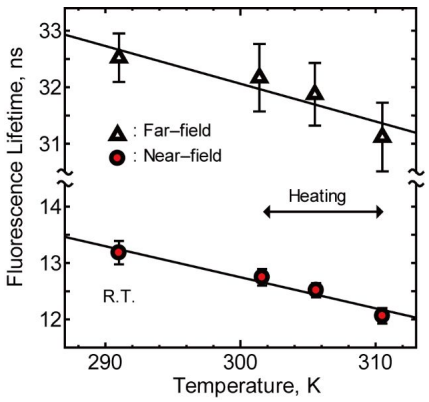


図５　近接場蛍光寿命の温度依存性

作製した開口径 70 ㎚の近接場ファイバプローブを用いて蛍光発光を検知した結果、ノイズ成分を大幅に抑制することが可能であることが明らかになった（図３）。

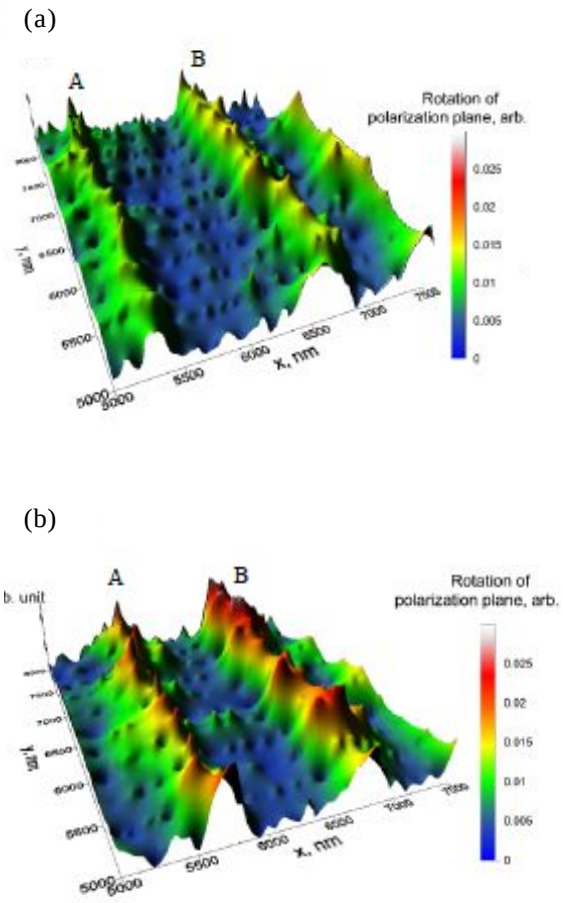
図４に測定される蛍光減衰波形の励起光強度依存性を示した。本研究では、近接場蛍光の検知に単一光子計数法を用いており、単一光子条件にならない励起光強度ではパイルアップ効果により波形に予期しない光子が重畳し、歪ませてしまうことが判明した。適切な励起光強度を用いることによって、歪みのない近接場蛍光減衰波形を取得することが可能となった。

本研究では、開口径 70 ㎚の近接場ファイバプローブを用いて、蛍光寿命の温度依存性を明らかにしている。図５に示すように、蛍光分子の蛍光寿命は温度に依存して短くなることが分かった。

（２）近接場偏光熱顕微鏡の開発

ナノワイヤなどで構成されるナノデバイスにおいて、近接場偏光が温度に依存して大きく回転することが解析の結果明らかとなった。近接場偏光熱顕微システムを構築し、ジュール加熱されたナノワイヤに適用した結果、ジュール加熱によるナノスケール温度分布をセンシングすることに成功した（図６）。

また、開発してきた近接場光システムを用いることによって、ナノメンブレン構造を形成することで、フォトサーマル効果を制御できることを見出しており、ナノ制御の知見を得るに至った。



(a)通電加熱 OFF 時の近接場偏光面回転
(b)通電加熱 ON 時の近接場偏光面回転

図６　近接場偏光面回転の温度依存性

＜参考文献＞

① Wei, Y., et al, Nano Lett., Vol. 12, pp. 2548-2553, (2012).
② Cronin, S.B., et al, ACS Nano, Vol. 5, pp. 4634-4640, (2011).
③ Dai, L, et al, Appl. Phys. Lett., Vol. 96, p. 143107, (2010).
④ Fan, S., et al, Adv. Mater., Vol. 21, pp. 3563-3566, (2009).

５．主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 2 件）

① Seto, D., Nikka, R., Nishio, S., Taguchi, Y., Saiki, T. and Nagasaka, Y., “Nanoscale Optical Thermometry using a Time-correlated Single-photon Counting in an Illumination-collection mode”, Applied Physics Letters, Vol. 110, No. 3, pp. 033109/1-4, (2017). 査読有り

② Murakami, Y., Goto, H., Taguchi, Y., and Nagasaka, Y., “Measurement of Out-of-plane Thermal Conductivity of Epitaxial YBa2Cu3O7-δ Thin Films in the Temperature Range from 10 K to 300 K by Photothermal Reflectance”, International Journal of Thermophysics, Vol. 38, pp. 160/1-22, doi: 10.1007/s10765-017-2294-7, (2017).査読有り

〔学会発表〕（計 20 件）

① Nagashima, T., Yamada, K., Chonan, Y., Sudo. R., and Taguchi, Y., “Development of Selective Pattering Method of Biomolecules Using Photothermal Effect on Engineering Plastic Micro Wells”, 2017 International Conference on Optical MEMS and Nanophotonics , (New Mexico, USA.), (August 2017).

② 沖津俊太，前田琢眞，田口良広，長坂雄次，“偏光近接場光学熱顕微鏡を用いた金属ナノワイヤの高分解能・広視野温度測定に関する研究”，第 54 回日本伝熱シンポジウム，（日本伝熱学会，さいたま市，2017 年 5 月）．

③ 三浦浩明，西尾昌悟，田口良広，牧英之，斎木敏治，長坂雄次，“量子ドットを表面修飾した白色発光ナノデバイスの温度分布イメージング”，第 54 回日本伝熱シンポジウム，（日本伝熱学会，さいたま市，2017 年 5 月）．

④ 田村彩菜，西尾昌悟，田口良広，“近接場蛍光を用いた細胞の in-vitro 温度センシングに向けた検討”， Biothermology Workshop（基礎生物学研究所 共同利用研究会，岡崎，2016 年 11 月）．

⑤ Goto, H., Taguchi, Y., and Nagasaka, Y., “Development of Photothermal Reflectance Method for In-plane Thermal Conductivity of High-Tc Superconducting YBCO Thin Films”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑥ Nishio, S., Taguchi, Y., Maki, H., Saiki, T. and Nagasaka, Y., “Study on Temperature Imaging Technique for CNT Light Emitter using Fluorescence Lifetime in Near-field”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑦ Maeda, T., Taguchi, Y., Saiki, T. and Nagasaka, Y., “Study on Nanoscale Temperature Measurement Using Polarized Near-field Optics Thermal Nanoscopy”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑧ Oikawa, H., Taguchi, Y. and Nagasaka, Y., “Evaluation of Local Thermal Conductivity of Thermal Interface Material Using Photothermal Radiometry”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑨ Sato, D., Taguchi, Y. and Nagasaka, Y., “Development of Evaluation Method for Degradation in Bump Joint of Flip Chip Assembly Structure”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑩ Nagashima, T., Jinde, M., Chonan, Y., Sudo, R. and Taguchi, Y., “Development of Bio-Lithography Technique by Using Thermal Patterning of Self-Assembled Monolayer”, 11th Asian Thermophysical Properties Conference, (Yokohama, Japan), (October, 2016).

⑪ 長島岳紘，神出真緒，長南友太，須藤亮，田口良広，“近接場光を用いた自己組織化単分子膜の熱的パターニングによるバイオリソグラフィ”，第 53 回日本伝熱シンポジウム，（日本伝熱学会，大阪，2016 年 5 月）．

⑫ Nishio, S., Taguchi, Y., Maki, H., Saiki, T., and Nagasaka, Y., “Development of Temperature Imaging Method for Nano Light Emitter using Fluorescence Lifetime in Near-field”, 1st Pacific Rim Thermal Engineering Conference, (Hawaii, USA), (March 2016).

⑬ 西尾昌悟，田口良広，牧英之，斎木敏治，長坂雄次，“近接場蛍光熱顕微鏡を用いたナノ発光素子の温度分布イメージングに関する研究”，第 36 回日本熱物性シンポジウム，（日本熱物性学会，仙台，2015 年 10 月）．

⑭ Nikka, R., Seto, D., Taguchi, Y., Saiki, T., and Nagasaka, Y., “Development of

Nanoscale Thermometry using Near-field Fluorescence with Time-correlated Single Photon Counting”, 10th Asia-Pacific Conference on Near-field Optics, (Hokkaido, Japan), (July 2015).

⑮ Jinde, M., and Taguchi, Y., “Nanoscale Patterning of Self-assembled Monolayer on Membrane Structure by Near-field Photothermal Desorption”, 19th Symposium on Thermophysical Properties, (Colorado, USA), (June 2015).

⑯ Nikka, R., and Taguchi, Y., “Nanoscale Thermal Imaging of Cell using Fluorescence in Near-field Region”, 19th Symposium on Thermophysical Properties, (Colorado, USA), (June 2015).

⑰ Okada, R., Tawata, T., Taguchi, Y., and Nagasaka, Y., “Measurement of Thermal Conductivity of Vertically Aligned Carbon Nanotubes/Parylene Composite by Photothermal Radiometry”, 19th Symposium on Thermophysical Properties, (Colorado, USA), (June 2015).

⑱ Yamamoto, H., Kato, M., Taguchi, Y., and Nagasaka, Y., “Development of Measurement Technique of Thermal Contact Resistance at Bump Joint in Flip Chip Assembly Structure using Photothermal Reflectance Method in High Temperature Storage Test”, 19th Symposium on Thermophysical Properties, (Colorado, USA), (June 2015).

⑲ 岸本祥，前田琢眞，田口良広，斎木敏治，長坂雄次，“近接場偏光を用いたナノスケール温度測定手法の開発　近接場偏光面調整システムの提案”，第 52 回日本伝熱シンポジウム，（日本伝熱学会，福岡，2015 年 6 月）．

⑳ 瀬戸大地，西尾昌悟，田口良広，斎木敏治，長坂雄次，“時間相関単一光子計数法を用いた近接場蛍光寿命測定によるナノスケール温度分布イメージング　~極微弱な近接場蛍光信号の高感度検出に向けた測定装置の開発”，第 52 回日本伝熱シンポジウム，（日本伝熱学会，福岡，2015 年 6 月）．

６．研究組織

(1)研究代表者

田口　良広（TAGUCHI, Yoshihiro）
慶應義塾大学・理工学部・准教授
研究者番号：30433741

(2)研究分担者

牧　英之（MAKI, Hideyuki）
慶應義塾大学・理工学部・准教授
研究者番号：10339715