

前列表面形状を用いた原子間力顕微鏡による試料弾性推定法

渡辺早紀矢*, 藤本博志 (東京大学)

Estimation of Sample Elasticity Utilizing Previous Line Surface Topography by AFM

Sakiya Watanabe*, Hiroshi Fujimoto (The University of Tokyo)

Abstract

Atomic Force Microscope (AFM) is the device which can be applied to measure the surface topography of samples in nano-scale. Due to the fact that the cantilever holds its physical contact with the sample, it is also possible to measure elasticity of samples in principle. However, compared with the improvement of scanning performance, the technologies for viscosity and elasticity measurement are still underdeveloped. In this paper, we propose a method which can measure both the surface topography and the elasticity of samples. The recursive least-square approach is applied to estimate the elasticity of samples using the previous surface topography. The effectiveness of the proposed method is verified by simulations and experiments.

キーワード : 原子間力顕微鏡, コンタクトモード AFM, 逐次最小二乗法, 表面形状, 弾性測定
(atomic force microscope, contact-mode AFM, recursive least-squares, surface topography, elasticity measurement)

1. はじめに

近年, 半導体デバイスの超高密度化, 高性能化のように, 原子・分子レベルのエレクトロニクスが急速に発達している。これらは, 情報分野のインターネット, バイオ分野の遺伝子解析など広い分野に貢献している。エレクトロニクス分野にかぎらず, ナノバイオニクスのように様々な分野でナノスケールオーダーでの研究がなされている。従って, 原子・分子レベルの技術は今後の科学技術の発展にとって不可欠かつ, 急務の課題であるといえる。

原子レベルの分解能を持つ顕微鏡として, 原子間力顕微鏡 (AFM : Atomic Force Microscope) がある。AFM は図 1 のように, テコに備え付けられたプローブ (カンチレバ) の先端と試料との間に働く原子間力により生じるカンチレバの歪みを測定することで, 原子レベルの分解能を実現する顕微鏡である。AFM の制御に関しては, 高度な制御理論が用いられておらず, 簡単なフィードバック制御を用いることが一般的である⁽¹⁾。そのため, 1 枚の画像を得るのに時間がかかることが問題視されている。そこで, AFM を高速化, 高精度化する手法として, 制御理論の視点やハードウェアの視点から様々な手法が提案されている^{(2)~(4)}。また, 本研究グループでも学習制御やオブザーバ理論を用い, 大幅な高速化に成功している^{(5) (6)}。

AFM の特徴の 1 つに, カンチレバが試料に物理的に接触する点がある。この特徴を生かし, 試料表面の凹凸情報に加えてソフトマテリアルの弾性, 凝着効果の測定を目的としたナノ力学特性マッピングが研究されている。例として, カンチレバを試料へ垂直に近づけて得られるフォースディスタンスカーブの解析^{(7) (8)} や, 逐次最小二乗法 (RLS 法 : Recursive Least Square Method) を用いた粘弾性測定⁽⁹⁾ などが挙げられる。しかし, AFM の高精度化, 高速化に比べて粘弾性測定の技術は進んでいない⁽¹⁰⁾。

本稿では, 高分子や生体分子を含むソフトマテリアル系の測定に着目する。ソフトマテリアル系は, 表面形状の他に粘

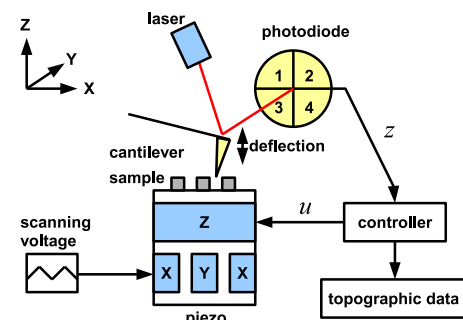


図 1 光てこ方式 (AFM)

Fig. 1. Optical lever method (AFM).

弾性, 凝着効果の影響が大きい。従って, これら力学的情報をナノスケールで調べることができれば, 新しい材料科学の可能性が開けると考えられる。

上述した研究では, 試料測定に用いられるピエゾステージのダイナミクスを考慮していないため, 測定精度の向上が難しい。また, 試料の表面形状と弾性特性を共に得ることはできない。そこで, 本稿では試料表面形状と弾性特性を逐次的に測定する手法を提案する。提案手法では, 試料の走査において 1 列ごとに参照信号を切り替えることにより, 表面形状と弾性特性を交互に測定する。これにより, 弾性測定時にノイズの影響を抑えた測定が可能となる。また, 弾性測定結果に関して, 高い再現性と高精度化を達成するために, ピエゾのダイナミクスを考慮した上で逐次最小二乗法を用いる。これにより, 試料の場所ごとに異なる弾性係数の推定が可能となる。

本稿は以下の構成である。まず第 1, 2 章で研究背景とコンタクトモード AFM に関して述べる。続く第 3 章で提案する試料の弾性推定法について述べる。その後, 第 4 章でシミュレーションと実験結果を示し, 第 5 章でまとめを述べる。

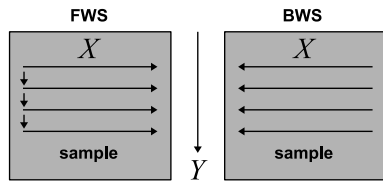


図2 カンチレバの面走査経路

Fig. 2. Surface scan route of the cantilever.

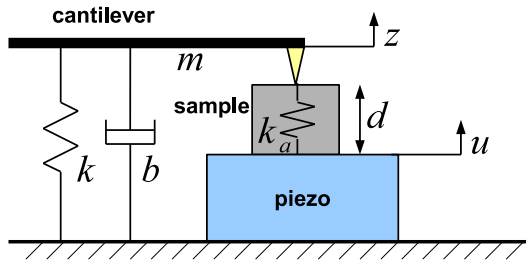


図3 AFMの力学モデル

Fig. 3. Model of contact-mode AFM.

2. 原子間力顕微鏡

本章では AFM の概要を述べた上で、実験装置について説明する。AFM の測定手法は、コンタクトモードとダイナミックモードに大きく二分される。本稿では、コンタクトモード AFM のみを扱う。コンタクトモード AFM は、高精度な測定が可能であり、かつ、簡易な力学モデルであることが知られている。

〈2・1〉コンタクトモードの概要 コンタクトモード AFM による表面形状の測定は、カンチレバのたわみ量を一定に保つようにピエゾステージの z 軸を制御し、その操作量 u を表面形状として記録する方法が一般的である。また、図 1 のようにレーザー光の反射角の変位を測定する光てこ方式を用いて、表面形状によるカンチレバの変位を測定する。

図 1 において、試料の表面形状は x 方向走査に関して開始位置から走査幅だけ右方向へ走査するフォワードスキャン (FWS)、同じ経路を左方向へ走査するバックワードスキャン (BWS) により測定される。これを y 方向に繰り返して走査することで、図 2 のように面走査を行う。本稿では、全ての測定は FWS のみで行い、BWS での測定結果は考慮しない。また、FWS の第 i 列中の表面形状を d_i とする。

〈2・2〉コンタクトモードの力学モデル 文献(11)で提案されている AFM の力学モデルを図 3 に記す。図 3 において、 m 、 b 、 k はそれぞれプラントの質量、粘性係数、弾性係数を表す。また、 z 、 u 、 d 、 k_a はそれぞれカンチレバの変位、ピエゾへの位置指令、試料の表面形状、試料の弾性係数を表す。

図 3 の力学モデルについて、 u から z までの入出力関係は、

$$z = \frac{k_a}{ms^2 + bs + (k + k_a)}(u + d) \dots\dots\dots (1)$$

で与えられる。ここで、プラントの弾性係数は試料の弾性係数よりも十分に大きいと仮定し、 $k_a \ll k$ とすれば、式 (1) は

$$z \simeq \frac{k_a}{ms^2 + bs + k}(u + d) \dots\dots\dots (2)$$

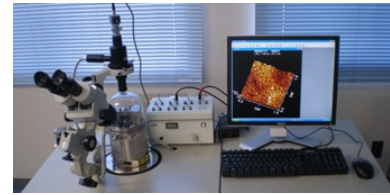


図4 実験装置

Fig. 4. Experimental device.

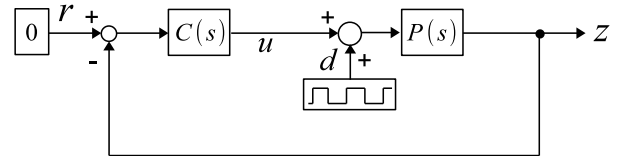


図5 AFMのブロック線図

Fig. 5. Block diagram of AFM.

と近似される。実際のコンタクトモード AFM のプラントは、フォトダイオードでカンチレバの変位を検出する際のゲイン g を考慮し、

$$P(s) = \frac{z}{u} = g \frac{k_a}{ms^2 + bs + k} = \frac{k'_a}{s^2 + b's + k'}(u + d) \dots\dots\dots (3)$$

で表される。ただし、 $k' = \frac{k}{m}$ 、 $b' = \frac{b}{m}$ 、 $k'_a = g \frac{k_a}{m}$ とする。

〈2・3〉実験装置とコントローラ 実験機の概観を図 4 に記す。本稿で使用した AFM は、日本電子製 JSPM-5200 の特別仕様である。本実験装置では、必要な入力信号のインターフェースを用意し、dSPACE-1104 により制御系を構成する改造を行なっている。

一般的な AFM のブロック線図を図 5 に記す。フィードバック制御器は製品に用いられている位相遅れ補償器とし、

$$C(s) = \frac{\omega_c}{s + \omega_c} k_p \dots\dots\dots (4)$$

を用いる。ただし、装置のマニュアルに従って調整し、 $k_p = 100$ 、 $\omega_c = 2\pi f_c$ ($f_c = 0.5$ Hz) とした。

試料としてプラスチック試料を用いた際の、サーボアナライザにより得られた位置指令 u からカンチレバの変位 z までの周波数特性を図 6 に記す。この周波数特性からフィッティングにより求まるノミナルプラントを、

$$P_n(s) = \frac{1.245 \times 10^8}{s^2 + 6.377 \times 10^3 s + 8.300 \times 10^7} \dots\dots\dots (5)$$

とした。ただし、式 (5) は試料のある一点における周波数特性である。実際の試料は、場所ごとに k'_a が異なる。従って、弾性係数を正しく推定する必要がある。

3. 逐次最小二乗法による弾性推定法

試料の弾性係数 k_a は同一の試料内で常に均一であるとは限らない。そこで、弾性係数を随時測定するために RLS 法を用いる。通常の AFM では、参照信号を $r = 0$ として走査を行うため、プラントへの入力 $u + d$ は非常に小さい。このため、SN 比が劣化し、正確な推定が行えない。そこで本章では、1

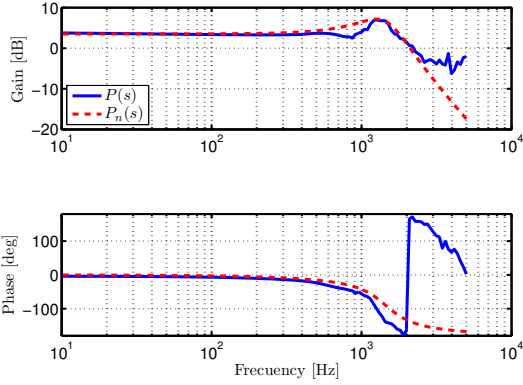


図6 プラントの周波数特性 (プラスチック試料)
Fig. 6. Frequency response of the plastic sample.

列ごとに参照信号 r を切り替えることで SN 比を改善し、正確な推定を行う手法を提案する。

〈3・1〉 逐次最小二乗法 RLS 法は、制御工学のシステム同定の分野で多く使われている手法である⁽¹²⁾。本節では、RLS 法のアルゴリズムについて述べる。

システムの入出力関係が、

$$y[k] + a_1 y[k-1] + \dots + a_{n_a} y[k-n_a] = b_1 u[k-1] + \dots + b_{n_b} u[k-n_b] \dots (6)$$

で表せるとする。このとき、未知のパラメータベクトル $\theta[k]$ 、測定可能なデータベクトル $\varphi[k]$ を用いて

$$y[k] = \theta^T[k] \varphi[k] \dots (7)$$

の関係式が得られる。ただし、

$$\theta[k] = [a_1, \dots, a_{n_a}, b_1, \dots, b_{n_b}]^T \dots (8)$$

$$\varphi[k] = [-y[k-1], \dots, -y[k-n_a], u[k-1], \dots, u[k-n_b]]^T \dots (9)$$

とする。

式 (7) に関して、未知のパラメータベクトル θ は重み付き逐次最小二乗法から以下の更新式が得られる。

$$\hat{\theta}[k] = \hat{\theta}[k-1] + \frac{\mathbf{P}[k-1] \varphi[k]}{\lambda + \varphi[k]^T \mathbf{P}[k-1] \varphi[k]} \epsilon[k] \dots (10)$$

$$\epsilon[k] = y[k] - \varphi^T[k] \hat{\theta}[k-1] \dots (11)$$

$$\mathbf{P}[k] = \frac{1}{\lambda} \left(\mathbf{P}[k-1] - \frac{\mathbf{P}[k-1] \varphi[k] \varphi^T[k] \mathbf{P}[k-1]}{\lambda + \varphi^T[k] \mathbf{P}[k-1] \varphi[k]} \right) \dots (12)$$

ただし、 λ は忘却係数であり 1 以下の正定数、 $\hat{\theta}[0] = 0$ 、 $\mathbf{P}[0] = \gamma \mathbf{I}$ (γ は正定数) である。

式 (10)~(12) の更新式により、未知パラメータの推定値 $\hat{\theta}[k]$ を得る。

〈3・2〉 弾性推定法 本節では、前列表面形状を用いた試料弾性推定法を提案する。コンタクトモード AFM では、カンチレバの歪みを失くすようにフィードバック制御を行う。従って、試料を FWS で走査した時の第 i 列目の表面形状は、

$$\hat{d}_i = -u_i \dots (13)$$

として測定される。試料の表面形状は滑らかであり、第 i 列と第 $i-1$ 列が十分に近い場所を走査していると仮定すれば、第 i 列の表面形状は、

$$d_i = d_{i-1} + \Delta_{i-1} \dots (14)$$

で表される。ただし、 Δ_{i-1} は一列前の表面形状との微小変化とする。よって、式 (3) より

$$Q(s) (s^2 + b's + k') z = Q(s) [k'_a (u_i + d_i)] = Q(s) [k'_a (u_i - u_{i-1} - \Delta_{i-1})] \dots (15)$$

が得られる。ただし、 $Q(s) = \frac{\omega_f^2}{(s + \omega_f)^2}$ は 2 次のローパスフィルタであり、 $\omega_f = 100$ rad/s とした。

ここで、

$$\theta = k'_a \dots (16)$$

$$\varphi = Q(s) (u_i - u_{i-1}) \dots (17)$$

$$y = Q(s) (s^2 + b's + k') z \dots (18)$$

$$e = Q(s) k'_a \Delta_{i-1} \dots (19)$$

とすれば、式 (15) は

$$y = \theta^T \varphi + e \dots (20)$$

と変形できる。

式 (3) からわかるように、プラントの弾性係数が試料の弾性係数よりも十分に大きいとき、伝達関数の分母係数は弾性特性 k_a に依存しない。従って、式 (5) より、

$$k' = 8.300 \times 10^7 \dots (21)$$

$$b' = 6.377 \times 10^3 \dots (22)$$

を用いる。このとき、逐次最小二乗法により $e = 0$ となり、弾性係数 θ と表面形状 d を一列おきで交互に測定できる。

ここで、式 (13)、(14) より、式 (20) の右辺について、

$$\varphi = u_i - u_{i-1} \approx 0 \dots (23)$$

となり、これがプラントへの入力信号を表す。実際の測定では、出力信号の測定値には雑音が混入するため、入力信号が小さすぎると出力端における SN 比が劣化する。SN 比が悪ければシステムの同定精度も劣化するため、雑音対策の観点からは入力レベルは大きいほどよい。図 5 について参照信号を $r > 0$ とすれば SN 比の改善につながるが、これはカンチレバが試料を強く押ししていることを意味している。弾性測定が必要とされるようなソフトマテリアル系では、カンチレバから受ける力により試料表面に歪みが生じ、正しい表面形状が得られず、試料を破壊する恐れもある。従って、参照信号 r の値を増加させることは好ましくない。

そこで、参照信号 r を 0 と任意の正の値 a で 1 列ごとに切り替えることを考える。提案手法のブロック線図を図 7 に示

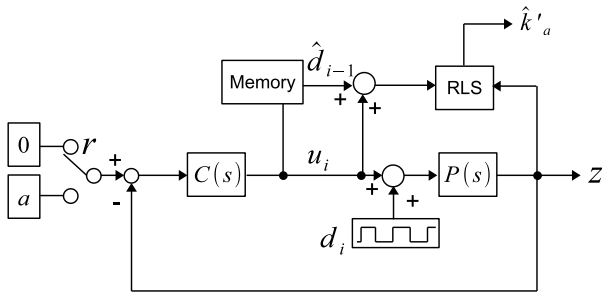


図 7 提案手法のブロック線図

Fig. 7. Block diagram of the proposed method.

す。このとき、制御入力 u_i は、

$$u_i = \frac{C}{1+PC}r - \frac{CP}{1+PC}d_i \dots \dots \dots (24)$$

$$r = \begin{cases} 0 & (i : \text{odd}) \\ a > 0 & (i : \text{even}) \end{cases} \dots \dots \dots (25)$$

で表される。ただし、 a は表面形状へ極端に大きな歪みを与えない程度の値を用いる。これにより、試料に与える負荷を最小限に抑えながら、プラント入力信号の SN 比を改善することができる。また、表面形状測定時に参照信号 $r = 0$ にすることで、カンチレバから与えられる力による試料の弾性変形を抑えることができる。歪みの影響の少ない試料表面形状の情報を用いて、次列にて弾性特性を推定するため、参照信号 r が一定の場合に比べ、より正確な推定を行うことができる。

4. シミュレーションおよび実験

本章では提案手法の有効性をシミュレーションと実験により示す。その後、提案する弾性推定法の妥当性について示す。

〈4・1〉シミュレーション 本節では、第3章で述べた提案手法の有効性をシミュレーションにより示す。シミュレーションに用いるプラントモデルには、式(5)を用いた。シミュレーションの結果を図8に示す。図8(a)は、FWSのみを考慮したプローブの走査である。図8(b)、8(c)はそれぞれ表面形状、コントローラ出力である。シミュレーションでは、 $a = 0.1$ として走査1列置きに参照信号 r を切り替えた。そのため、図8(c)、8(d)、8(e)について、4~8s、12~16sの走査で r に応じた値が生じている。図8(f)は推定された弾性特性である。本シミュレーションにおいて弾性係数は式(5)より、 $k'_a = 1.245 \times 10^8$ であるため、1列おきの走査において弾性特性が正しく推定できている。

〈4・2〉実験 本節ではプラスチック試料を用いて、提案手法により実験を行う。実験では参照信号として $a = 0.3$ を用いた。実験の結果を図9に記す。図9(a)において三角波の増減はそれぞれ、FWSとBWSを表す。ピエゾステージに電圧をかけた際、実際はヒステリシス特性を持つ応答を示すが、本稿ではその影響は無視できるとする。図9(b)、9(c)はそれぞれ、フィードバックコントローラの出力と前列表面形状である。ただし、1列前の表面形状は $\hat{d}_{i-1} = -u_{i-1}$ とした。図9(d)、9(e)は、プラント入力の推定値とプラント出力である。これらを用いて逐次最小二乗を行った。本実験ではFWSしか考慮していないため、BWS時は一般的なフィードバック

制御のみを行い、弾性推定は行わない。図9(f)に弾性特性の推定値を示す。0.8~1.2s、2.3~2.7sで弾性推定が行われている。式(5)より、実験で得られた弾性特性の値はノミナルプラントと一致している。提案手法により得られた表面形状、弾性特性の3次元マップを図10に示す。

〈4・3〉提案手法の検証 本節では、上述した提案手法による測定結果について、その妥当性を実験により検証する。

検証方法の概要を表したブロック図を図11に示す。まず、試料のある区間について提案手法により弾性特性と表面形状を測定する。次に、弾性特性を得た区間に対してステップ状の信号をプラントへ入力し、そのときの出力 z を得る。また、提案手法で得られる弾性特性を用いた時変システムについて、実験で用いたものと同じステップ状信号を用い、シミュレーション上でプラント出力 z_a を得る。 z と z_a を比較し一致すれば、提案手法により得られた弾性特性は妥当なものであるといえる。

弾性特性を用いた時変システムのステップ応答は、式(3)の直流項にのみ依存するため、

$$\hat{P}(s) = \frac{\hat{k}'_a}{k'} \dots \dots \dots (26)$$

として、時変システムを作成する。実際のプラントでは出力に初期値が存在し、

$$z + z_0 = \hat{P}(s)u \dots \dots \dots (27)$$

で表される。この初期値を $u = 0$ 時の値を用いて補正した。

この検証の実験結果を図12に示す。図12(a)、12(b)はそれぞれ、試料表面形状、推定された弾性特性である。また、弾性特性の推定区間で図12(c)の位置指令を入力した。図12(d)より、実験で得られたカンチレバの変位 z とシミュレーションで得られたカンチレバの変位 z_a が一致しているため、提案手法の妥当性が示された。

5. まとめ

本稿では、原子間力顕微鏡を用いて試料の弾性特性を測定するために、前列の表面形状の情報を用いた新しい測定法を提案した。本手法により、AFMを用いて試料へ与える負荷を極力抑えた状態で表面形状と弾性特性の両方を逐次的に測定することが可能になった。

今後の展開としては、より精密な力学モデルへの弾性測定法の適用、ソフトマテリアル試料への負荷が少ないという点で優位であるタッピングモードへの適用が挙げられる。

参考文献

- (1) 森田清三, “走査型プローブ顕微鏡”, 丸善 (2005)
- (2) T. Ando, “Control Techniques in High-speed Atomic Force Microscopy”, American Control Conference, pp. 3194-3200(2008)
- (3) A. Fleming, “A Method for Reduction Piezoelectric Non-Linearity in Scanning Probe Microscope Images”, American Control Conference, pp. 2861-2866(2011)
- (4) G. Schitter, P. Thurner, P. Hansma, “Design and input-shaping control of a novel scanner for high-speed atomic force microscopy”, Mechatronics, Vol. 18, pp. 282-288(2008)

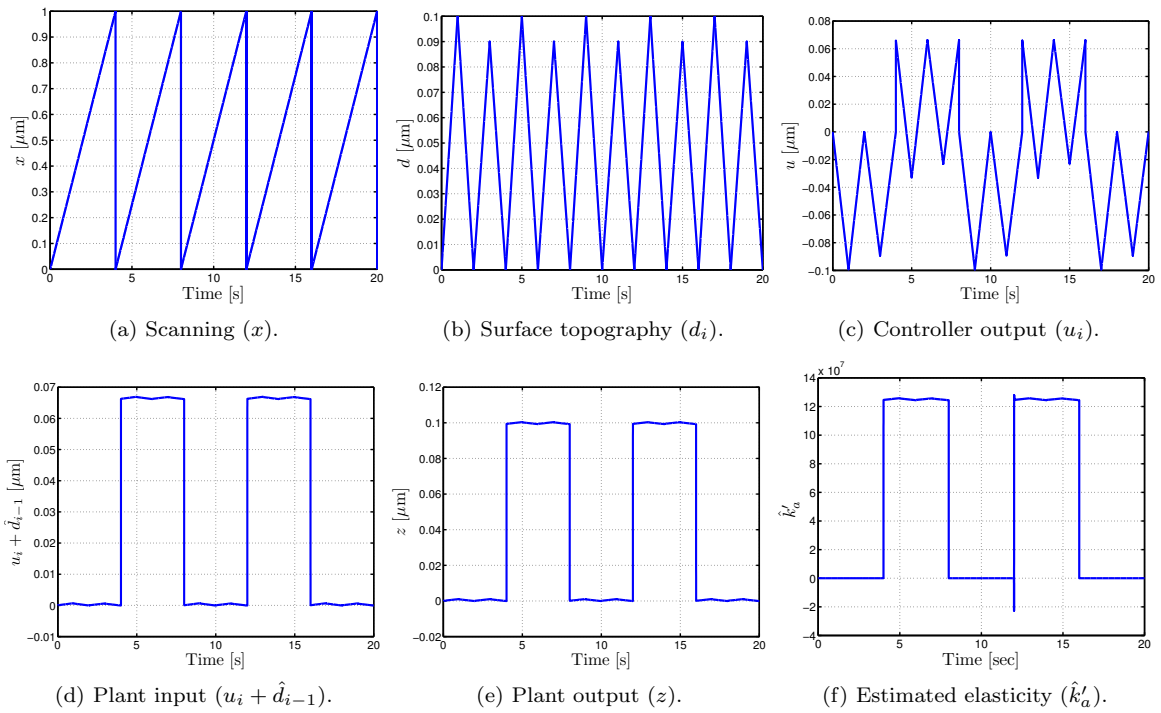


図 8 シミュレーション結果
Fig. 8. Simulation results.

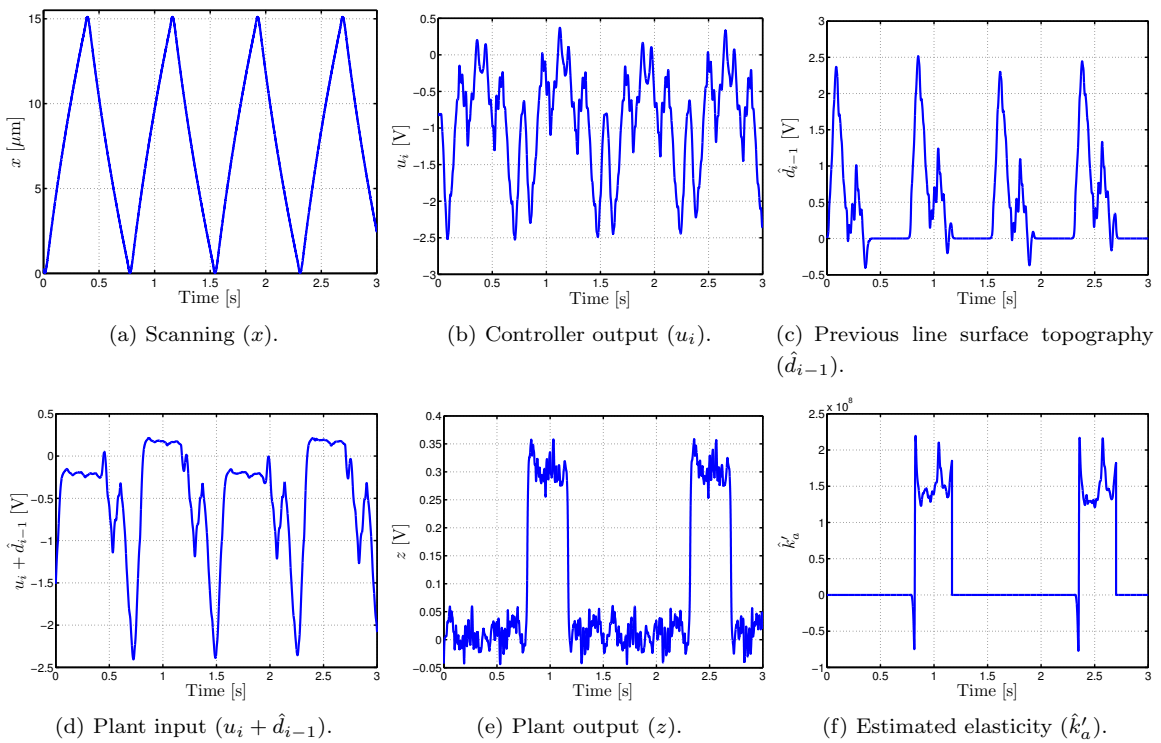
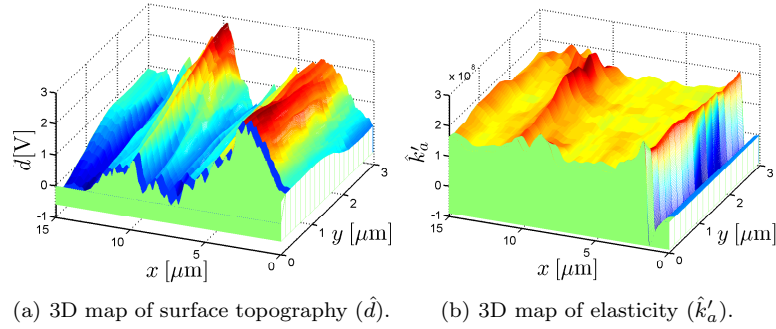


図 9 実験結果
Fig. 9. Experimental results.

(5) T. Shiraishi, H. Fujimoto, “High-Speed Atomic Force Microscope by Surface Topography Observer”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 51, pp. 026602–026602–7(2012)

(6) H. Fujimoto, T. Oshima “Contact-mode AFM Control with Modified Surface Topography Learning Observer and PTC”, 34th Annual Conference of the IEEE Industrial Electronics Society, pp. 2515–2520(2008)



(a) 3D map of surface topography (\hat{d}). (b) 3D map of elasticity (\hat{k}'_a).

図 10 試料の 3 次元マップ

Fig. 10. 3D mapping of the sample.

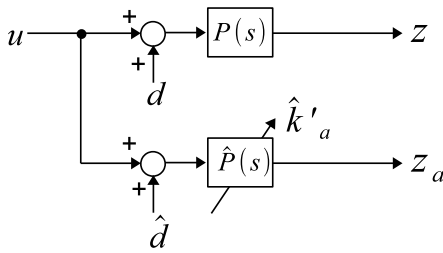
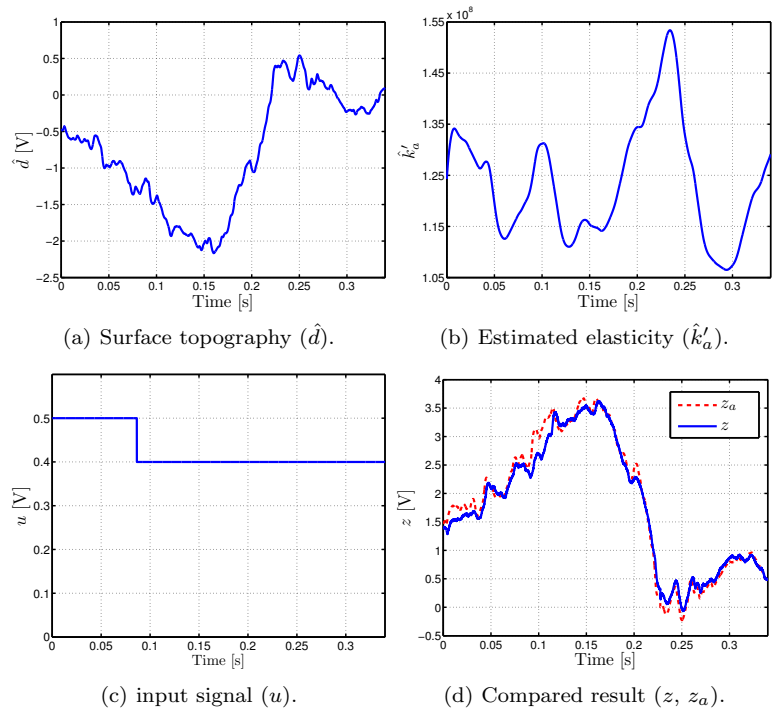


図 11 検証手法のブロック線図

Fig. 11. Block diagram of the evaluation method.



(a) Surface topography (\hat{d}).

(b) Estimated elasticity (\hat{k}'_a).

(c) input signal (u).

(d) Compared result (z, z_a).

図 12 検証手法の実験結果

Fig. 12. Experimental results of the evaluation method.

- (7) K. Nakajima, S. Fujinami, D. Wang, T. Nishi, "Evaluation of Viscoelastic Properties of Polymeric Materials by Atomic Force Microscopy", Journal of the Japan Society of Colour Material, Vol. 83, pp. 108–114(2010)(in Japanese)
- (8) H. Sekiguchi, A. Hidaka, Y. Shiga, A. Ikai, T. Osada, "High-sensitivity detection of proteins using gel electrophoresis and atomic force microscopy", Ultramicroscopy, Vol. 30, pp. 351–356(2009)(in Japanese)
- (9) D. Kim, J. Park, M. Kim, K. hong, "AFM-based identification of the dynamic properties of globular protein : simulation study", Journal of Mechanical Science and Technology, Vol. 22, pp. 2203–2212(2008)
- (10) "AFM による弾性計測ロードマップ", 日本学術振興会 ナノプローブテクノロジー第 167 委員会 (2012)
- (11) A. Sebastian, M. Salapaka, D. Chen, J. Cleveland, "Harmonic analysis based modeling of tapping mode AFM", American Control Conference, Vol. 1, pp. 232–236(1999)
- (12) H. Fujimoto, B. Yao, "Multirate adaptive robust control for discrete-time non-minimum phase systems and application to linear motors", IEEE/ASME Transaction on Mechatronics, Vol. 10, pp. 371–377(2005)