

# 金属探針を用いたフェムト秒近接場光の2光子吸収計測

## Measurement of Two-Photon Current Induced by the Femtosecond Near-Field Light at an Au-tip

関口哲史(B4), 田村剛一(M2), 寺田有里(M1)

S. Sekiguchi, K. Tamura, and Y. Terada

### Abstract

We detected two-photon current of a GaAsP photo-diode induced by femtosecond near-field light at a home-made Au-tip probe. Lock-in detection was attempted to eliminate a back-ground signal.

### 1 はじめに

近接場光学顕微鏡の登場により回折限界を超えた高い分解能での計測や加工が可能になったが、主流である開口型のファイバースプローブを用いたものでは開口やその周りの金属コートがあるために分解能の制限がされ、ファイバー内を入射光が通るため高強度の入射が難しく非線形光学効果等の計測には不向きであった。そこで散乱型の金属プローブを用いることで局在プラズモン共鳴などによる電場増強で高い空間分解能でかつ近接場光の増強も可能となる。散乱型の多くはプローブに金属コートされたファイバースプローブを用いるが、そのような薄い金属コートではプラズモン増強に制限が生じる。そこで本研究では自作で金のプローブを作りそれを用いて近接場光計測を行う。その際微弱な近接場光のみを背景光から区別して計測するためにロックイン検出を行い、GaAsPを試料台かつ検出器とすることでS/N比の向上を試みた。

### 2 実験

#### 2.1 金プローブの作成

セットアップは Fig.1 の通りで電解研磨法と呼ばれる。これは金ワイヤを塩酸とエタノールの一対一溶液に浸し電気分解により行う。具体的には陰極側には金のリング(ワイヤ径1mm、リング径8mm)を先ほどの溶液に3/4ほど浸し、陽極側には金ワイヤをリングの中央に2~3mmつけて電圧をかける[1]。

#### 2.2 振幅特性計測

距離制御とロックイン検出をするために、プローブは音叉状のチューニングフォークといわれるものに接着し振動させて用いる。ただし金プローブはとて柔らかいため、チューニングフォークを振らしすぎると大きな力がかかってしまい先端が潰れてしまう。このことから、どのくらいの振幅まで耐えられるかを知る必要がある。また、振幅と入力電圧の関係も知る必要がある。

まず振幅についてであるが、他の論文[2]から100 pNの力であれば耐えられることが見積られる。プローブにかかる力と振幅の関係は以下の式からわかる。ここで、 $F_D$ :自由発振時にチューニングフォークに加わる負荷、 $1-V/V_0$ :振幅の減衰度、 $k$ :ばね定数、 $a_0$ :振幅、 $Q$ :Q値、 $M_e$ :有効質量、 $L, t, w$ :TFの寸法、 $\rho$ :TFの密度を意味している。

$$\begin{aligned} F_s &= F_D(1-V/V_0) \\ F_D &= ka_0/\sqrt{3}Q \\ k &= M_e\omega_0^2 \\ M_e &= 0.2427\rho(Ltw) \end{aligned} \tag{1}$$

上式を用いて計算したところ振幅が0.25 nm程度するときにかかる力が100 pNになった。実際Q値や振幅の減衰度はプローブごとに異なるため、振幅は0.5 nmであれば耐えうると予想できた。

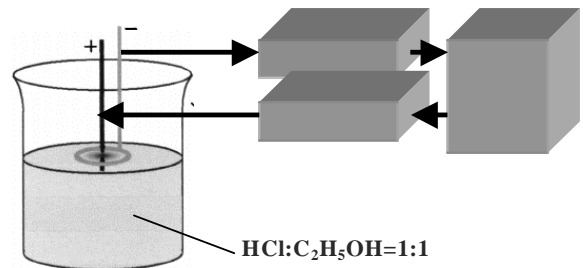


Fig.1: Experimental setup of fabrication of gold tips.

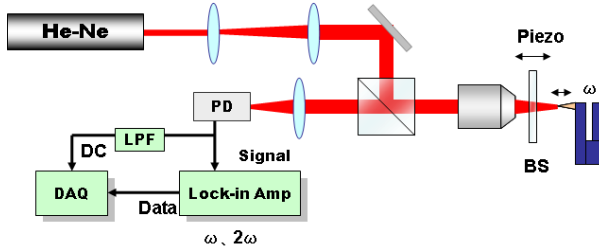


Fig.2: Experimental setup of amplitude measurement of tuning fork oscillation.

次に、チューニングフォークの振幅特性計測のために Fig.2 のセットアップを構築した。光源は He-Ne レーザ ( $\lambda=632.8$  nm), 対物レンズは超長作動型対物レンズ ( $\times 20, NA=0.35$ ), BS はカバーガラス, チューニングフォークはプローブなし, 金プローブを接着させたものを用意した。BS は piezo で動かし, 今回の実験は光軸方向の精度は必要ないので piezo 電源にランパターンの電圧を加えた。反射光の検出は PD が PMT で行い, 電流増幅器後ローパスフィルタ DAQ で  $S_0$  (DC), ロックインアンプ DAQ で  $S_1, S_2$  を計測した。ロックインアンプの時定数は 10 ms, LPF のカットオフ周波数は 30 Hz である。

この計測法はチューニングフォークからの反射光  $E_F$  と BS からの反射光  $E_S$  の干渉を計測する。実際には対物レンズからの反射光  $E_L$  が存在するため, チューニングフォークを振らせた状態で BS を光軸方向に移動させると反射光強度  $I$  は以下の式で記述される。

$$I = |E_F + E_S + E_L|^2 = C + B_{FS} \cos[4\pi/\lambda \cdot (z(t) + a_0 \cos \omega t)] + B_{LF} \cos[4\pi/\lambda \cdot (l_0 + a_0 \cos \omega t)] + B_{LS} \cos[4\pi/\lambda \cdot (l_0 - z(t))] \quad (2)$$

$$C = |E_F|^2 + |E_S|^2 + |E_L|^2, B_{ij} = 2|E_i E_j| \quad (3)$$

ここで,  $(\cos t)^n$  で展開すると,

$$I_0 = C + B_{LS} \cos[\phi_1 - 4\pi/\lambda \cdot \Delta z(t)] + C_0 \cos(\phi_0) + A_0 \cos[\phi_2 + 4\pi/\lambda \cdot \Delta z(t)] \quad (4)$$

$$I_1 = C_1 \sin(\phi_0) - A_1 \sin[\phi_2 + 4\pi/\lambda \cdot \Delta z(t)] \quad (5)$$

$$I_2 = C_2 \cos(\phi_0) - A_2 \cos[\phi_2 + 4\pi/\lambda \cdot \Delta z(t)] \quad (6)$$

DC 成分  $S_0$  は  $I_0$ , 成分  $S_1$  は  $I_1$ , 成分  $S_2$  は  $I_2$  に比例した信号強度が得られる。上式でのおおのこの振幅は,

$$A_0 = [1 - 4(a_0\pi/\lambda)^2 + 4(a_0\pi/\lambda)^4] \cdot B_{SF} \quad (7)$$

$$A_1 = 4(a_0\pi/\lambda)[1 - 2(a_0\pi/\lambda)] \cdot B_{SF} \quad (8)$$

$$A_2 = 4(a_0\pi/\lambda)^2[1 - 4/3 \cdot (a_0\pi/\lambda)^2] \cdot B_{SF} \quad (9)$$

上式それぞれの比を取ることで  $B_{SF}$  が消えるので, その比から連立方程式を解くことでプローブの振幅  $a_0$  が求められる。

### 2.3 金プローブを用いた近接場光計測

Fig 3 にセットアップを示す。光源は Kerr レンズモード同期チタンサファイヤレーザー (Spectra-Physics, MaiTai) で中心波長 780 nm である。

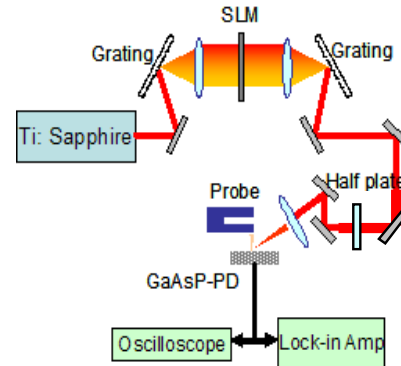


Fig 3 Experimental setup of our ANSOM

近接場光の特性から強度はとても弱く, また散乱型のプローブを採用しているためにそのまま計測を行うと背景光に埋もれてしまう。そこで上で述べたロックイン検出と 2 光子吸収を組み合わせることで計測を行う。2 光子吸収を行うため試料自体をフォトダイオードにした。用いたフォトダイオードは GaAsP (窓枠とキャップを取り外した特注品) でエネルギーバンドは 1.8 eV (680 nm) であるため, 入射光を 780 nm にすれば 2 光子吸収が支配的になると考えられる。

実験手順であるが, まずは近接場光が散乱される領域までプローブを  $z$  軸方向に近づける必要がある。初めにプローブを取り付けたチューニングフォークを試料である GaAsP 上の入射光の焦点位置にまで目視によってぎりぎりまで近づける。この際試料からの反射と比較しながら行うとうまくいく。その後距離制御プログラムにより GaAsP にプローブを数 nm まで近づける。2 次の非線形効果であるために 2 光子吸収の発生する領域はとても狭い。ゆえに, さらに正確にプローブを焦点位置に  $x, y$  方向に近づける必要があるので,

オシロスコープおよびロックインアンプで二光子電流とその信号を計測しながら、プローブをPDから約 $1\mu\text{m}$ 離して(フィードバックを切った状態)対物レンズを動かして信号強度が変動する位置を見つける。

### 3 実験結果

#### 3.1 金プローブの作成

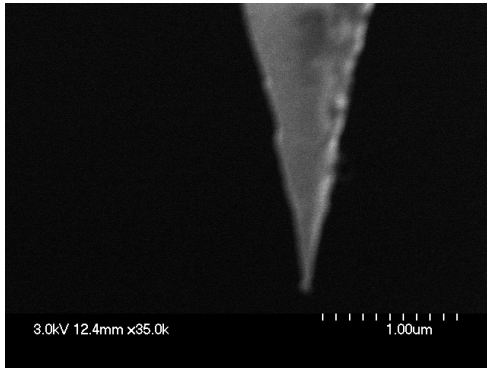


Fig 4: An au-tip fabricated with 2.15V

作成した金プローブのSEM画像がFig 4である。研磨の際に電極間を電流が流れるが、その電流がパルス状であったもので、その際2.15Vの電圧を印加した。SEM画像からわかるように先端径が鋭くSEMの限界分解能である50nm以下の曲率半径にまで研磨された。

#### 3.2 振幅特性計測

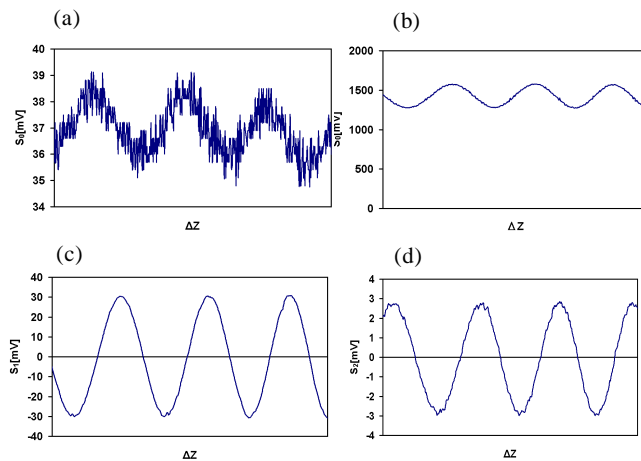


Fig.5: DC interference patterns related to the (a) BS-objective assembly, (b) TF-BS-objective assembly; (c) , (d) 2 interference patterns

チューニングフォークからの振幅信号振動が、58 mV (58 nA)の際の各周波数における測定結果がFig.5である。(a)はチューニングフォークなしのものでチューニングフォークはらの反射光 $B_F$ がないため、この結果から振幅を求めると $B_{LS}$ が分かる。(b)はDC成分の様子でこの振幅からは $A_0$ と $B_F$ の和がわかりこれらから $A_0$ は146.5 mVと分かった。同様にして、(c)からは $A_1$ が分かり30 mV、(d)からは $A_2$ が分かり2.86 mVであった。これらを式(3.13)~式(3.15)に代入し連立方程式を解いたところ、チューニングフォークの振幅 $a_0$ は $A_1/A_0$ からは11.6 nm、 $A_2/A_1$ からは16.2 nm、 $A_2/A_0$ からは14.0 nmと求まった。

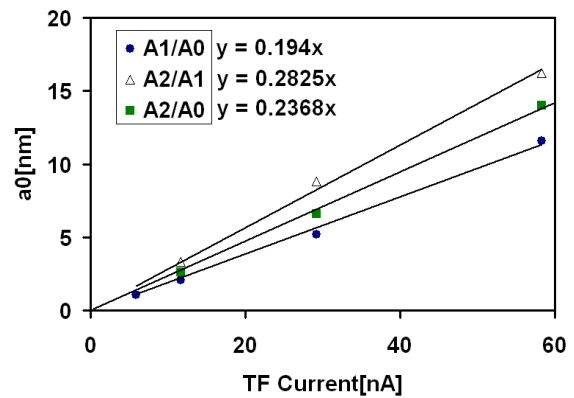


Fig.6: TF amplitude calibration

同様の計測を29 nA、11.6 nA、5.8 nAについてもおこなった。これらからチューニングフォークを流れる電流と振幅の特性を求めたものがFig.6である。5.8 nAにおいては信号が弱すぎ、2の信号を読み取ることはできなかったために、ここの電流におけるプロットはひとつである。±15%程度の誤差が見られるが、おおむね振幅と電圧が比例していることがわかる。それぞれのキャリブレーション結果が異なっているのがわかるが、測定の精度の問題だと考えられる。特に、DCと2では信号の経路が異なっており、誤差を生んだ可能性がある。この結果からは金プローブが壊れないで耐え切れる振幅0.5 nmとなる電流は2 nAであることがわかった。

#### 3.3 金プローブを用いた近接場光計測

前節において金プローブが耐え切れる振幅0.5 nmとなる電流は2 nAであることがわかったので、実際に

その場合において金プローブの形状が保たれるかどうか、フィードバックをかけた際のピエゾの様子を示したものが Fig.7 である。ここで 1 V はピエゾの伸びとしては 11.5 nm に相当する。ピエゾにはクリープ特性があり、一定の電圧をかけていても多少伸びる性質をもつため、その性質を補正するように全体を通してピエゾに印加する電圧が徐々に下がっている。実際のピエゾの伸びは一定に保たれている。(a)の最初のあたりは 5 nm 程度と発振しているが、少し時間が経過した(b)においては安定し 1 nm に収まっている。ここで用いたプローブをこの後に SEM で観察したものを Fig.8 に示した。形状は保たれており振幅が 0.5 nm であれば金プローブが使用可能であるとわかった。

ただこの 0.5 nm の振幅ではロックイン検出には明らかに振幅が足りないため、昨年度までに近接場の検出に成功している金コートファイバースプローブと同様の振幅で計測を行うこととした。

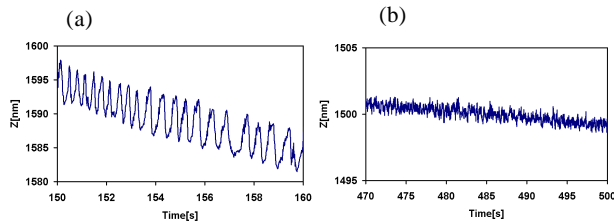


Fig.7: Feed back dynamics (a) 150-160[s], (b) 470-500[s]

まず金コートと同様の 10 nm の振幅で計測した結果が Fig.9(a)である。近接場信号は検出されているが、同時に計ったピエゾの電圧から、プローブが潰れてしまっていることがわかる。実際に用いたプローブの SEM 画像が Fig.9(b)であるが先端がつぶれている。やはり金プローブでは振幅が大きすぎたと考えられる。次に先ほどの半分の振幅である 5 nm で振動させ計測したものが Fig.9(c)である。この場合も、近接場の信号が検出できたが、今までにない背景光が現れてしまった。こちらで用いたプローブの SEM 画像が Fig.9(d)であるが、5 nm でも振幅が大きかったためかつぶれてしまっていた。さらに 2 nm でも検出を試みたが振幅が足らずに十分なロックイン検出ができなかった。

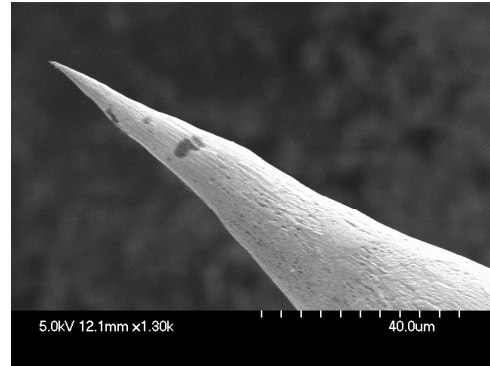


Fig.8: SEM image of Au-tip

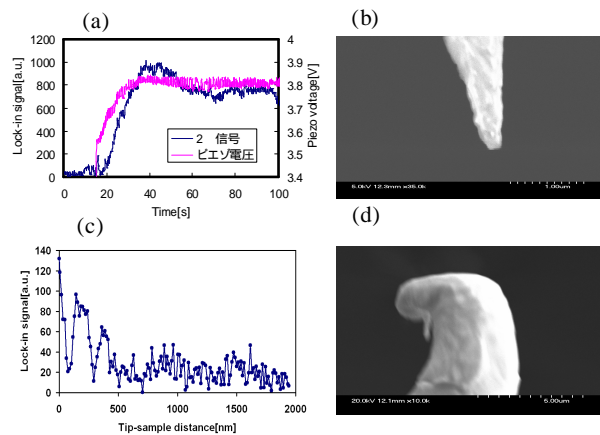


Fig.9: (a) Time dependence of 2 signal (10nm), (b) SEM image of an Au-tip (10nm), (c) Distance dependence of 2 signal (5nm), (d) SEM image of an Au-tip (5nm)

## 4 結論

自作の金プローブにおいて、5 nm 以上の振幅で振動させれば、ものによっては近接場光のロックイン検出が可能であるが、自作のため個体差が大きい上、金プローブはやわらかいためこの領域の振幅では先端がつぶれる可能性が高い。よって自作の金プローブは近接場光のロックイン検出には不向きである。

## References

- [1] 田村剛一：卒業研究論文 (2005)
- [2] Erik J. Sánchez, Phy.Lev.Lett , 82 , 20(1999)