

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26600037

研究課題名(和文)光駆動ファノ共鳴ダイナミックモード原子間力顕微鏡

研究課題名(英文)Optically-driven dynamic-mode AFM using Fano resonances

研究代表者

笹木 敬司(SASAKI, Keiji)

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：00183822

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、カンチレバーを共鳴振動周波数で光駆動したときに探針が静止する無振動ダイナミックモードAFMシステムの開発を目的とし、カンチレバー振動のファノ共鳴現象のメカニズムや制御性について明らかにすると共に、散乱型近接場顕微鏡を構築し、光局在場の高感度・高分解能計測を実現した。強度変調レーザーのカンチレバー上の集光位置に依存したファノ共鳴振動スペクトルの測定に成功し、集光位置に応じた非対称な振動振幅や位相の周波数依存性を確認した。また、特定の位置において、共鳴周波数で振動振幅をゼロにすることができる事を示し、広帯域振動モードと共鳴モードの打消しにより振動が完全に抑制される事を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We were aiming to develop a new vibration-free dynamic mode AFM system based on Fano resonance in the vibration spectrum of an optically driven AFM cantilever. For this purpose, we studied the mechanism and controllability of Fano resonance in the vibration spectra of a cantilever, and developed a scattering-type near-field optical microscope to measure plasmonic local fields with high sensitivity and high spatial resolution. As a result, we found that the vibration spectrum exhibits Fano resonance and the asymmetry of the resonance curve strongly depends on the position of the excitation spot along the central axis of the cantilever. From our simple analytical model, we attributed this phenomenon to the interference between resonance and continuous components. Furthermore, we also find that the cantilever vibration is strongly suppressed with a phase gradient of 0.210 rad/Hz at resonance when the excitation-spot position is 61  $\mu\text{m}$  from the free end of the cantilever.

研究分野：光計測制御

キーワード：原子間力顕微鏡 ファノ共鳴 光駆動 超解像光イメージング

### 1. 研究開始当初の背景

カンチレバーの共鳴振動を利用したダイナミックモード原子間力顕微鏡(AFM)は、力感度が高く、生体などの軟らかな試料、吸着がある表面や液中の試料等の観測が可能であり、また、高い空間分解能で高精度な計測を実現できるので、生命科学や有機材料科学など様々な分野で活用されている。このダイナミックモード AFM の高分解能特性を最大限に引き出すためには、カンチレバーの振動振幅をできるだけ抑制し、表面近傍の原子間力・分子間力(短距離力)を高感度に検知することが重要である。また、探針に接着した分子と試料表面の相互作用や吸着・静電気力の解析においても、探針-試料間距離の変動は小さいことが要求される。我々はダイナミックモード AFM を用いた散乱型近接場光学顕微鏡を開発し、光の波長より2桁以上小さい空間分解能で金属ナノ構造体の局在プラズモン場を観測することに初めて成功したが、この顕微鏡においても、探針を極微小振幅で振動させて近接場散乱光の検出効率を高める必要がある。しかしながら、カンチレバー共鳴振動をある程度以上抑制すると力感度が低下してダイナミックモードの特長を失うため、分解能や表面計測の精度向上には原理的な限界が存在した。

### 2. 研究の目的

本申請研究では、光駆動カンチレバーのファノ共鳴を利用して、共鳴周波数で探針が静止する無振動ダイナミックモード AFM を新奇に提案する。本原子間力顕微鏡は、強度変調した集光レーザーをカンチレバーの特定の位置に照射して複数の振動モードを熱的に励振し、スペクトル線幅の狭い共鳴振動ピークとブロードな振動モードの干渉によるファノ共鳴を誘起する。集光スポットの位置によって各振動モードの振幅と位相を変化させることにより、共鳴周波数において振動を完全に抑制する状態に制御することができる。すなわち、共鳴周波数でレーザー光を変調しているとき探針先端は静止し、共鳴周波数から僅かにシフトすると探針先端が振動をはじめめる状態になる。したがって、ダイナミックモードの制御は、カンチレバー先端の振動がゼロになるように探針-試料間距離をコントロールするシステムとなる。本システムは零位法に基づいており、光強度を高くして非共鳴時の振動振幅を大きくできるので、従来のダイナミックモード AFM より力感度を向上させることも可能である。本研究では、我々独自のアイデアに基づく光駆動ファノ共鳴ダイナミックモード AFM を世界に先駆けて開発すると共に、散乱型近接場光学顕微鏡に応用して、シングルナノメートルスケールの構造を持つ局在プラズモン場の高感度・高分解能計測を実現する。

### 3. 研究の方法

カンチレバーに強度変調集光レーザーを照射したときの光熱誘起振動の時間・空間特性を数値計算する新しいシミュレーション手法を開発し、探針振動のファノ共鳴現象についてメカニズムを明らかにすると共にファノ共鳴振動の制御性を解析する。理論解析に基づいてシステムを設計し、レーザー光駆動ファノ共鳴ダイナミックモード AFM を構築して力感度・空間分解能等の性能を評価する。また、散乱型近接場光学顕微鏡システムに拡張して、シングルナノメートルスケールの空間分布を持つ光局在場の高感度・高分解能計測を実現し、新奇なナノ光物理現象の研究に展開する。

### 4. 研究成果

【光誘起加熱による金属コート AFM カンチレバーの振動制御】

顕微鏡下で、金コートした AFM カンチレバー (SiN) に正弦波電圧で強度変調した半導体レーザーを集光し、光熱的に振動を誘起する光学系を構築した(図1)。その AFM 探針の変位をカンチレバー先端に集光したプローブ光 (650 nm) による光てこ技術によりナノメートルオーダーの精度で測定を行った。振動信号は、LD レーザーの変調周波数においてロックイン検出を行い、実部と虚部成分のそれぞれを記録した。

カンチレバー上の集光レーザー位置を変えながらカンチレバー先端の周波数特性を測定した結果、振動スペクトル中のピーク形状に FANO 共鳴のような非対称性を確認し、その非対称性が AFM カンチレバーのレーザー集光位置に強く依存する事が分かった。図2(a), (b)は、レーザー変調周波数に対するカンチレバー変位の振幅と位相のグラフ、および、図2(c)は、振幅と位相を複素平面上にプロットした図である。この特性を理論的に解析した結果、熱により誘起される共鳴振動成分以外に、放射圧による変調成分が観測されていることが示された。また、共鳴成分とともに、Fano 効果を観測することに成功した。図3は、集光レーザー位置に対する共鳴ピークの複素平面プロットを示しており、光誘起加熱用のレーザー集光位置に対して、敏感にカンチレバー変位の振幅と位相が変化する様子が確認できる。また、図から、熱的なランダムな揺らぎと FANO 共鳴項を導入し

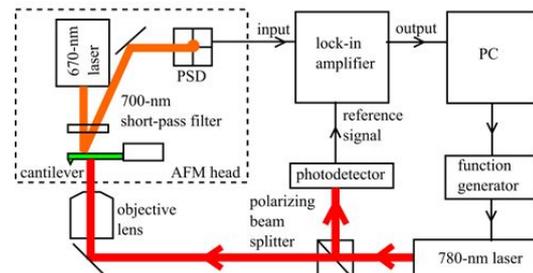


図1 AFM カンチレバーの振動測定システム。

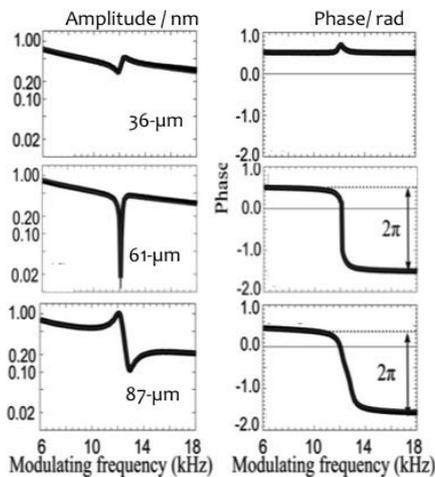


図 2 AFM カンチレバーの光誘起振動の振幅（左図）および位相（右図）の周波数特性．図中の測定位置はカンチレバー先端からの励起位置を示している．

た簡単な振動物理モデルを用いて、振動スペクトル中に隠れた共鳴成分と連続成分の抽出とその解析に成功した。さらに特定の集光位置においては、ブロードなスペクトルを持つ振動モードと狭帯域共鳴振動モードの干渉により、モード間で振動が打ち消し合った結果、共鳴スペクトルがディップを示し、共鳴周波数で振動振幅をゼロにすることができる事を示した（図 2 中段）。この結果は、カンチレバーの振動状態制御が可能である事を示しており、光駆動ファノ共鳴を用いたダイナミックモード AFM の測定感度や分解能を改善する基盤技術としての応用が期待できる。

【散乱型近接場顕微鏡による金ナノ構造中の局在場観察】

表記の見解を基に、AFM と顕微鏡を組み合わせた散乱型近接場顕微鏡を自作し、金ナノ構造中に誘起される局在プラズモン場の分光ナノイメージングを試みた。本システムでは、全反射照明により誘起した局在プラズモン

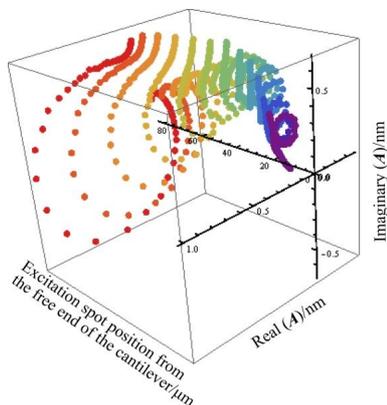


図 3 AFM カンチレバーの振動スペクトル（走査周波数：6-18kHz）のナイキストプロットの励起位置依存性（測定位置：自由端から 21μm）。

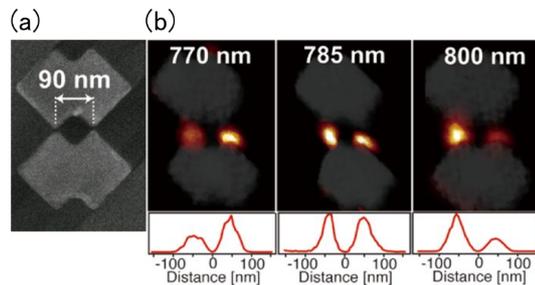


図 4 (a)金ダブルギャップナノ構造の SEM 像と(b) 光局在スポット強度分布の波長依存性．

場を AFM カンチレバーで散乱させ、AFM プローブ位置毎の散乱光を検出することにより、ナノ構造の形状とその光局場分布をナノメートルスケールの空間分解能で同時イメージングできる。図 4(a)に、ダブルナノギャップ構造を持つ数十ナノメートル離れた二つのギャップを持つ金ダブルナノギャップ構造の SEM 像を示す。本構造では、共鳴波長 800nm 付近において、2つのギャップ部（ギャップ距離 10nm）に強い局在スポットが形成される事が数値計算から分かっている。この構造の分光ナノイメージング測定を行った結果を図 5 に示す。結果から、ナノギャップにおいて高強度の光局在場が誘起されている様子をナノメートルオーダーの精度で測定する事に成功した。また、励起波長に対してナノギャップにおけるスポットの強弱が変化している様子が確認でき、解析の結果から、全反射照明により誘起された四重極子モードと双極子モードのプラズモンモード干渉による局在場分布の変化である事が明らかとなった。この事は、僅か回折限界以下の領域において局在場分布を自在に操作できる事を示しており、新しい光局在スポットマニピュレーション法の可能性を示した。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 13 件)

K. Sakai, K. Nomura, T. Yamamoto, T. Omura and K. Sasaki: Quadrupole lattice resonances in plasmonic crystal excited by cylindrical vector Beams, Sci. Rep. 査読有、6 巻, pp. 103046/1-7 (2016) DOI:10. 1038/srep34967/srep34967

Y. Tanaka, M. Komatsu, H. Fujiwara and K. Sasaki: Nanoscale Color Sorting of Surface Plasmons in a Double-Nanogap Structure with Multipolar Plasmon Excitation, Nano Lett. 査読有、15 巻, pp.7086-7090 (2015) DOI: 10.1021/acs.nanolett.5b03147

F. Ren, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: Two-photon excited fluorescence from a pseudoisocyanine-attached gold tip via a plasmonic-photonic hybrid system, *Opt. Exp.* 査読有、23 巻( 17 ) pp.21730-21740 (2015)  
DOI: 10.1364/OE.23.021730

K. Sakai, K. Nomura, T. Yamamoto and K. Sasaki: Excitation of Multipole Plasmons by Optical Vortex Beams, *Sci. Rep.* 査読有、 5 巻、 pp.8431/1-4 (2015)  
DOI: 10.1038/srep08431

[学会発表](計 32 件)

笹木 敬司、井手 柁希、石田 周太郎、プラズモニクナノ光渦マニピュレーション、応用物理学会シンポジウム「ナノ物質光マニピュレーションの最先端」、2017年3月14日、パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

K. Sasaki, Plasmonic Antenna for Confining Optical Vortex into Nano-Space, OSJ-OSA Joint Symposia, 2016/ 10/30, University of Tsukuba (Tsukuba-shi, Ibaraki)

K. Sasaki, M. ide, S. Ishida, and K. sakai, Shaping of Plasmonic Nano-Vortex fields, JSAP-OSA Joint Symposia, 2016/09/14, TOKI MESSE( Niigata-shi, Niigata)

K. Sasaki, Interference of nano-vortex fields formed by plasmonic cavities, META ' 16, the 7th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics, 2016/07/27, Malaga (Spain)

K. Sasaki, Photon Nano-Shaping and Its Application to Photochemistry, Seminar in Department of Applied Chemistry, 2016/04/15, Hsinchu (Taiwan)

K. Sasaki, Nano-sized whispering gallery modes of designed plasmonic structures, The 4th International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2015), 2015/12/04, Hokkaido University (Sapporo-shi, Hokkaido)

K. Sasaki, Plasmonic nano-shaping and nano-manipulation, XVIIIth International Krutyn Summer School 2015, 2015/09/30, Krutyn(Poland)

K. Sasaki, Coupling between Photonic Microcavity and Plasmonic Nanocavity, The36th PIERS in Prague, 2015/07/07,

Prague (Czech Republic)

K. Sasaki, Micro-and nano-manipulation using optical and plasmonic forces IPCSM ' 14 ( International Postgraduate Conference on Science and Mathematics 2014 ), 2014/10/18, Tanjong Malim Perak (Malaysia)

K. Sasaki, S. Ishida, K. Sakai, Y. Tanaka, Optical Nanomanipulation Using Nanoshaped Plasmonic Fields, JSAP-OSA Joint Symposia, 2014/09/17, Hokkaido University (Sapporo-shi, Hokkaido)

K. Sasaki, Optical Manipulation with Nanostructured Plasmonic Fields, Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS 2014 in Guangzhou), 2014/08/25, Guangzhou (China)

K. Sasaki, Nanomanipulation with Designed Plasmonic Nanostructures, Light Conference -International Conference on Micro/Nano Optical Engineering (ICOME2014), 2014/07/03, Changchun (China)

[その他]

ホームページ等

<http://optsys.es.hokudai.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

笹木 敬司 (SASAKI, Keiji)  
北海道大学・電子科学研究所・教授  
研究者番号：00183822

### (2)連携研究者

藤原 英樹 (FUJIWARA, Hideki)  
北海道大学・電子科学研究所・准教授  
研究者番号：10374670

石田 周太郎 (ISHIDA, Shutaro)  
北海道大学・電子科学研究所・特任助教  
研究者番号：10700099