

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05305

研究課題名(和文)電子線励起超解像顕微鏡における蛍光薄膜の厚さの最適化とコントラスト増強

研究課題名(英文)Optimizing the thickness of the fluorescent thin film and enhancing contrast in electron-beam excitation assisted (EXA) super-resolution optical microscopy

研究代表者

居波 渉 (Wataru, Inami)

静岡大学・電子工学研究所・教授

研究者番号：30542815

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：電子線励起超解像光学顕微鏡(EXA顕微鏡)のための蛍光薄膜を作製した。EXA顕微鏡では、収束電子線を蛍光体薄膜に照射し、ナノ光源を生成する。そこで、原子層堆積法(ALD)により平坦で均一なAl₂O₃/ZnO/Al₂O₃ヘテロ構造発光層を作製した。ALD法では、原子層レベルで堆積するため、欠陥のない均一な膜を作製することができる。Al₂O₃バッファ層とAl₂O₃バリア層を挿入することで平滑な表面が得られ、ZnOの場合に比べてより明るく空間的に均一なカソードルミネッセンス(CL)発光を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、原子レベルで平坦な表面や空間的に均一なCL発光などの特徴を有するAl₂O₃/ZnO/Al₂O₃二層あるいは多層膜蛍光体を開発した。これは、EXA顕微鏡において、高解像度かつ高コントラストな無染色イメージングや生きた細胞の動的な観察を実現するために必要なものである。これにより、基礎生物学や創薬だけでなく、物理・化学的な現象の解明など幅広い分野の進展に大きく貢献できる。

研究成果の概要(英文)：A fluorescent thin film for an electron-beam excitation assisted (EXA) super-resolution optical microscope was prepared. In EXA microscopy, a convergent electron beam is irradiated onto a fluorescent thin film to produce a nano-light source. Therefore, a flat and uniform Al₂O₃ / ZnO / Al₂O₃ heterostructured fluorescent thin film was prepared by the atomic layer deposition method (ALD). Since the ALD method deposits at the atomic layer level, it is possible to produce a uniform film without defects. The developed fluorescent thin films have a smooth surface by inserting an Al₂O₃ buffer layer and an Al₂O₃ barrier layer, and brighter and spatially uniform cathodoluminescence (CL) emission was obtained compared to the ZnO-only case.

研究分野：光学

キーワード：超解像顕微鏡 蛍光薄膜 酸化亜鉛

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

無染色でほとんど透明な試料を観察可能で、観察による試料ダメージがなく、光の回折限界を超えた空間分解能で細かい構造を明瞭に観察できる顕微鏡はない。近年、より高い空間分解能で生きた細胞の動態などをそのまま調べたいという要望が高まっている。細胞膜での信号、物質のやり取りの仕組みやナノ粒子の生体に対する毒性などは、これまでの光学顕微鏡では空間分解能が足りず観察できない。電子顕微鏡では、数ナノメートルの構造も観察できるが、生体試料の観察のためには固定処理する必要があるため、動画でその動きを観ることはできない。

本研究で開発している電子線励起超解像光学顕微鏡の蛍光薄膜の性能を向上させることで、細胞に染色などの操作を加えずに、よりそのままに近い状態の試料を動画で超解像観察することができる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、電子線励起超解像光学顕微鏡における蛍光薄膜の最適化による顕微鏡像のコントラストと信号雑音比の向上である。我々の開発した電子線励起超解像光学顕微鏡は、光の回折限界を超えた空間分解能で細胞などを観察できる。蛍光薄膜からの発光の空間的な均一性が悪いと、微小な強度差を検出することができなくなる。また、蛍光薄膜の結晶粒が大きいと分解能が低下する。そこで、原子層堆積法を用いて高輝度で均一な蛍光薄膜を作製する。

3. 研究の方法

蛍光体には、低加速電子線で高輝度発光を示す ZnO を用いた。また、蛍光体薄膜の高い均一性を実現するために原子層堆積法により ZnO を成膜した。さらに高輝度で均一な蛍光薄膜を作製するために、ZnO 蛍光薄膜に Al₂O₃ 層を導入した。Al₂O₃ はアモルファスで高いコンフォーマル性がある平坦な表面を持つ。また、Al₂O₃ 層を最表面に成膜することで ZnO の発光の外部への取り出し効率が向上する。ここでは、異なる構成の Al₂O₃/ZnO/Al₂O₃ ヘテロ構造発光層を作製して、評価を行った。

4. 研究成果

EXA 顕微鏡のための蛍光薄膜を作製した。EXA 顕微鏡では、収束電子線を蛍光体薄膜に照射し、ナノ光源を生成する。そこで、高分解能、発光強度の強い蛍光薄膜を作製するため、原子層堆積法 (ALD) により平坦で均一な Al₂O₃/ZnO/Al₂O₃ ヘテロ構造発光層を作製した。EXA 顕微鏡の高分解能化とその顕微鏡像の高信号雑音比を実現するための蛍光薄膜を作製した。蛍光体には、低加速電子線で高輝度発光を示す ZnO を用いた。ZnO および ZnO/Al₂O₃ ヘテロ構造膜は、ZnO は 220 Å、Al₂O₃ は 150 Å で ALD により SiO₂ (300 nm)/Si 基板上に成膜した。亜鉛、アルミニウムおよび酸素の供給源として、それぞれジエチル亜鉛 (DEZn)、トリメチルアルミニウム (TMA) および H₂O 前駆体を使用した。これらの前駆体は、パージガスとしても使用した窒素キャリアガスを用いて、100sccm の流量で反応チャンバーに直接注入した。ZnO 膜の成膜は、DEZn の供給 (0.02 秒)、30 秒のパージ、H₂O の供給 (0.02 秒)、10 秒のパージで 1 サイクルである。Al₂O₃ 膜の成膜は、TMA の供給 (0.02 秒)、4 秒のパージ、H₂O の供給 (0.02 秒)、10 秒のパージで 1 サイクルである。

図 1 に作製した ZnO 薄膜および ZnO/Al₂O₃ ヘテロ構造蛍光薄膜の模式図を示す。Al₂O₃ をバッファ層として挿入することで平滑な表面が得られる。サンプル A は、ZnO の膜厚 58.8nm である。サンプル B は、ZnO の膜厚 58.8nm、Al₂O₃ の膜厚 24nm である。サンプル C は、ZnO の膜厚 59.6nm、基板直上の Al₂O₃ の膜厚 12nm、最表面の Al₂O₃ の膜厚 24nm である。サンプル D は、それぞれの酸化亜鉛層の膜厚は 10.5nm であり合計 6 層である。Al₂O₃ の膜厚は全て 12nm である。

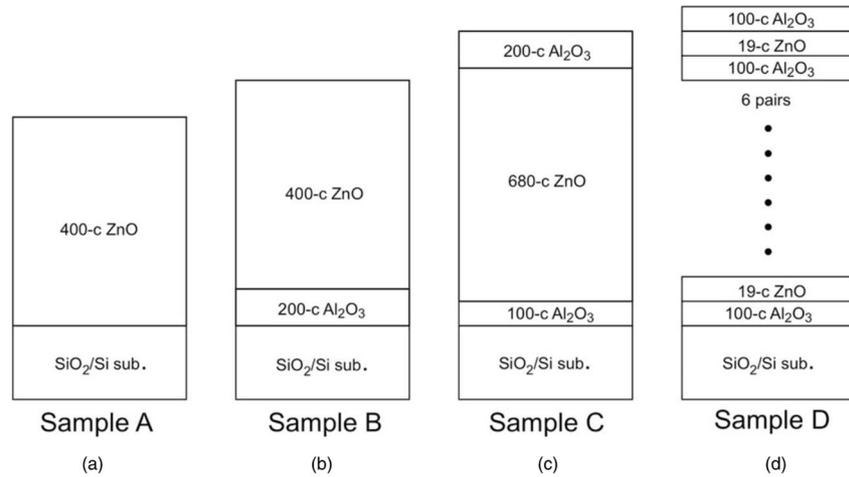


図 1 . 作製した ZnO 薄膜および ZnO/Al₂O₃ ヘテロ構造蛍光薄膜 .

図 2 (a)-(d)に SiO₂/Si 基板上的試料 A、試料 B、試料 C、試料 D のそれぞれの AFM 画像を示す。AFM 像から得られた試料 A-D の rms 粗さ値は、それぞれ 2.4nm、1.8nm、1.9nm、0.5nm であった。図 2 (a)の SiO₂/Si 上に直接成長させた as-deposit ZnO 膜は、粒子が密集して粗い表面である。Al₂O₃ バッファ層の堆積させた ZnO 層は、小さな結晶粒を含む滑らかな表面を示した。層数が増えるにしたがって、表面が滑らかになることがわかる。

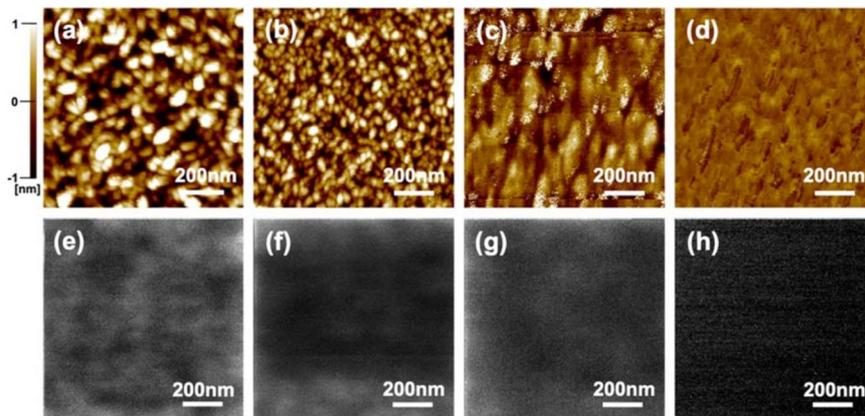


図 2 . SiO₂/Si 基板上的 (a) 試料 A、(b) 試料 B、(c) 試料 C、(d) 試料 D のそれぞれの AFM 画像。図(e)-(h)は、それぞれ試料 A-D の CL マッピング結果である。CL ピーク波長は、試料 A-C は 380nm、試料 D は 375nm で収集された。

図 3 (a)に SiO₂/Si 基板に成膜した試料 A-D の室温 CL スペクトルを示す。試料 A-D でバンド端発光を示している。SiO₂ 上に直接成膜した ZnO 薄膜 (サンプル A) と Al₂O₃ バッファ層上の ZnO 薄膜 (サンプル B) は、発光エネルギー、発光強度ともに同様のスペクトルピークを示した。Al₂O₃ を最上層のバリア層として導入した場合 (サンプル C) 、紫外発光は約 2 倍強くなった。図 3 (b)に試料 A-D の CL スペクトルの積分強度と発光のピーク波長を比較した結果を示す。これより、サンプル C の構造で発光が増加していることがわかる。これは、最上層の Al₂O₃ により光の取り出し効率が向上したためである。サンプル D のように層数を増やしすぎると、発光強度は減少する。これは、電子線の侵入深さ内にある ZnO の量が減少したためだと考えられる。

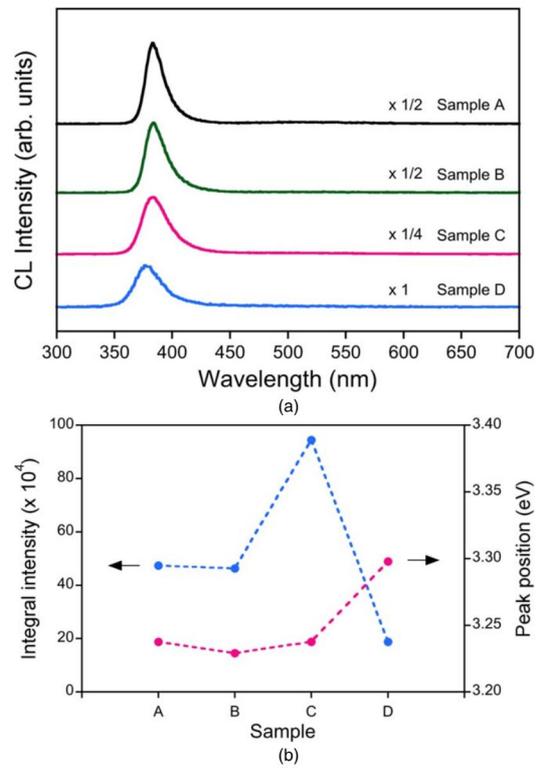


図3 . (a) 試料の室温 CL スペクトル。加速電圧は 5kV. (b) (a)で示した発光ピークの積分強度とバンドエッジ近傍の CL のピーク位置の変化 .

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakamura Atsushi, Inami Wataru, Yamamoto Ryo, Imai Yuma, Kobayashi Shun, Kawata Yoshimasa	4. 巻 60
2. 論文標題 Improvement of in-plane uniformity of cathodoluminescence from ZnO luminescent layers for electron beam excitation assisted optical microscope	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 065502 ~ 065502
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abfc5f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 S. Kobayashi, A. Nakamura, W. Inami, Y. Kawata
2. 発表標題 Development of luminescent thin films based on superlattice structures of Al ₂ O ₃ and ZnO by atomic layer deposition
3. 学会等名 MOC2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今井 悠真, 小林 舜, 居波 涉, 中村 篤志
2. 発表標題 原子層堆積法によるAl ₂ O ₃ /ZnO/Al ₂ O ₃ 構造の薄膜成長
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林舜, 居波涉, 川田善正
2. 発表標題 原子層堆積法によるAl ₂ O ₃ とZnOの超格子構造を用いた発光薄膜の開発
3. 学会等名 第15回情報フォトンクス研究会関東学生研究論文講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 福原淳志, 居波涉, 川田善正
2. 発表標題 電子線直接励起蛍光顕微鏡の高分解能化
3. 学会等名 第15回情報フォトンクス研究会関東学生研究論文講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村竣亮, 居波涉, 川田善正
2. 発表標題 電子線の侵入長の違いを用いた走査型電子顕微鏡による3次元構造観察
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 居波涉, 川田善正
2. 発表標題 電子線励起蛍光体を用いた超解像イメージング
3. 学会等名 第380回蛍光体同学会講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本 燎, 加納 寛人, 中村 篤志, 居波 涉
2. 発表標題 原子層堆積法による平坦なZnO薄膜の成長条件調査
3. 学会等名 電子情報通信学会 発光型 / 非発光型ディスプレイ合同研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本 燎, 加納 寛人, 中村 篤志, 居波 渉
2. 発表標題 ZnOのALD成長での平坦薄膜成長条件の調査
3. 学会等名 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本 燎, 加納 寛人, 中村 篤志, 居波 渉
2. 発表標題 ALD成長によるZnOの平坦薄膜成長条件の調査
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	中村 篤志 (Nakamura Atsushi) (50402243)	静岡大学・工学部・准教授 (13801)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------