

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月2日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22710101

研究課題名（和文）電子線ホログラフィーによる光電場・静電場のナノイメージング

研究課題名（英文）Imaging of photo-induced electric field using electron holography

研究代表者

成瀬 延康（NARUSE NOBUYASU）

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：30350408

研究成果の概要（和文）：透過電子顕微鏡で観察中の試料に対し、望みの波長と強度のレーザー光を照射可能な装置を開発した。この装置を用いて、貴金属物質に対してレーザー光照射中に得た電子線ホログラフィー像を解析した結果、光照射に伴って試料表面近傍に現れた誘起光電場の空間分布をナノスケールで直接イメージングすることに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have originally developed an apparatus to illuminate laser in transmission electron microscope. Electron holographic images obtained from gold crystal surface during the laser illumination clearly show photo-induced (enhanced) electric field in nano-scale spatial resolution.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究代表者の専門分野：表面・ナノ科学、電子顕微鏡、光物性、超高速時間分解電子回折

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：電子線ホログラフィー、透過電子顕微鏡、光誘起電場、ナノイメージング

1. 研究開始当初の背景

電子線ホログラフィーでは、一つの電子波を二つに分割して再び干渉させると、それらの間の「位相差」が一意的に決まり、実際に測定可能な物理量となる。本手法は、電場や磁場といった「場」を直接観察出来るという

大きな利点がある。これまで磁場および p-n 接合部の静電場などは精力的に研究されてきたが、本研究目的の一つである光誘起電場のイメージングだけが、透過電子顕微鏡（TEM）内での光照射の困難さから決定的な報告はなされていなかった。さらに、静電場

であってもナノスケール物質に対する外部電場応答には、数多くの興味深い現象が理論的に呈示されつつあり、実験的検証が急務となっている。さらに、近年、数十ナノメートル以下の局所領域や薄膜／ナノ材料の光学・誘電特性を、工業利用する局面が増えてきたが、その特性を個々に定量評価する実験手法が少ない点が、効率的な応用材料研究の阻害要因となっている。光誘起電場・静電場の物質内部に及ぶ空間分布を計算ではなく実験的にナノスケールで実測する手段が求められていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、試料への光照射により生じた光誘起電場を定量的にナノイメージングする手法を開発することである。具体的な主な柱は下記の二点である。

- (1) TEM 鏡筒内部で試料に光照射を可能にする試料ホルダーを考案し作製すること
- (2) 電子線ホログラフィー技術を発展させ、試料近傍の光誘起電場の空間分布イメージングを実証すること

研究開始当初は、光誘起電場だけでなく、印加静電場の空間イメージングをも可能な試料ホルダーを作製することを計画していた。これは、光誘起電場が捉えられない場合に研究上の指針を得ることやプローブ顕微鏡探針直下の様子を再現可能な仕組みとすることを想定していた。しかし予算上、数々の制約事項が生じたため、本研究の最大の目的である光誘起電場の空間イメージングの実証を重点的に取り組むこととした。

3. 研究の方法

図 1 に本研究において達成すべき実験の概念図を示す。これを実現するため、下記の事を行った。

- (1) TEM 鏡筒内において望みの波長と強度のレーザー光を照射可能な試料ホルダーを作製する。その際、将来的に試料の偏光依存性・波長依存性を計測可能となるように研究発展可能な仕組みとする。

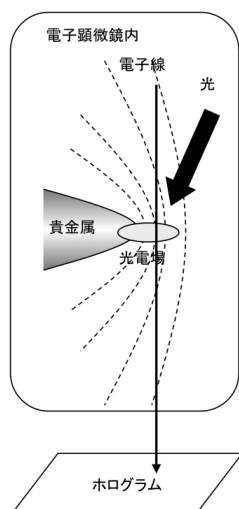


図 1 実験の概念図

- (2) 貴金属試料表面、

或いは貴金属微粒子近傍は、特定の波長の光に対し「電場増強効果」を示すことが知られている。これは、このような金属近傍で、局在表面プラズモンと呼ばれる共鳴的な電子分極の振動が光照射によって生じるためである。本研究では、可視光に中心波長をもつ LD の使用を念頭に置き、これらの波長で共鳴極大となる様な試料を作製することとした。具体的には、これらの金属が数十～数百 nm の大きさの凹凸をもつ場合や微粒子となった場合に可視光で共鳴極大となることが知られている。本研究では目的の形状や大きさとなるような単結晶薄膜や微粒子作製を目指し、Au や Ag をアルカリハライド基板 (KCl) 上に真空蒸着後、カーボン蒸着を施し、TEM 用マイクログリッド上に支持し試料とした。上述の新規に作製した試料ホルダーを用いて、TEM (JEM3000F, JEOL) 内で 400-800nm の光をこれらの試料に照射し、照射中の電子線ホログラフィー像を取得した。LD 素子はシングルモードのものを用い、その照射強度は LD に通電する電流量で調整 (LDC205C, Thorlabs) した。

4. 研究成果

(1) TEM 鏡筒内において望みの波長と強度のレーザー光を照射可能な試料ホルダーを考案し作製した。図 2 は本研究にて作製した試料ホルダーである。その特徴は、

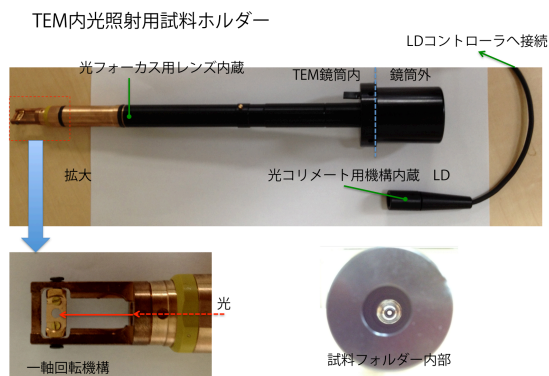


図 2 作製した試料ホルダー

- ① 試料ホルダー内部に光フォーカス用レンズを内蔵し、真空と大気を隔てる隔壁の役割を兼ね備えている。
- ② LD 先端に光の調整機構を備えるとともに、LD を TEM 観察中にも交換可能な装置構成とすることで試料への光照射波長を可変できる仕組みとした。
- ③ 鏡筒外から光を調整する仕組みを採用したことから、将来的に、外部パル

スレーザー光の取り込みや、偏光依存性の測定にも対応可能とした。

(2) まず、電子線ホログラフィーにおける増強光電場がコントラストとして観察可能となるための試料の条件を定量的に検討した。電子が試料近傍を通過する時間に多周期の電場変動を感じると電子線の位相変化が平均化されて0となってしまう。一方、電子通過時間内にほぼ静止した電場を感じる場合には、位相変化が観測できる。試料に生じた光電場中を電子が通過する時間の間に 2π 以下の位相変化であれば良いので、この条件のもとで、760nm の光波長（使用 LD の中心波長）、使用する電子の加速電圧（300keV）から試料端面の厚さを見積もったところ、9nm 以下であれば位相変化として観測され得ることがわかった。

(3) 先に述べた試料の条件を微粒子で達成するにはいくつかの実験上の困難が予想された。例えば、微粒子の場合にはカーボン膜などによる支持が必要で微粒子とカーボン膜が重畳すると、ホログラフィーの微弱なコントラストの変化が捉えにくくなると予想される。また、ロッド状あるいは楕円形ではなく球形の微粒子では光照射に伴う電場増強度が小さいことも知られている。そのため、まず、試料に少しでも異方性をもたせる意味で Au の単結晶蒸着膜（厚み $9\text{nm} \pm 2\text{nm}$ ）を作製し試料とすることとした。この金の薄膜に対して、760nm の中心波長をもつ LD を用いて 0.1mW の光を照射した際に得た電子線ホログラムを図(a)に示す。(b)は(a)のフーリエ変換像、(c)は振幅像である。図の AB 線における光照射/非照射中の表面近傍におけるコントラストのラインプロファイルを(d)に示す。A 側が金の試料側、B 側が真空側となる。(d)では、(c)における A-B ラインから得たラインプロファイルが赤線、LD を非照射として同様のフーリエ画像変換をした後に同一箇所から得たものが青線である。明らかに、光の照射中に限り、試料近傍においてコントラストが増している。このことから、このコントラストが試料端面に生じうる Fresnel 縞ではないと判断できる。この変化が電場増強効果に起因するものとして解釈し、その電場の大きさを見積もると $\sim 2 \times 10^5 [\text{V/m}]$ であることがわかった。これは、当初金属回転楕円体粒子を仮定し、その先端に生じると予想した電場 ($\sim 10^7 [\text{V/m}]$) よりも 2 桁小さいが、光誘起電場を直接的に捉えた物と判断できる。このように、光誘起電場を電子線ホログラフィーで捉えることが可能であることを実験的に実証したことは、極め

て大きいと言える。

しかしながら、現状では、試料の形状効果、励起光波長依存性を系統的に調査するまでには至っていない上、コントラストの変化も小さく S/N 比もそれほど良くない。Ag 薄膜に対して行った実験でも同様の結果は得られているものの、その場合の画像の S/N 比も現状では良くない。また、光照射に伴う試料の熱ドリフトにより、光照射前後の差分像を取得するには至っていない。光照射に伴う試料変化の可能性を完全に否定するまでには至っておらず、さらに説得力のある実験データを取得するために、電子線ホログラフィーの画像処理の工夫や、光照射角度の最適化、光電場増強効果の高い試料の作製と光照射波長を様々に変えた実験を行い、多角的な検証が不可欠であると考えている。その検証の後、本研究成果を論文にまとめる予定である。

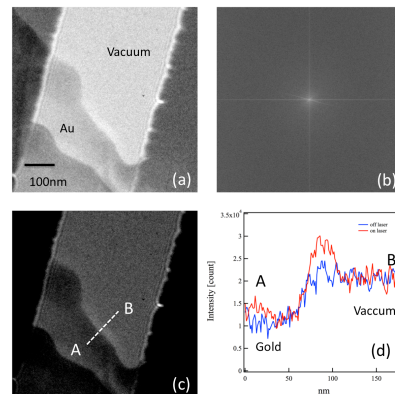


図3 (a)光照射中の電子ホログラム、(b)フーリエ変換像、(c)振幅像、(d)図(c)の AB の光照射/非照射中のラインプロファイル

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 Nobuyasu Naruse, Yoshiaki Nakamura, Yutaka Mera, Masakazu Ichikawa, and Koji Maeda, Photoabsorption properties of β -FeSi₂ nanolands grown on Si(111) and Si(001): Dependence on substrate orientation studied by nano-spectroscopic measurements, Thin Solid Films, 査読有、Vol.519, 2011, pp.8477-8479 DOI: 10.1016/j.tsf.2011.05.035
- ② 目良 裕、成瀬 延康、前田 康二、光 STM および STM フーリエ変換ナノスペクト

ロスコピー、表面科学、査読無、Vol.32、
2011、pp.779-784
DOI: 10.1380/jsssj.32.779

〔学会発表〕（計 1 件）

① Nobuyasu Naruse, Photoabsorption
Nano-Spectroscopy for Characterizing of
 β -FeSi₂ Nanoislands Grown on Si(111)
and Si(001): Dependence on Substrate
Orientation, Asia-Pacific Conference on
Semiconducting Silicide (APAC-SILICIDE
2010)、2010 年 7 月 25 日、つくば

6. 研究組織

(1) 研究代表者

成瀬 延康 (NARUSE NOBUYASU)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：30350408

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし