

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18974

研究課題名（和文）電子ビームによるサブミクロン局在光可視化技術の開発研究

研究課題名（英文）Visualization of submicron localized light using electron beams

研究代表者

山崎 順（Yamasaki, Jun）

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・教授

研究者番号：40335071

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：光強度勾配による電子線偏向現象を用いて局在した光の分布を可視化する全く新しいイメージング手法の開発研究を行った。透過電子顕微鏡内にフェムト秒レーザーによる集光スポットを形成し、それと同期したパルス電子ビームの偏向角を精密に計測することにより、局在光の強度勾配を反映したと思われる偏向を捉えることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

フォトニック結晶などに代表される次世代の光デバイス技術の開発が進んでおり、信号として用いる光の空間的な局在性を可視化することにより動作原理の検証や高性能化に貢献するという社会的意義を持つ。またミクロの世界を可視化する電子顕微鏡の観察対象は原子核と電子からなる物質構造に概ね限定されているが、本課題は観察対象を光子にまで広げるという学術的意義を持ち、その第一歩となる基礎的な取り組みに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have developed a completely new imaging technique to visualize light localized at micron to submicron sizes utilizing the phenomenon of electron beam deflection caused by a light intensity gradient. Using a femtosecond laser, a focused light spot was formed inside a transmission electron microscope. By precisely measuring the deflection angle of a pulsed electron beam synchronized with the spot forming, we have succeeded in capturing a deflection that is believed to reflect the intensity gradient of the localized light.

研究分野：Electron Microscopy

キーワード：局在光 電子線偏向

### 1. 研究開始当初の背景

フォトニック結晶などに代表される次世代の光デバイス技術の開発が進んでおり、信号として用いる光の空間的な局在性を可視化することが動作原理の検証や高性能化に貢献している。物質内の局在光が表面に漏れ出てくるような場合には、NA の非常に大きなレンズを用いるなど何らかの手段で局在光を間接的に観察できる場合もある[1]。しかしその像は光の波長程度にぼやけており、また表面の光分布が内部と同じである保証もなく、そもそも漏れ出てくる光がなければそれを検出することすらできない。真空中のある領域に局在している光や物質内部にとどまったままの光を計測できる可能性としては、荷電粒子線が光強度勾配から受ける偏向 (Ponderomotive 力) を用いた手段が考えうる。一様強度分布の電磁波から受ける電子線偏向は、図 1 左に示すように時間・空間平均を取るとほぼ打ち消される。しかし局在した電磁波の場合(図 1 右)、光強度が弱まる方向へと電子線が一旦偏向すると光軸に向けての復元力がわずかに弱くなるため、振動電磁場通過に際し光強度分布の空間微分に比例した力を受けた電子線偏向が生じる。現在までに均一光定在波などによる電子線偏向パターンの計測実験が報告されている[2]が、この現象を活用した局在光分布のイメージングは未だかつて達成されていない。

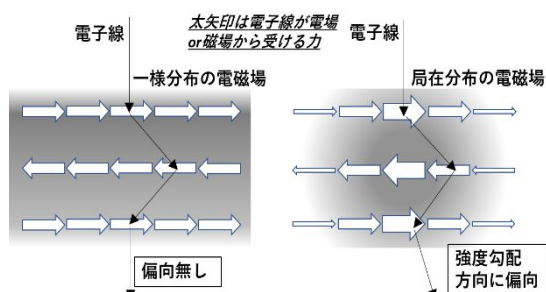


図 1 電子線が局在光から受ける Ponderomotive 力の概念図

### 2. 研究の目的

光強度勾配による電子線偏向現象を用いて局在した光の分布を可視化する全く新しいイメージング手法の開発研究を行う。パルスレーザーを用いて真空中にミクロンサイズの局在光を形成し、その計測を通じて測定方法の有効性を検証する。これにより次世代のフォトニクス技術を担う様々な微細光デバイスの計測に向けての基礎を確立することを目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 局在光を真空中に形成するために、外部から電子顕微鏡内部に誘導したレーザー光を試料位置に集光する必要がある。このため図 2 に示した構造を持つレーザー照射電子顕微鏡を用いた実験を行う。本研究のキーとなる電子線偏向を精密に測定する点について、代表者は透過電子顕微鏡を用いてナノスケール領域での小角偏向を測定する手法開発に取り組んできた[3-5]。そこで培った技術に基づき 10  $\mu$ rad 程度の感度で電子ビーム偏向が測定可能である。しかしシミュレーションによる見積りの結果、現在の技術で検知できる大きさの角度偏向を得るためには連続波レーザーでは光強度が数桁足りず、パルスレーザーによる高強度照射が必要と判明した。図 3 (b) はパルスレーザーによる集光スポットの光強度分布による電子線偏向角分布のシミュレーションであり、十分計測可能な値の偏向角が生じると見積られた。

(2) フェムト秒レーザーと組み合わせて電顕内試料位置にポンプ光を集光すると同じタイミングで、パルス電子線を試料位置に入射させる必要がある。このために、光路分岐によって形成したプローブ光を電子線エミッターに照射し、光電効果によるパルス電子ビームを発生させる。このようなポンプ光とパルス電子線の同時制御の検証も兼ねた応用計測として、Ti<sub>3</sub>O<sub>5</sub> へのレーザーパルス照射による光誘起相転移現象の時間分解能計測に取り組み、これらの光路調整および同期調整が高いレベルで実現されていることを確認した。またその過程で得られた計測結果に基づき、光誘起相転移のメカニズム解明に取り組んだ内容を副次的な成果として論文出版した[6]。

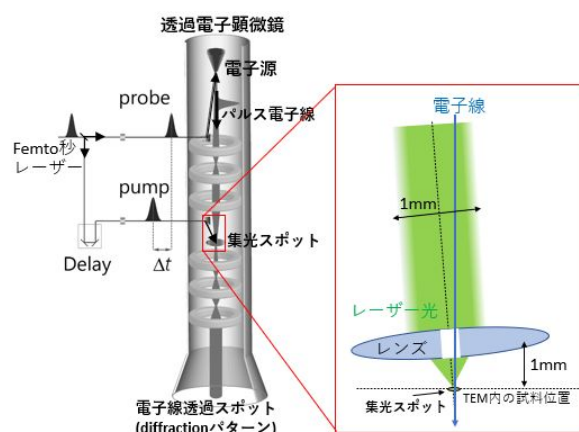


図 2 レーザー照射TEM模式図

(3) 試料位置に照射したレーザー光によってミクロンサイズの局在光を形成するためには、直前にレンズを設置して集光スポットサイズをできるだけ小さくする必要がある(図 2)。このため、電子線通過用の細孔を中央に開けたレンズを適切な高さに取り付けることのできる特殊

試料ホルダーの設計と製作を行った。

(4) 電子顕微鏡に設置されている円形絞りをを用いて、100nm 程度の微小領域を通過した電子ビームを選択する。この状態で回折モードに変更すると、絞り穴のフラウンホーファー回折図形である Airy パターンが図 4 (a) に示すように計測される。このピーク位置の変動を詳細に計測することで、選択領域のビーム偏向が測定できる。この測定を集光スポットが形成されていると思われる領域で、図 3 (a) に示すように格子状にスキャンし、結果をつなぎ合わせることで光強度分布のマッピングが可能となる。選択領域の移動は、電子顕微鏡内の電磁石レンズの電流値制御により可能である。また集光スポット形成とパルス電子線の同期のためには、レーザーのポンプ光とプローブ光の間の最適遅延時間をスキャンして探す必要がある。それらの動きと同期して電子回折図形を撮影するカメラも制御するスクリプトを開発し、全自動でデータを撮影する体制を構築した。

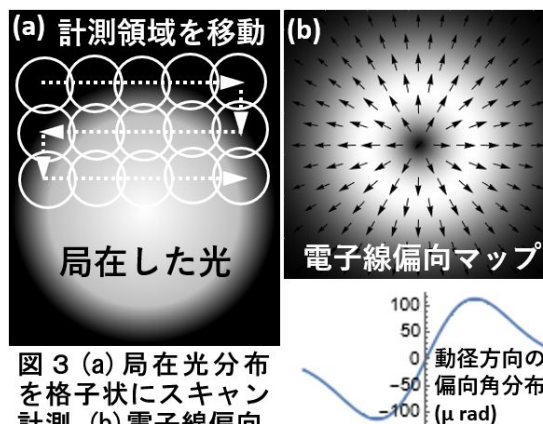


図 3 (a) 局在光分布を格子状にスキャン計測 (b) 電子線偏向

#### 4. 研究成果

集光スポット形成とパルス電子線の到達のタイミングは、実験室の温度変化などによっても徐々に変化するため、ある程度の範囲で最適な遅延時間を探索して完全に同期する条件を定める必要がある。そのため 2.2ps ステップで遅延時間を変更することにより 100 通りの遅延時間での計測を行う必要がある。この測定を図 3 (a) のような格子状測定における全ての箇所で行うため、一回あたりの測定は数時間から 1 日程度を要した。また集光スポットの形成位置は試料ホルダーへの集光レンズ取り付け位置の微調整精度に依存して大まかにしか定まらないため、選択位置を正確に狙って定めた計測を行うことは困難である。このため、集光スポットが形成されている可能性が高い領域にわたって格子状測定を何度も繰り返し行った。その結果、ある測定において図 3 (b) に示すような 60 番目の遅延時間においてのみピーク位置が有意に変動する結果が得られた。500nm 間隔の 3x3 格子のうちの 6 箇所において同様のピーク位置変動が現れているためノイズではなく、実際に局在光の強度勾配領域での格子状測定が行えた結果である可能性が非常に高いと考えられる。

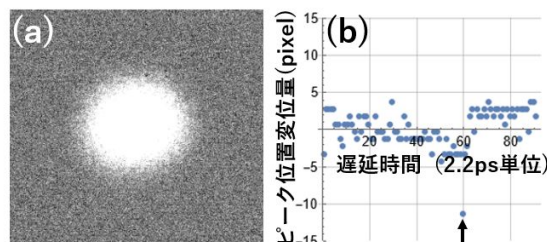


図 4 電子線偏向の計測結果。(a) 絞りで選択した領域からの回折ピーク。(b) 遅延時間を変えた場合の回折ピークの移動。

今回の結果により、本課題で提案した手法によって実現できる計測感度内で実際に局在光の位置情報を捉えることが可能であることが実証できた。今回の研究期間内においては局在光による電子ビーム偏向を実際に捉えることを最優先に、格子状測定を行う回数を重視したため 3x3 または 5x5 格子での初期的な測定しか行えなかったが、集光レンズ固定方法に改善を加えて 10x10 程度の格子状測定を行うことにより、当初の目標である局在光の形状マッピングまで含めた計測が達成できる見込みであると言える。

- [1] H-G. Park, et al., Science, 305 (2004) 1444.
- [2] M. Gao, et al., Opt. Express, 20 (2012) 12049.
- [3] S. Morishita, J. Yamasaki et al., J. Electron Microsc., 60 (2011) 101.
- [4] J. Yamasaki et al., Appl. Phys. Lett. 101 (2012) 234105.
- [5] J. Yamasaki et al., Jpn. J. Appl. Phys. 58 (2019) 120502.
- [6] S. Hatanaka, J. Yamasaki et al., Appl. Phys. Lett., 123 (2023) 241902.

## 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 Hatanaka Shuhei, Tsuchiya Taro, Ichikawa Shuhei, Yamasaki Jun, Sato Kazuhisa	4. 巻 123
2. 論文標題 Ultrafast dynamics of a photoinduced phase transition in single-crystal trititanium pentoxide	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 241902
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0175450	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8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 畑中 修平, 土屋 汰朗, 市川 修平, 佐藤 和久, 山崎 順
2. 発表標題 超高速電子顕微鏡を用いたTi305の光誘起相転移その場観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畑中修平, 土屋汰朗, 市川修平, 山崎順, 佐藤和久
2. 発表標題 パルス電子顕微鏡によるTi305の光誘起相転移の時間分解観察
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shuhei Hatanaka, Taro Tsuchiya, Shuhei Ichikawa, Jun Yamasaki and Kazuhisa Sato
2. 発表標題 Time-resolved observation of photoinduced phase transition of trititanium pentoxide by ultrafast electron microscopy
3. 学会等名 14th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '22 (ALC'22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畑中修平
2. 発表標題 パルス電子顕微鏡によるTi305の光誘起相転移の時間分解観察
3. 学会等名 2023年度 日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 研究討論会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 畑中 修平、土屋 汰朗、市川 修平、山崎 順、佐藤 和久
2. 発表標題 パルス電子顕微鏡を用いたTi305の光励起相転移の時間分解観察
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yuki Adachi, Rintaro Maji, Yuto Kudo, Masato Morifuji, Hirotake Kajii, Akihiro Maruta, Jun Yamasaki, and Masahiko Kondow
2. 発表標題 Edge Structure Optimization for Improving Output Power of Circular Defect in Photonic Crystal Laser
3. 学会等名 Photonic Device Workshop 2023 (PDW2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazuki Sato, Hikari Kubota, Yuki Adachi, Masato Morifuji, Hirotake Kajii, Akihiro Maruta, Jun Yamasaki, and Masahiko Kondow
2. 発表標題 Wavelength properties of CirD (Circular Defect in 2D photonic crystal) Laser with aluminum oxide cladding layers having OLW (Orthogonal Lattice Waveguide) with air cladding layers
3. 学会等名 Photonic Device Workshop 2023 (PDW2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hikari Kubota, Kazuki Sato, Yuki Adachi, Masato Morifuji, Hirotake Kajii, Akihiro Maruta, Jun Yamasaki, and Masahiko Kondow
2. 発表標題 Theoretical Study on Light Output from Orthogonal Lattice Waveguide Edge in Circular Defect in Two-dimensional Photonic Crystal (CirD) Laser
3. 学会等名 Photonic Device Workshop 2023 (PDW2023) (国際学会)
4. 発表年 2023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	畑中 修平 (Hatanaka Shuhei)  (30838503)	大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・技術職員  (14401)	
研究分担者	近藤 正彦 (Kondow Masahiko)  (90403170)	大阪大学・大学院工学研究科・教授  (14401)	
研究分担者	森藤 正人 (Morifuji Masato)  (00230144)	大阪大学・大学院工学研究科・招へい准教授  (14401)	

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
---------	---------