

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 18 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23241036

研究課題名(和文) ナノ電子らせん波の生成およびキラル物質との相互作用の研究

研究課題名(英文) Studies of the production of electron vortex beams and their interaction with chiral materials

研究代表者

齋藤 晃 (Koh, Saitoh)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

研究者番号：50292280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 38,900,000円、(間接経費) 11,670,000円

研究成果の概要(和文)：1)電子線用のフォーク型回折格子およびスパイラルゾーンプレートを作製し、電子顕微鏡への導入を行った。特に、収束絞りに導入したスパイラルゾーンプレートにより、軌道角運動量 $90\hbar$ のらせん波が生成した。2)ヤングの2重スリット実験と同じレイアウトで、互いに軌道角運動量の異なる2つの電子らせん波の干渉実験を行い、異なる軌道角運動量をもつ電子らせん波が干渉することを明らかにした。3)フォーク型回折格子に電子らせん波を入射し、回折過程を観察した。この結果、フォーク型は、並進運動量移送にともない軌道角運動量も移送することを確かめた。4)電子らせん波を薄膜上の金属ナノ粒子等に照射し、その変位挙動を調べた。

研究成果の概要(英文)：1) Forked gratings and spiral zone plates for electron beams were nano-fabricated and introduced into electron microscopes. We confirmed that a spiral zone plate introduced into the condenser lens system of an electron microscope produced an electron vortex beam carrying an orbital angular momentum of $90\hbar$. 2) Young's double slit experiment was conducted using two electron vortex beams with different orbital angular momenta. It was confirmed that the two electron vortex beams are interfered with each other irrespective of their orbital angular momenta. 3) We confirmed that a forked grating transfers not only linear (transverse) momentum but also orbital angular momentum. 4) Electron vortex beams were illuminated to nano particles deposited on graphene and Si_3N_4 thin films to study the manipulation of the nano particles using the electron vortex beams.

研究分野：複合新領域

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：電子顕微鏡 らせん波 軌道角運動量 位相特異点 ポルテックス

1. 研究開始当初の背景

2010年、内田・外村により軌道角運動量をもつ電子ビームの生成が報告された。この発見を契機に、軌道角運動量をもつ電子波、すなわち、らせん状の波面をもつ電子ビーム(電子らせんビーム)の研究が世界中で急速に進められようとしている。たとえば、ごく最近、オーストリアのグループが、電子らせん波の性質をもちいた新しい磁気円二色性測定の手法を報告しており、また英国のヨーク大学を始め、欧米では、らせん波の応用研究のための新しいプロジェクトが立ち上がるようであった。

光の分野では、1992年にオランダのグループによりらせん状の波面をもつ波の存在が確認され、物質をトラップし、回転させる光ピンセットなどを始め、種々の応用研究がなされている。また、日本物理学会でらせん波に関する特別セッションが組まれるなど、らせん波の重要性が認識され、研究がすすめられている状況であった。その一方で、電子線の分野では現在まで電子らせんビーム生成の報告は世界で上記の2例しかなく、その物理的性質についてはほとんど解明されていないと言ってよい状況であった。もちろん、ビーム径がナノメートルオーダーに絞られた電子らせん波を形成した例は報告されていなかった。

軌道角運動量をもつ量子ビームについては、光以外に研究がなされていない状況であり、電荷をもちフェルミオンである電子がらせん波になるとき、自由空間をどのように伝播するのか?物質とどのような相互作用を示すのか?についての実験的研究およびそれらを記述する理論の構築など、実験および理論の両面からの研究がなされていない状況であり、また、光ピンセットの電子線版である「電子ピンセット」についても実験的検証がなされていない状況であった。

2. 研究の目的

本研究課題では、最近我が国で発見された、電子線の伝播モードである電子らせん波の物理的性質および物質との相互作用を明らかにするため、1)ビーム径数ナノメートルの電子らせんビームの生成を試み、それをもちいた物性測定への最初の応用として、2)キラル物質の円二色性イメージング法の開発および3)ナノマニピュレーションの可能性を検証する。また、当研究グループで現在開発を進めているスピン偏極電子源と組み合わせた4)スピン偏極電子らせん波の生成を試みる。昨年度までに、フォーク状回折格子およびスパイラルゾーンプレートをもちいた電子らせん波の生成およびその伝播過程の観察、軌道角運動量の異なる電子らせん波どうしの干渉実験を行い、電子らせん波の物理的性質について多くの知見を得た。本年度はらせん波によるナノ材料のマニピュレーション、キラル物質・磁性材料との相互

作用について明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

1) ナノ電子らせん波の生成、伝播および干渉実験

電子らせん波の生成にもちいる電子線回折格子(バイナリマスク)を計算機プログラム等により設計し、FIBにより作製した。作製した電子線マスクを電子顕微鏡に導入し、実際にらせん波の生成実験を行いながら形状の最適化を図った。

作製したマスクを通過した電子が波として伝播する過程で形成する特徴的な強度分布を観察した。

2) 電子らせん波の干渉実験

ヤングの2重スリットの干渉実験の各スリットをフォーク型回折格子に置き換えて遠方場(回折面)でふたつの電子らせん波が重なり合うようにし、干渉パターンが現れるか観察する実験を行った。フォーク型回折格子のバーガスベクトルが同符号の場合と逆符号の場合で干渉縞が変化するかを観察した。

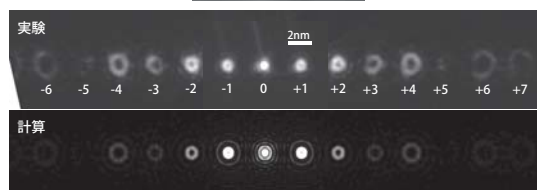
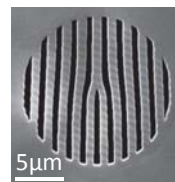
3) ナノマニピュレーション実験

グラファイトや Si_3N_4 膜などに蒸着した金属ナノ粒子は、基板との相互作用が極めて小さいため、らせん波とナノ物質の相互作用を検出するための理想的な系といえる。グラファイトや Si_3N_4 膜上に真空蒸着したAn, Pt, Cu等の微粒子に電子らせん波を照射し、電子らせん波と金属液滴との相互作用についての基礎データを収集する。

4. 研究成果

4.1 電子線マスクの作製および電子らせん波の伝播過程の観察

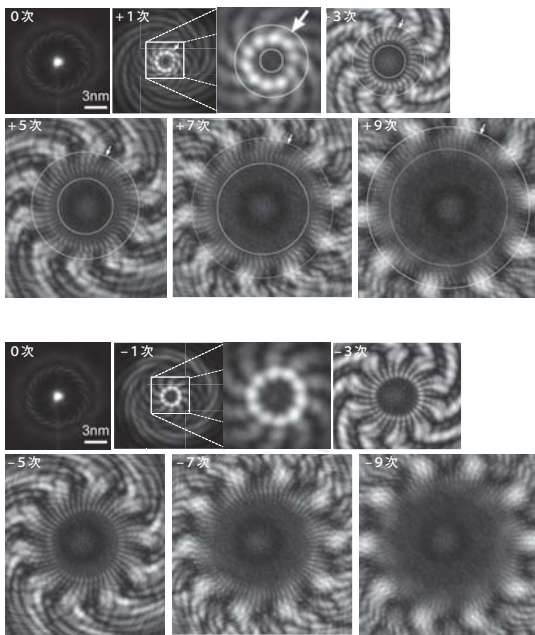
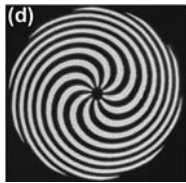
また直径 $20\mu\text{m}$ のフォーク型回折格子の作製および電頭への導入を行い、ナノメートルサイズの電子らせん波の生成に成功した。マスク面から出射された電子波がレンズのクロスオーバー位置でらせん波を形成する過程を観察した。また、フレネル伝播を仮定したシュミレーションプログラムを開発し、実験結果が計算結果と極めてよい一致を示すことを確認した。



FIBで作製したフォーク型回折格子(上)、回折波として生成したらせん波(中)、計算(下)。

4.2 スパイラルゾーンプレートをもちいた大きな軌道角運動量をもつ電子らせん波の生成

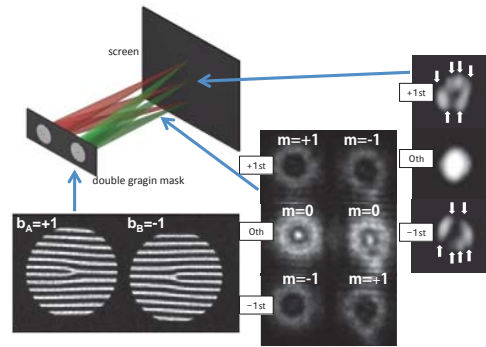
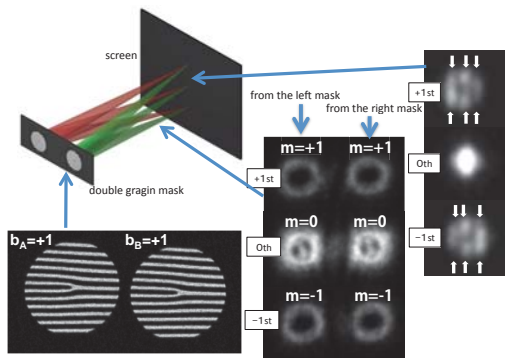
電子らせん波を生成する 2 値化マスクとして、種々のフォーク型回折格子およびスパイラルゾーンプレートを作製し、電子顕微鏡への導入を行った。収束絞りに導入したスパイラルゾーンプレートにより、軌道角運動量 $90h$ のらせん波が生成できた。



FIB で作製したスパイラルゾーンプレート (上)、生成した $m=10, 30, 50, 70, 90$ のらせん波(中)および $m=-10, -30, -50, -70, -90$ のらせん波(下)。

4.3 電子らせん波の干渉実験

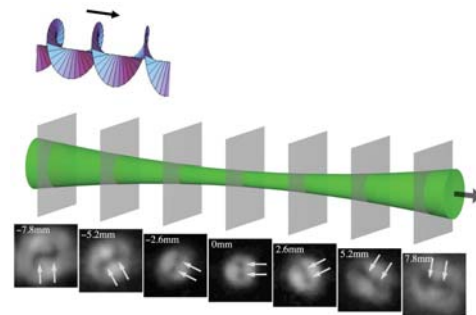
ヤングの 2 重スリット実験と同じレイアウトで、互いに軌道角運動量の異なる 2 つの電子らせん波の干渉実験を行い、異なる軌道角運動量をもつ電子らせん波が干渉することを明らかにした。



2 重回折格子をもちいた電子らせん波の干渉。軌道角運動量の等しいらせん波の干渉(上)および軌道角運動量の異なるらせん波の干渉。

4.4 2 つの渦を含む電子らせん波の生成

2 つのフォークを含む回折格子を作製し、2 つの渦 (位相特異点) を含む電子ビームを生成することに成功した。2 つの渦の軌道角運動量が同符号および逆符号の 2 つの場合について伝播過程を観察したところ、同符号では 2 つの渦の中心の回りを同じ向きで公転運動するのに対し、逆符号では反対の向きで公転運動することが判明した。この成果は、日本物理学会の国際ジャーナル Journal of the Physical Society of Japan の Editor's choice に選定され、また物理学会年会第 69 回年次大会での JPSJ フレンドシップミーティングでの講演論文に選ばれるなど、多くの関心を集めた。

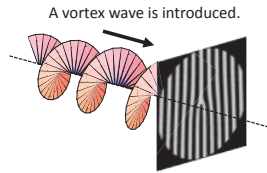


2 つの特異点を含む電子らせん波の生成およびその伝播過程。

4.5 電子らせん波の軌道角運動量計測

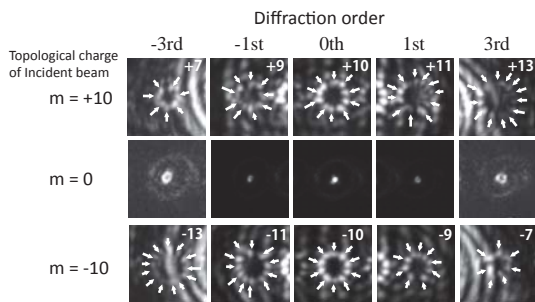
フォーク型回折格子に電子らせん波を入射し、フォーク型回折格子を通過した電子らせん波がどのように伝播するか、軌道角運動量がどのように移送されるかを観察した。

本研究課題で作製したスパイラルゾーンプレートをもちいて生成した $m=10$ および $m=-10$ の電子らせん波を $b=1$ のフォーク型回折格子に入射し、その伝播過程を観察した。



フォーク型回折格子による電子らせん波の回折実験の模式図。

$m=10$ のらせん波を入射した場合、透過波に $m=10$ のらせん波がみられ、1 次の回折波には $m=11$ 、-1 次の回折波には $m=9$ のらせん波がみられた。すなわち、 n 次の回折波に $m=10+n$ のらせん波がみられた。一方、 $m=-10$ のらせん波を入射した場合、透過波に $m=-10$ のらせん波がみられ、1 次の回折波には $m=-9$ 、-1 次の回折波には $m=-11$ のらせん波がみられた。すなわち、 n 次の回折波に $m=-10+n$ のらせん波がみることが判明した。すなわち、 $b=1$ のフォーク型回折格子は、 n 次の回折波の軌道角運動量を n だけ変化させることが判明した。



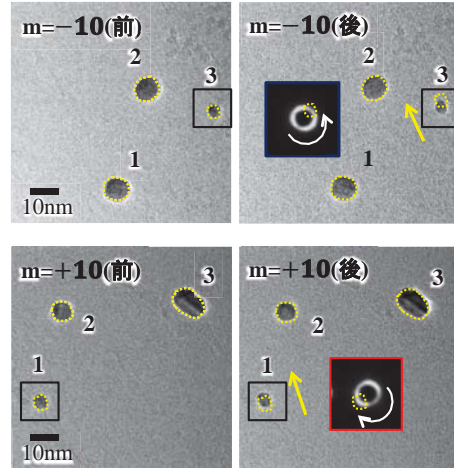
フォーク型回折格子による電子らせん波の回折実験。 $m=10$ の電子らせん波を入射した場合(上)。平面波を入射した場合(中)。 $m=-10$ の電子らせん波を入射した場合(下)。

4.6 電子らせん波によるナノ材料のマニピュレーション

試料には、電子顕微鏡内で安定に観察できること、基板や支持膜との相互作用が小さいこと、そして質量が小さいことなどの条件を検討し、以下の 4 つの試料を選択した。1) グラフェン上に分散した金ナノ粒子、2) シリコンナイトライド膜上に分散した白金パラジウムナノ粒子、3) 液体環境中に封入した金ナノ粒子、4) 酸化マグネシウム膜上に分散した W 原子を使用しました。電子線マスクには、バーガースペクトル 10、マスク直径 $20\mu\text{m}$ および(b)のバーガースペクトル 1、マスク直径 $5\mu\text{m}$ の回折格子をもちいた。これらの回折格子を透過電子顕微鏡の照射系統り位置に配置し、試料位置に電子らせん波を生成した。

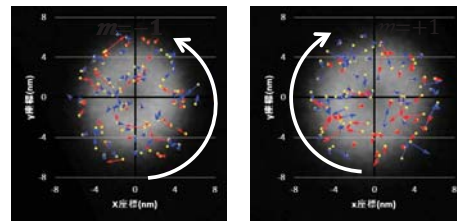
電子線照射前後でのナノ粒子の変位を極座標で表し、その方位角方向の変位 $r\Delta\theta$ についてのヒストグラムを得た。 $r\Delta\theta$ が正の場合は反時計回り、負の場合時計周りの方向へ変位したことに対応した。

下図は、グラフェン上に分散した金ナノ粒子に電子らせん波を照射した結果である。透過電子顕微鏡を加速電圧 200kV にて使用し、 $m=-10$ および $+10$ のビームを、それぞれ 300 秒間照射した。照射していない 1、2 は変位していないのに対し、3 が矢印方向に変位しているのがわかる。



電子らせん波の照射による金属微粒子のマニピュレーション実験。照射前後で微粒子の位置にわずかな変位が見られる。

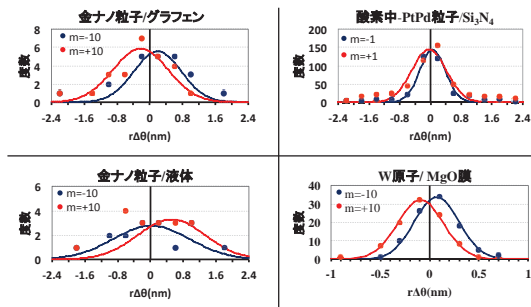
多数のナノ粒子に対して同様の照射実験を繰り返したところ、下図のような変位の分布を得た。変位の方向や大きさ等のばらつきは大きく、中にはほとんど変位しないナノ粒子も観察された。しかし、ヒストグラムは $m=-1$ で正側に、 $m=+1$ で負側にわずかに偏る傾向がみられた。



$m=10$ の場合(左)および $m=-10$ の電子らせん波を照射した場合の微粒子の変位の分布。矢印はその変位の向きと大きさを表し、矢印の位置は、金属微粒子照射時の電子らせん波中の位置を表す。

下図は、その他の 3 種類の試料についての結果も含めたヒストグラムである。グラフェン上の金ナノ粒子と酸素雰囲気における白金パラジウムナノ粒子は、先に示したようにらせん波の軌道角運動量に応じて変位方向に差がみられた。液体環境中の金ナノ粒子は $m=-10$ と $+10$ の両方のビーム照射によって反時計周りに変位する傾向を示し、照射ビームによる差はみられなかった。液体環境では、ビームを照射していないナノ粒子も変位する場合があります、このことから照射ビームに比べ液体がナノ粒子の変位に大きく影響し、乱雑に変位させた可能性が考えられる。W 原子では照射するらせん波の軌道角運動量に応じて、変位方向にわずかではあるが差がみら

れた。

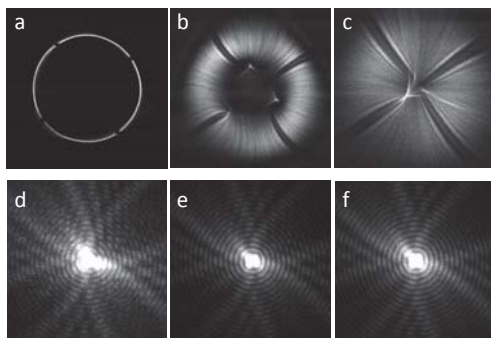


各試料における微粒子および単原子の方位角方向への変位のヒストグラム。

4.7 電子ベッセルビームの生成および自己修復性の観察

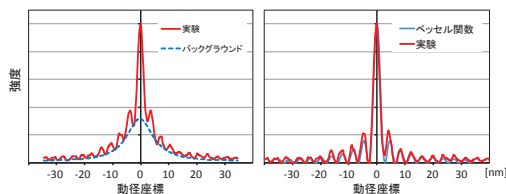
ベッセルビームを生成するため、円環状絞りをもちいる方法を利用した。円環絞りを作製するために、市販の膜厚 50nm のシリコンナイトライド膜の両面に PtPd を 200nm ずつアルゴンスパッタし、収束イオンビーム装置をもちいて、円環状の孔を掘削加工した。円環の直径は、5 μm および 10 μm とした。作製した円環絞りを透過型電子顕微鏡の照射レンズ系および試料室に導入した。

下図は円環絞りを収束レンズ絞りの位置に配置し、ビームの伝播過程を観察した実験結果である。



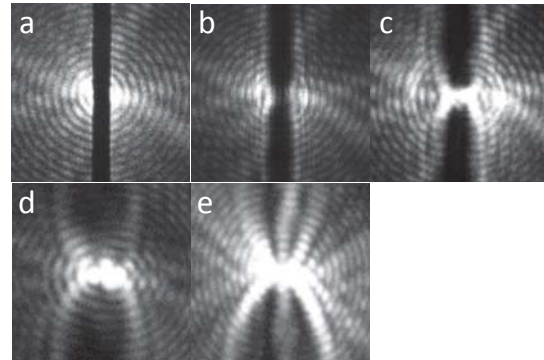
ベッセルビーム生成までの伝播過程。円環絞りを通過した電子が干渉し合いベッセルビームを形成する様子がみられる。

下図はビームの中央を横切る直線に沿った強度プロファイルである。バックグラウンドを除去した結果、ベッセル関数と極めて良い一致を示すことが確認できた。



生成したベッセルビームの自己修復性を確かめるために電子線の経路の途中に遮蔽物を設置し、ベッセルビームの欠落部分が再生

されるか確認した。下図は 0.6 μm のワイヤをベッセルビームの中心を横切るように設置し、ワイヤを過ぎ去った後の伝播過程を観察した結果である。ワイヤで欠落した部分が伝播にともない回復してくる様子が確認できる。



ベッセルビームの自己修復性。中心を横切る金属ワイヤにより欠落した部分が伝播にともない回復している様子がみられる。

4.8 1MeV の電子線をもちいた電子らせん波の生成

超高压電子顕微鏡により得られる 1MeV の電子ビームをもちいて電子らせん波の生成を試みた。ボルテックスビームの生成にはフォーク型回折格子をもちいた。使用した超高压電子顕微鏡の電子銃が LaB₆ をもちいた熱電子銃であるため、干渉性がそれほど良くないものの、エミッション量を抑えて干渉性を向上させればボルテックスビームを生成できることが判明した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 9 件)

K. Saitoh, Y. Hasegawa, N. Tanaka, and M. Uchida, "Production of electron vortex beams carrying large orbital angular momentum using spiral zone plates", Journal of Electron Microscopy, 61 (2012) 171-177..

Y. Hasegawa, K. Saitoh, N. Tanaka, S. Tanimura and M. Uchida, "Young's Interference Experiment with Electron Beams Carrying Orbital Angular Momentum", Journal of the Physical Society of Japan, 82 (2012) 33002.

Y. Hasegawa, K. Saitoh, N. Tanaka, and M. Uchida, "Propagation Dynamics of Electron Vortex Pairs", Journal of the Physical Society of Japan, 82 (2013) 073402.

K. Saitoh, Y. Hasegawa, K. Hirakawa, N. Tanaka, and M. Uchida, "Measuring the Orbital Angular Momentum of Electron Vortex Beams Using a Forked Grating", Physical Review Letters, 111 (2013) 074801.

[学会発表] (計 25 件)

K. Saitoh, Y. Hasegawa, K. Hirakawa, N. Tanaka and M. Uchida, "Production of electron vortex beams using fork-like gratings and spiral zone plates and their propagating properties", The 3rd International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations, 2012年05月09日~2012年05月10日, Gifu

M. Uchida, K. Saitoh, Y. Hasegawa, K. Hirakawa, N. Tanaka, "Propagation of electron vortices", Tonomura FIRST International Symposium on "Electron Microscopy and Gauge Fields", 2012年05月09日~2012年05月10日, Tokyo

M. Uchida, Y. Hasegawa, K. Saitoh and N. Tanaka, "Electron vortex pair produced with a nano-fabricated holographic grating", A Joint Meeting of the Asian Crystallographic Association, 2012年12月02日~2012年12月05日, Adelaide

齋藤晃、長谷川裕也、田中信夫、内田正哉、スパイラルゾーンプレートによる大きな軌道角運動量をもつ電子らせん波の生成、日本顕微鏡学会第68回学術講演会、2012年05月14日~2012年05月16日、つくば

長谷川裕也、齋藤晃、田中信夫、内田正哉、電子らせん波をもちいたヤングの干渉実験、日本顕微鏡学会第68回学術講演会、2012年05月14日~2012年05月16日、つくば

長谷川裕也、齋藤晃、田中信夫、内田正哉、2つの位相特異点を有する電子らせん波の生成、日本物理学会2012年秋季大会、2012年09月18日~2012年09月21日、横浜

齋藤晃、長谷川裕也、平川和馬、田中信夫、内田正哉、電子らせん波の生成および伝播特性の研究、日本顕微鏡学会超分解能電子顕微鏡分科会第8回研究会「vortexビームとその可能性」(招待講演)、2013年03月04日~2013年03月04日、東京

K. Saitoh, Production, propagation and interference of electron vortex beams, Microscopical Society of Canada, Annual Meeting 2013, 18-21 Jun. 2013, Victoria, Canada (Invited).

齋藤晃、長谷川裕也、田中信夫、内田正哉、2つの位相特異点をもつ電子らせん波の生成および伝播特性、日本顕微鏡学会第69回学術講演会、2013年5月20~22日、吹田

齋藤晃、長谷川裕也、平川和馬、田中信夫、内田正哉、フォーク型回折格子をもちいた電子らせん波の軌道角運動量計測、日本顕微鏡学会第69回学術講演会、2013年5月20~22日、吹田

齋藤晃、長谷川裕也、平川和馬、田中信夫、

内田正哉、軌道角運動量を持つ電子の発生と干渉、そして将来の応用、2013年ビーム物理研究会、ならびに若手の会、2013年11月28-30日、沖縄科学技術大学院大学

齋藤晃、長谷川裕也、田中信夫、内田正哉、2つの渦を含む電子ビームの伝播ダイナミックス、日本物理学会第69回年次大会、2014年3月27-30日、東海大学湘南キャンパス

平川和馬、齋藤晃、吉田健太、田中信夫、佐々木祐生、北浦良、篠原久典、電子らせん波の照射によるナノ粒子の挙動の研究、日本物理学会第69回年次大会、2014年3月27-30日、東海大学湘南キャンパス

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

○取得状況(計0件)

〔その他〕

研究成果に関するWebページ

電子の基本的な性質がまた明らかに —らせん状の波面をもつ電子の物理的性質の解明—

http://www.nagoya-u.ac.jp/about-nu/public-relations/researchinfo/upload_images/20130130_esi.pdf

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 晃 (SAITOH, Koh)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

研究者番号：50292280

(2) 研究分担者

田中 信夫 (TANAKA, Nobuo)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

研究者番号：40126876

吉田 健太 (YOSHIDA, Kenta)

名古屋大学・高等研究院(エコ)・特任助教

研究者番号：10581118

内田 正哉 (UCHIDA, Masaya)

埼玉工業大学・附置研究所・准教授

研究者番号：80462662

(3) 連携研究者

()

研究者番号：