

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：83906

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K22136

研究課題名（和文）光電場を可視化する電子顕微鏡法の開発

研究課題名（英文）Development of transmission electron microscopy to visualize optical field

研究代表者

山本 和生（Yamamoto, Kazuo）

一般財団法人ファインセラミックスセンター・その他部局等・主席研究員

研究者番号：80466292

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）：本研究の目的は、位相シフト電子線ホログラフィーを用いて、光の電場や、光と物質の相互作用を観察できる基本技術を開発することである。300 kV透過型電子顕微鏡に光を導入するための技術開発を行った。既存の特殊光導入試料ホルダーにキセノンランプを導入し、ZnOナノワイヤーやGaAs p-n接合の試料に光を照射しながら、ホログラフィー計測を行い、電位分布の変化を観察することに成功した。また、光の電場を観察するために、観察領域に光干渉をさせるための特殊光干渉試料ホルダーを設計・製作した。レーザーの出力が弱い場合、光干渉を確認することは困難であったが、今後に必要な課題を抽出することはできた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光は電場と磁場が直交する電磁波である。光の電場や磁場が、物質とどのように相互作用するかは不明な点が多く、その様子を直接的に実験で観察できる手法が確立すれば、光による反応現象を明らかにできる。本研究では、光照射電子線ホログラフィー技術を確立することによって、半導体による光起電力効果を可視化することに成功した。カーボンニュートラルの実現に必要な太陽電池などの高性能化に、この技術が寄与できると考えられる。また、光干渉現象の可視化を行うための技術開発も行った。多くの課題はあるものの今後の光を用いた物理の解明にも繋がると考えられる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to develop a basic technique to observe the electric field of light and the interaction between light and materials using phase-shifting electron holography. A 300-kV transmission electron microscope (TEM) was used to introduce the light. Using a xenon lamp and a special light-introducing sample holder, we successfully observed changes in the electric potential distribution of ZnO nanowires and GaAs p-n junctions by electron holography while irradiating the samples with light. In order to observe the electric field of light, a special light interference sample holder was designed and fabricated to generate light interference in the TEM observation area. Although it was difficult to confirm the interference due to the weak output of the laser, we were able to extract the necessary issues for the future.

研究分野：電子顕微鏡計測

キーワード：電子線ホログラフィー レーザー 光干渉 電場 半導体

1. 研究開始当初の背景

電子線ホログラフィーは、物質中や空間中に形成される電位分布を可視化できる透過型電子顕微鏡法 (Transmission Electron Microscopy: TEM) の一つである。これまで、半導体や電池などの電位分布が観察されてきたが、光の電場や光と物質の相互作用などの電位変化を観察することは困難であった。我々が独自に改良を重ねてきた位相シフト電子線ホログラフィーは、電子線ホログラフィー技術の中でも、より高い空間分解能と計測精度を誇る手法である。この手法を用いれば、光の電場や光と物質の相互作用を観察できる可能性があった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、位相シフト電子線ホログラフィーを用いて、光の電場や光と物質の相互作用を観察できる基本技術を開発することである。

3. 研究の方法

300 kV 透過型電子顕微鏡 (日立ハイテク HF3300-EH) の試料室に光を導入するための開発を行った。既存の特殊光導入試料ホルダーに、キセノンランプを導入する装置を結合させ、ZnO ナノワイヤーや GaAs p-n 接合の試料に光を照射しながら、位相シフト電子線ホログラフィー計測を行い、電位分布の観察を行った。また、光の電場を観察するためには、TEM の観察領域に光干渉をさせる必要があるため、光干渉をさせるための特殊試料ホルダーを設計・製作した。

4. 研究成果

4.1 光と物質との相互作用の観察

GaAs 半導体 p-n 接合の TEM 試料を集束イオンビーム加工装置 (Focused Ion Beam: FIB) で作製し、既存の特殊光導入試料ホルダーに固定した。図 1(a)に、試料ホルダー全体の外観図、図 1(b)に、試料ホルダー先端部の写真を示す。試料ホルダーの中に光ファイバーが通っており、導入したキセノンランプをドッキングさせるようにした。その結果、先端部に固定した TEM 試料に直接キセノンランプの光を照射しながら TEM 観察や電子線ホログラフィー観察が行える技術を確認した。図 2(a)-(d)に、光照射前後における p-n 接合付近の電位分布の変化を示す。光を照射することで、光起電力効果により p-n 接合の電位差が低下することが知られているが、図 2 に示すように、光照射強度を増加させるにしたがって、p-n 接合の電位差が低下していることがわかる。位相シフト電子線ホログラフィーは非常に高い電位検出感度があるため、世界で初めて光起電力効果を可視化することに成功した。この成果は、J. Appl. Phys. に掲載することができた。

この光照射観察技術を、ZnO ナノワイヤーにも応用した。その結果、ZnO ナノワイヤーの先端に電位の変化を観察することができた。しかし、キセノンランプは様々な波長を含むため、どの波長が影響を及ぼしているのかを解釈することが困難であった。この物理現象を解釈するためには、単一波長を持つレーザーもしくは波長を変更できる装置の導入が必要である。

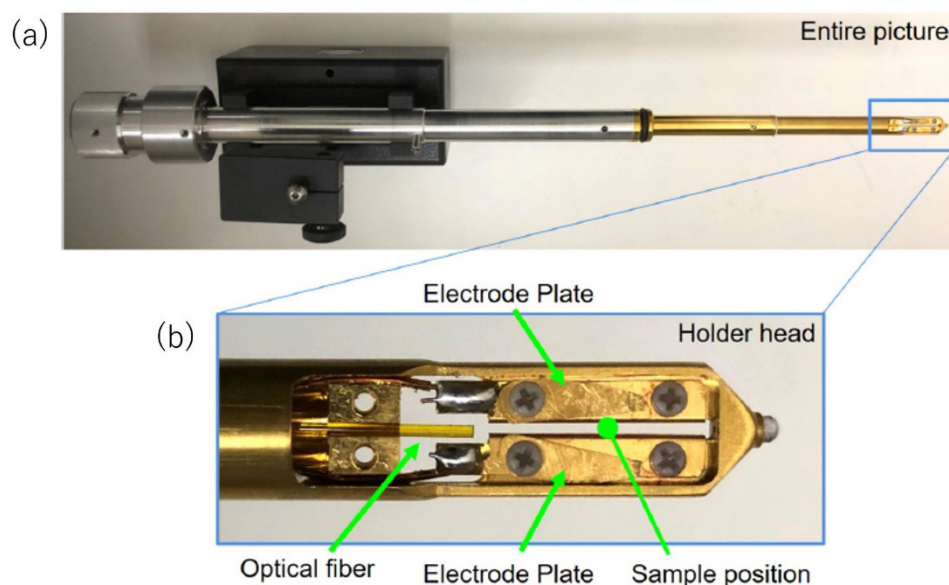


図 1 特殊光導入試料ホルダーの外観写真

光ファイバーを通して、キセノンランプを半導体試料に照射可能。

S. Anada et al., J. Appl. Phys. **128** (2020) 243101. より

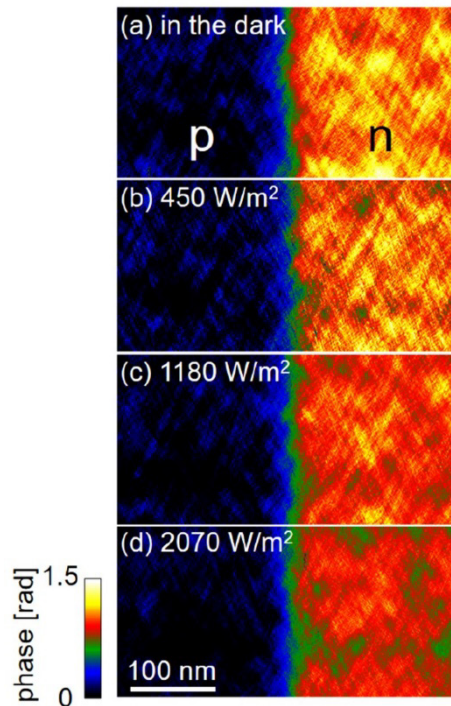


図2 光照射前後における GaAs p-n 接合の電位分布変化
 (a) 暗中, (b) 光照射強度: 450 W/m^2 , (c) 1180 W/m^2 , (d) 2070 W/m^2
 S. Anada et al., J. Appl. Phys. **128** (2020) 243101. より

4. 2 光干渉試料ホルダーの開発

光の電場を観察するためには、単一波長のレーザーを偏光させたまま試料ホルダーに導入し、さらに、試料ホルダー先端で光干渉させる必要がある。このチャレンジングな観察を行うための特殊光干渉試料ホルダーを設計・製作した。図3に、その試料ホルダーの外観図を示す。試料ホルダー内に波長 405 nm のレーザーを導入するための光ファイバーを導入した。レーザーを偏光させたまま試料ホルダー先端にガイドするためには、偏波保持用の光ファイバーを用いなければならない。その光ファイバー内で光が通るところは、直径 $3 \mu\text{m}$ であり、できるだけ出力が高いレーザーを用いなければならないことがわかった。さらに、レーザーを固定する $x-y-z$ ステージもサブミクロンで調整する必要がある。そのため、精密な位置決めが可能なレーザー入射システムも構築し、図3の光ファイバー終端に固定した。

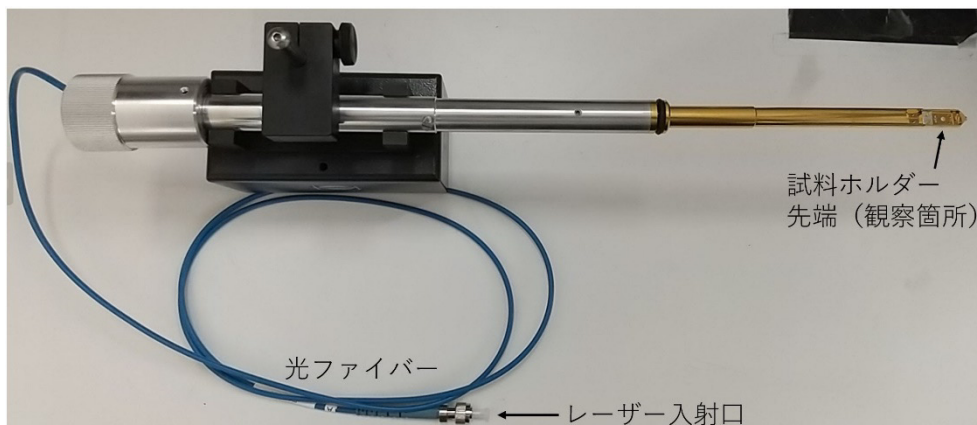
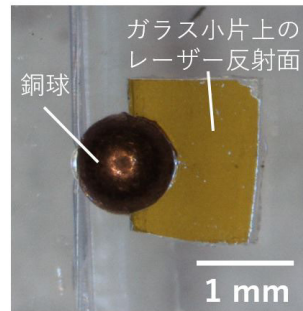


図3 特殊光干渉試料ホルダーの外観写真
 光ファイバーを通して、レーザー光を試料室に照射することが可能。

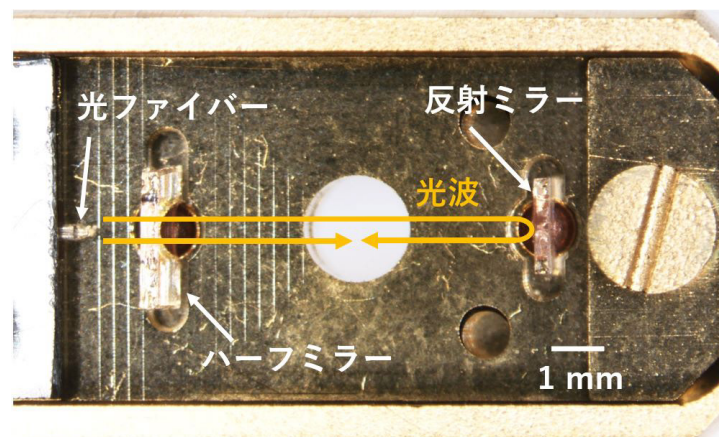
光を干渉させるための技術開発も行った。試料ホルダー先端は $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ 程度のスペースしかなく、その領域で、2波干渉と4波干渉をさせる光学系を作製する必要があった。レーザーを反射させる超小型のミラーの写真を図4(a)に示す。直径 1 mm の銅球に溝を作り、その溝に反射用のミラーを固定した。ハーフミラー用にも同様な形状にした。図4(b)は、2波干渉させるための光学系である。ハーフミラーと反射ミラーを図のように固定し、光ファイバーから射出したレーザーを観察領域(孔の部分)で干渉させるようにした。図4(c)は、4波干渉させるための光学系である。ハーフミラーと反射ミラーを図のように固定し、観察領域で干渉させるような設

計にした。光ファイバーからのレーザー光はなんとか目視で確認できたが、その光は極めて弱く、干渉している様子は観察できなかった。より出力の高いレーザー（導入したレーザーの10~100倍程度）が必要不可欠である。また、レーザーが通る光ファイバーの直径は $3\ \mu\text{m}$ であるため、ミラー類の位置決めもサブミクロンで行う必要がある。ピエゾなどの素子は大きすぎて、試料ホルダー先端にのせることは不可能であった。以上のように、光干渉させるためのホルダーを設計・製作したが、まだ多くの技術的な課題を克服する必要があることがわかった。

(a)



(b)



(c)

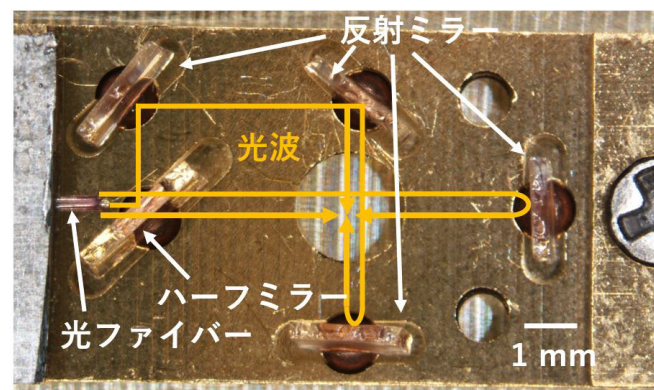


図4 特殊光干渉試料ホルダー先端部の写真

- (a) レーザーを反射するガラスを銅球に固定した写真、
- (b) 2光波を干渉させるための試料ホルダー先端形状、
- (c) 4光波を干渉させるための試料ホルダー先端形状。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sasaki Yusei, Yamamoto Kazuo, Anada Satoshi, Hirayama Tsukasa, Yoshimoto Noriyuki	4. 巻 14
2. 論文標題 Direct visualization of electric potential distribution in organic light emitting diode by phase-shifting electron holography	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 075007 ~ 075007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac07f1	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 -
1. 著者名 Yamamoto Kazuo, Anada Satoshi, Sato Takeshi, Yoshimoto Noriyuki, Hirayama Tsukasa	4. 巻 70
2. 論文標題 Phase-shifting electron holography for accurate measurement of potential distributions in organic and inorganic semiconductors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 24 ~ 38
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/jmicro/dfaa061	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Anada Satoshi, Hirayama Tsukasa, Sasaki Hirokazu, Yamamoto Kazuo	4. 巻 128
2. 論文標題 Direct visualization of the photovoltaic effect in a single-junction GaAs cell via in situ electron holography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 243101 ~ 243101
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0030728	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 -
1. 著者名 Sasaki Yusei, Yamamoto Kazuo, Anada Satoshi, Yoshimoto Noriyuki	4. 巻 in press
2. 論文標題 Low-dose measurement of electric potential distribution in organic light-emitting diode by phase-shifting electron holography with 3D tensor decomposition	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/jmicro/dfad019	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7件（うち招待講演 7件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 山本和生
2. 発表標題 電子線ホログラフィーII（応用編）
3. 学会等名 大阪大学社会人教育プログラム（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本和生
2. 発表標題 先端的透過型電子顕微鏡法による機能性材料の定量 / 動的評価
3. 学会等名 富士電機 技術セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本和生
2. 発表標題 最先端透過型電子顕微鏡法による機能性材料の電磁場直接観察
3. 学会等名 岩手大学 セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本和生
2. 発表標題 最先端透過型電子顕微鏡法による賢材の電磁場観察
3. 学会等名 賢材研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 穴田智史、平山司、佐々木宏和、山本和生
2. 発表標題 単接合型太陽電池の光起電力効果のその場観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第65回シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本和生
2. 発表標題 電子線ホログラフィーによる機能性材料の応用解析
3. 学会等名 大阪大学社会人教育プログラム(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山本和生、佐々木祐聖、穴田智史、野村優貴、平山司
2. 発表標題 JFCCにおける電子顕微鏡計測インフォマティクスの試み
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会(招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

ZnOナノワイヤー内部の光照射電子線ホログラフィー計測 https://www9.hitachi.co.jp/atomicsscale_pf/subject/

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	穴田 智史 (Anada Satoshi) (40772380)	一般財団法人ファインセラミックスセンター・その他部局 等・上級研究員 (83906)	

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