

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：13801

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760041

研究課題名(和文)電子線照射による発光の解析手法の開発

研究課題名(英文)Development of analysis method for light emission induced by electron irradiation

研究代表者

居波 渉(Inami, Wataru)

静岡大学・電子工学研究所・准教授

研究者番号：30542815

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：電子線を蛍光薄膜に照射した際に、蛍光薄膜内部及びその周囲に形成される電磁場分布を解析するためのシミュレーション法を開発した。入射電子線の蛍光薄膜内での散乱解析にはモンテカルロ法を、励起された光の伝搬解析はFDTD法を用いた。開発した計算手法を用いて、極薄の蛍光薄膜に電子線を照射すると、光の回折限界以下の光ナノスポットを生成可能であることが分かった。解析の結果、入射電子の加速電圧が高く、蛍光薄膜が薄いと生成される光スポットが小さくなることが分かった。しかし、加速電圧が高いと光強度は低下する。必要な光スポットサイズとその光強度から蛍光薄膜の厚みと入射電子の加速電圧を決める必要がある。

研究成果の概要(英文)：We developed the simulation method for an electromagnetic field distribution in and around a subwavelength fluorescent film irradiated by an electron beam. The propagation and scattering of the light excited with the electrons was calculated by finite-difference time-domain(FDTD) method. The electron scattering and trajectories were calculated by Monte Carlo simulation. We found that a nanometric light spot beyond diffraction limit was formed on the fluorescent film surface when a focused electron beam irradiated to the fluorescent film. From the simulation results, the spot size is decreased with increasing the acceleration voltage of the incident electron beam, but the intensity of the spot is decreased. The spot size and its intensity are in the relationship of trade-off, and depend on the thickness of the fluorescent film and the acceleration voltage of the incident electron beam.

研究分野：応用光学・量子光光学

キーワード：カソードルミネッセンス FDTD法 モンテカルロ法 ナノ光スポット 蛍光薄膜

1. 研究開始当初の背景

ナノメートルサイズの光源は、近接場光学顕微鏡に利用されている。また、化学・バイオセンサー、リソグラフィ、光メモリや光回路など多岐にわたりナノ光源の応用研究が行われている。このナノ光源は、先端を先鋭化した金属針や光ファイバーを用いて発生する。ファイバー先端形状を工夫することで、高スループットかつ高強度のナノ光源を実現できる。これまで、集束電子線を利用したナノ光源の発生に関する研究やその特性の解析は、ほとんど行われてこなかった。

本解析法は、電子線励起レーザーの高効率化やカソードルミネッセンス法の定量解析の精度向上に寄与する。さらに、放射線のシンチレータスクリーンの高感度化、高解像度にも応用できる。光・電子融合ナノ集積回路や金属中のプラズモンの伝搬の解析にも有効である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、収束した電子線照射による極薄蛍光薄膜からの発光分布やその強度の解析である。解析には、モンテカルロ法とFDTD(Finite Difference Time Domain)法を組み合わせた新しい計算方法を開発する。薄膜中の電子線の散乱軌道は、モンテカルロ法で求める。その軌道上で、電気双極子による光放射を考え、その伝搬をFDTD法で求める。電子線は、数ナノメートルに収束できるため、ナノメートルサイズの光源を励起することができる。

3. 研究の方法

モンテカルロ法とFDTD法を組み合わせた解析プログラムを開発する。これにより、電子線照射による励起によって、蛍光薄膜内外に形成される光強度分布が分かる。開発したプログラムを用いて、電子線励起光ナノスポットのスポットサイズやその光強度などの特性を評価する。また、実際に実験を行い、開発したシミュレーションの結果と比較し、精度について検討する。

4. 研究成果

(1)モンテカルロ法とFDTD法を組み合わせたプログラムの開発

蛍光体薄膜に電子線を照射して、蛍光を励起したときの電子線散乱と光散乱を解析するためのプログラムを開発した。電子線散乱にはモンテカルロ法を、光散乱にはFDTD法(Finite Difference Time Domain method:有限差分時間領域法)を用いた。電子線は、蛍光薄膜の上方より入射する。そして、蛍光薄膜内で散乱する。この電子線の散乱軌道は、モンテカルロ法により計算する。電子線が蛍光体薄膜と衝突することで、電気双極子が励起されるとする。電気双極子の位置は、電子の散乱点から散乱点の中点とした。電気双極子の強度は、散乱点間を伝搬する間の電子の

エネルギー損失量により決定する。その電気双極子による電場分布は、FDTD法で計算する。電子1つにより形成される光電場分布は、それぞれの電気双極子が形成する電場分布を強度で足し合わせることで求めることができる。電子は、そのエネルギーがなくなるまで散乱を繰り返す。

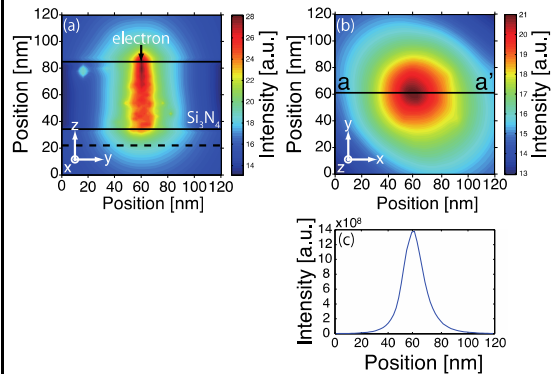


図1 窒化シリコン薄膜に電子線を照射したときに形成される光強度分布の計算結果

図1に計算結果を示す。窒化シリコン薄膜に加速電圧5kVの電子線を照射した。図1(a)に、電子線照射による発光で形成された光強度分布のy-z平面を示す。電子線は、上から入射した。これより、光の強度は、電子線入射の直後から徐々に下がっていくことが分かる。光強度分布の面内方向の幅は、深さ位置にほとんど依存しないことが分かる。図1(b)に、蛍光体薄膜下部から10nm離れた位置での光強度分布のx-y断面を示す。これより、円形の光スポットが形成されていることが分かる。これは、電子線の散乱は等方的に起こるためである。次に図1(c)に図1(b)のa-a'部分の光強度プロファイルを示す。これより、形成された光スポットの半値全幅は、26.4nmであることが分かった。電子線を蛍光薄膜に照射することで、光の回折限界以下の光スポットが発生することが分かった。

(2)電子線励起光ナノスポットの特性

図2に形成された光ナノスポットの半値全幅

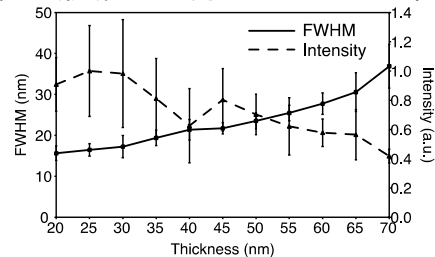


図2 光ナノスポットのサイズ及びその光強度と窒化シリコン薄膜の関係

とそのピーク強度と蛍光薄膜の膜厚依存性を示す。入射電子の加速電圧は5kVである。図2より、蛍光体薄膜の厚さが大きくなると、形成される光ナノスポットのサイズが大きくなる。これは、膜厚が大きくなると、電子線の散乱が大きくなる。そうす

ると、生成される電気双極子が面内に広がってしまう。そのため、形成される光ナノスポットのサイズが大きくなる。また、膜厚が大きくなると、光スポットの強度は低くなっていることが分かる。膜厚が大きくなると、電子線は蛍光薄膜中ですべてのエネルギーを失い、蛍光薄膜裏面まで伝搬しなくなる。また、蛍光薄膜の上部で発生した光は、蛍光薄膜の裏面まで伝搬すると、広がってしまう。そのため、蛍光薄膜の上部で発生した光は、光スポットの形成にはあまり寄与しない。蛍光薄膜の裏面近傍で発生した光が、光スポットの形成において支配的になる。したがって、蛍光薄膜の膜厚が大きくなると、蛍光体薄膜裏面近傍での発光量が少なくなり、光スポットのピーク強度は低くなる。また、蛍光薄膜の膜厚が大きいと、電子の散乱が大きい。したがって、励起される電気双極子が広がってしまい、光スポットのピーク強度は弱くなる。

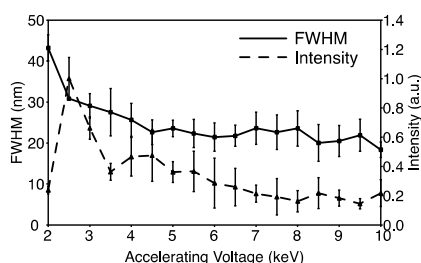


図 3 光ナノスポットのサイズ及びその光強度と入射電子の加速電圧の関係

図 3 に形成された光ナノスポットの半値全幅とそのピーク強度と入射電子の加速電圧依存性を示す。窒化シリコンの膜厚は 50nm である。加速電圧が高くなると、光ナノスポットの半値全幅は、徐々に減少していくことが分かる。これは、入射電子線の加速電圧が高くなると、薄膜内での電子線の散乱が減少するからである。また、光強度は、入射電子の加速電圧 2kV から 2.5kV で高くなり、その後、減少していく。入射電子の加速電圧が低いと、電子は蛍光薄膜の裏面に達せず、蛍光薄膜内で止まる。そのため、光強度は低くなる。入射電子の加速電圧が高くなると、光の励起効率が悪くなり、光強度は低くなる。

(3) シミュレーションと実験結果の比較

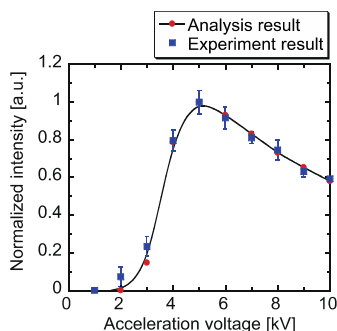


図 4 シミュレーションと実験結果の比較

図 4 にシミュレーションと実験結果の比較

を示す。実際に、蛍光薄膜に電子を照射し、発光強度を取得した。入射電子の加速電圧を 1kV から 10kV まで変えた。これより、シミュレーション結果と実験結果は、良い一致を示した。本シミュレーションは、十分な精度を有していることが分かった。

(4) まとめ

電子線励起によるナノ光源の発生のためのシミュレーション法を開発した。電子線の散乱にはモンテカルロ法を、光散乱には FDTD 法を用いた。開発した計算手法を用いて、極薄の蛍光薄膜に電子線を照射することで、光ナノスポットを生成可能であることが分かった。また、電子線励起光ナノスポットの特性を解析した。その結果、入射電子の加速電圧が高く、蛍光薄膜が薄いと生成される光スポットが小さくなることが分かった。しかし、加速電圧が高いと光強度は低下してしまう。必要な光スポットサイズとその光強度から蛍光薄膜の厚みと入射電子の加速電圧を決める必要があることが分かった。

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 5 件)

1. Wataru Inami, Masahiro Fukuta, Yuriko Masuda, Yasunori Nawa, Atsushi Ono, Sheng Lin, Yoshimasa Kawata, Susumu Terakawa, "A plastic scintillator film for an electron beam-excitation assisted optical microscope", *Optical Review*, 査読あり, Vol. 22, No. 2, pp. 354-358, (2015)
2. 古川 太一, 金森 聡, 福田 真大, 名和 靖矩, 小南 裕子, 中西 洋一郎, 杉田 篤史, 居波 涉, 川田 善正, "電子線励起アシスト光学顕微鏡のためのナノ光源の開発", 査読あり, *レーザー研究*, Vol. 43, No. 3, pp. 164-168, (2015).
3. Atsushi Sugita, Masashi Kamiya, Chiyu Morita, Aki Miyake, Yasunori Nawa, Yuriko Masuda, Wataru Inami, Hiroko Kominami, Yoichiro Nakanishi, Yoshimasa Kawata, "Nanometric light spots of cathode luminescence in $Y_2O_3:Eu^{3+}$ phosphor thin films excited by focused electron beams as ultra-small illumination source for high-resolution optical microscope", 査読あり, *Optical Materials Express*, Vol. 4, No. 1, pp. 155-161, (2014)
4. Akito Chiba, Shinnosuke Tanaka, Wataru Inami, Atsushi Sugita, Kazumasa Takada, Yoshimasa Kawata, "Amorphous silicon nitride thin films implanted with cerium ions for cathodoluminescent light source", 査読あり, *Optical*

Materials, Vol. 35, No. 11, pp. 1887-1889, (2013)

5. Wataru Inami, Jun Fujiwara, Fukuta Masahiro, Atsushi Ono, Yoshimasa Kawata, "Analysis of electron and light scattering in a fluorescent thin film by combination of Monte Carlo simulation and finite-difference time-domain method", 査読あり, Applied Physics Letters, Vol. 101, No. 15, pp. 151104-151107, (2012)

〔学会発表〕(計 22 件)

1. Wataru Inami, Yasunori Nawa, Yoshimasa Kawata, "High spatial resolution imaging of fluorescent Nanodiamonds using direct electron-beam assisted microscope", 5th International Conference on Photonics 2014, 2014/9/2, Kuala Lumpur (Malaysia)
2. 居波 涉, 名和靖矩, 福田真大, 古川太一, 川田善正, "高分解能光学顕微鏡によるバイオイメージング", 環境微生物系学会合同大会 2014, 2014/10/22, アクトシティコンgresセンター (静岡県)
3. 福田 真大, 名和靖矩, 居波 涉, 小野篤史, 川田 善正, "電子線透過防止蛍光膜を利用した EXA 顕微鏡による細胞の低ダメージ高分解能観察", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014/3/17, 青山学院大学 相模原キャンパス (神奈川県)
4. Wataru Inami, Yoshimasa Kawata, "Subdiffraction Resolution Imaging with Electron-Beam Assisted Optical Microscope", The 15th Takayanagi Kenjiro Memorial Symposium, 2013/11/13, 静岡大学 (静岡県)
5. 福田 真大, 居波 涉, 小野 篤史, 川田 善正, "Y₂O₃:Eu³⁺蛍光薄膜からのカソードルミネッセンスの発光解析評価", 第 74 回秋季応用物理学会, 2013/9/18, 同志社大学 (京都府)
6. Wataru Inami, Yasunori Nawa, Yoshimasa Kawata, Susumu Terakawa, "Nanoimaging by Electron-Beam Assisted Optical Microscope", INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON OPTICAL MEMORY 2013, 2013/8/20 Incheon (Korea)
7. 居波 涉, 福田真大, 小野篤史, 川田善正, "電子線照射による蛍光薄膜からの発光", 日本光学会年次学術講演会, 2012/10/25, タワーホール船堀 (東京都)
8. Wataru Inami, Yasunori Nawa, Yoshimasa Kawata, "High Spatial Resolution Time Lapse Imaging by Electron Beam Excitation ", 2012 RCAS-TNNA Symposium on Recent Development in Nanomaterials: Structures, Dynamics and Applications, 2012/10/5, Taipei (Taiwan)
9. Masahiro Fukuta, Wataru Inami, Atsushi.

Ono, Yoshimasa Kawata, "The Numerical Analysis of Intensity Distribution of Light Excited by Electron Beam in a Luminescent Film", 12th International Conference on Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques, 2012/9/3, Donostia-San Sebastian (Spain)

10. Wataru Inami, Yasunori Nawa, Atsushi Ono, Sheng Lin, Atsushi Miyakawa, Yoshimasa Kawata, Susumu Terakawa, "Live Cell Nanoimaging By Direct Excitation Of Focused Electron Beam", 14th International Congress of Histochemistry and Cytochemistry, 2012/8/29, 国立京都国際会館 (京都府)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称 : 光源生成薄膜、微小光源励起装置、光学顕微鏡および光源生成薄膜の製造方法

発明者 : 川田善正、居波涉、小野篤史、福田真大、名和靖矩

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年月日 : 2014 年 9 月 2 日

国内外の別 : 国内

取得状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年月日 :

取得年月日 :

国内外の別 :

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

居波 涉 (INAMI WATARU)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号 : 30542815