

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H00847

研究課題名（和文）THz波共鳴型電子波パルス圧縮を用いたフェムト秒走査電子顕微鏡可視化技術の創出

研究課題名（英文）Research of Electron pulse compression with THz resonator and development for femtosecond visualizing technique using scanning electron microscopy

研究代表者

藤田 淳一（Fujita, Jun-ichi）

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：10361320

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 36,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、フェムト秒レーザー励起型の超高速走査型電子顕微鏡光学系を構築し電子線プローブ型超高速可視化を実証した。フェムト秒レーザーからBBO結晶を介して得られる3倍高調波（343nm）をZrOの電子銃先端に照射することで、平均電子線量として数pAが得られ、走査電子顕微鏡による実画像を得ることができた。放出される電子線パルスは電子銃から50cm下流での試料面に到達する間に空間電界効果で260ピコ秒程度に広がる。電気的パルス同期法を用いて、くし形電極に印したパルス電位に応答したポテンシャル変化をナノ秒レベルの時間分解で可視化SEM像として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

本研究の結果、市販汎用SEMの簡易な改良によって、フェムト秒レーザーで励起される超短電子パルス波を用いた走査電子顕微鏡が実現できることが実証できた。この装置系を用いることで、SEMだからこそ観測しうる超高速動作のMEMSスイッチング素子の動作形態の観察、実空間における電荷やプラズモン伝搬の時間発展観測が可能となった。関連する物理計測、化学反応解析など多くの学術分野で幅広く利用され得る科学基盤技術になると期待される。

研究成果の概要（英文）：We constructed femtosecond laser-excited ultrafast scanning electron microscope system and demonstrated the ultrafast visualization of transient phenomenon. By irradiating the tip of the ZrO electron gun with the 3rd harmonic (343nm) obtained from the femtosecond laser via the BBO crystal, a few pA can be obtained as the average electron dose. The emitted electron beam pulse spreads to about 260 picoseconds due to the spatial electric field effect while reaching the sample surface 50 cm downstream from the electron gun. Using the electrical pulse synchronization method, we succeeded in capturing the potential change in response to the pulse potential applied to the comb-shaped electrode as a time evolution SEM image at the nanosecond level resolution.

研究分野：材料物性、量子ビーム

キーワード：フェムト秒レーザー 走査電子顕微鏡 電子パルス波 超高速可視化 THz波 時間分解 ポテンシャル変化

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

今日、フェムト秒レーザーの普及により、様々な物理現象、化学反応現象の時間発展をフェムト秒で時間分解して記録解析することができるようになってきた。超高速の実空間可視化では、超高压(1~3MeV)の透過電子顕微鏡(TEM)によるフェムト秒電子パルスを用いた可視化が実現して世界をリードしている。高压電子線は材料中を通過して、その原子の挙動を調べるには大変に都合が良いが、数ナノ~数ミクロンのより大きなスケールでの超高速変化の可視化撮影には向かない。より大きな実空間スケールでの超高速現象、例えば、超高速なマイクロ電気機械システム(MEMS)スイッチ動作、プラズモン伝搬の実空間時間発展の可視化、触媒表面での電荷移動など、よりマクロなスケールでの超高速現象可視化の需要も非常に大きく、その実現が切望されている。これらの応用に対しては試料室の自由度の観点から走査電子顕微鏡(SEM)での超高速可視化技術が有望である。本研究では市販の汎用SEMの簡単な改造で、フェムト秒レーザー励起による電子パルス波を生成し、超高速可視化が可能であることを実証することとした。しかし、30KeV程度の電子線エネルギーで駆動する汎用SEMでは、低加速電子線特有の空間電荷効果、つまりパルス内に閉じ込められた電子同士のクーロン反発力によるパルス幅の広がりが問題となっていた。そこで本研究では、この低加速電子線パルスのビーム広がりを、テラヘルツ(THz)波プラズモン共鳴を応用した超高速ビームブランキングでカットしさらにパルス圧縮を行えば、低加速走査型電子顕微鏡においても超高速現象の撮影が可能になるのではないかと発想した。

2. 研究の目的

第一の目的は低加速走査電子顕微鏡をフェムト秒電子パルスで駆動する走査電子顕微鏡光学系を構築することである。また、THz波プラズモンによる空洞共振器を用いて、一度空間電荷効果で広がった電子パルス波を再圧縮する技術についても開発を行う。本提案によるフェムト秒低加速走査電子顕微鏡が実現した暁には、SEMだからこそ観測しうる超高速動作のMEMSスイッチング素子や電子デバイスの動作形態の観察、実空間における電荷やプラズモン伝搬の時間発展観測が可能となる。これらの新しい工学技術分野の開拓とともに、関連する物理計測、化学反応解析など多くの学術分野で幅広く利用されうる基盤技術を創出する。

3. 研究の方法

本研究では、フェムト秒レーザー励起によって生成された高速パルス電子線を用いた超高速走査型電子顕微鏡光学系の開発を目的に、次のような(a)~(d)の項目について研究を実施した。本研究では、第一段階として、(a)汎用SEM(JSM-7200)を改造して、レーザー励起型の電子パルス波エミッションを実現させた。筐体コンデンサーレンズ下部からミラーによって集束レーザーを跳ね上げ、エミッタチップ先端に集光させて、パルス光電子を発生させる電子光学系を構築した。次に、(b)フェムト秒レーザー励起によって生成した電子パルス波をプローブとし、パルス電子に同期した電氣的パルス電位をポンプとしたポンプ・プローブ法を用いて、電極ポテンシャル変化の可視化を行った。さらに、(c)電子パルス波励起レーザーを分岐して試料への光ポンピングを行い、ピコ秒時間分解の表面キャリア拡散状態の超高速可視化を行った。平行して、(d)電子パルス波に対して、パタフライ型オリフィスへのTHz波照射によって得られる局在電界パルスを用いた電子パルス波圧縮にむけて研究を進めた。

4. 研究成果

図1にフェムト秒レーザーによる鉛直照射型の光学系と、SEM内電子光学系を示す。波長1030nm、パルス幅290フェムト秒のパルスレーザー(PHAROS, Light Conversion社)を光源として使い、BBO結晶で3倍波の343nm(3.6eV)を生成して、100kHzのパルス周期で電子顕微鏡筐体に導入した。SEMの対物レンズ直上の中間カラムに設置した導入窓からレーザーを入射し、電子線軸上に設置した電子線通過穴付き45°ミラーによって、電子線と同軸の鉛直下方からの電子光学パスを利用して電子銃エミッタ先端に照射した。この時エミッタチップ上におけるフルエンスは14mJ/cm²であり、平均電流1pA程度のパルス電子線が得られた。

図2に二次電子検出器からの信号時間波形を示す。図2(a)において、二次電子信号はレーザーの周期と同期して10マイクロ秒周期のパルス成分を有している。パルス部分を拡大した波形を図2(b)に示す。二つの急峻なピーク成分とそれに重なる一つのブロードなピーク成分を有していることがわかる。SEMの時間分解動作にはパルスが二次電子由来である必要がある。ここで、最初のピーク成分はSEM内部に入射した343nmのレーザーが打ち上げミラーや、鏡筒内での散乱光が二次電子検出器に侵入してシンチレータを蛍光発光させて生じたものである。散乱光に起因する信号は二次電子検出器のスループットを反映したシャープなパルスを形成するのに対し、二次電子の信号は飛行時間に対応したパルス幅の広がりによってブロードな信号で観測される。また、5keVの一次電子パルスは試料表面に到達後すぐに5keV反射電子を発生させ80mm離れた検出器に1.6ナノ秒程度の遅延で到達する。その間に試料表面からは2~3eVの二次電子が発生し、50ns程度遅れて検出器に到達していることが分かった。

適切な電子銃状態を設定して電子パルスが発生させ、電位反復現象の位相分解静止画像を図3(a)~(d)のように得ることができた。このとき1パルス当たりには約300個の電子が含まれていると見積もられる。発生した100 kHz周期の電子パルス波に同期させた100 kHzの交流電圧をくし形電極に印加し、くし形電極像の電位コントラスト振動の様子を静止位相画像として取得した。一画像の取得にかかる時間は100フレーム積算の合計107秒であり、スキャン画像の解像度は1280×960ピクセルであるから、1ピクセル当たり246個の電子で位相分解静止画像が取得できたことになる。

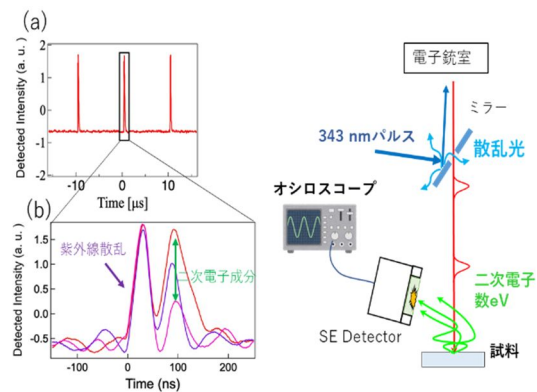
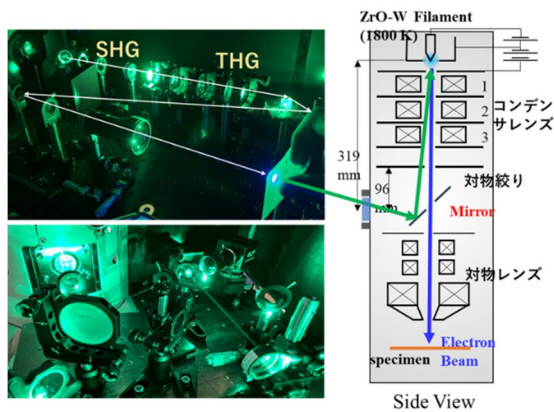


図1 フェムト秒レーザー光学系

図2 検出される2次電子信号波形

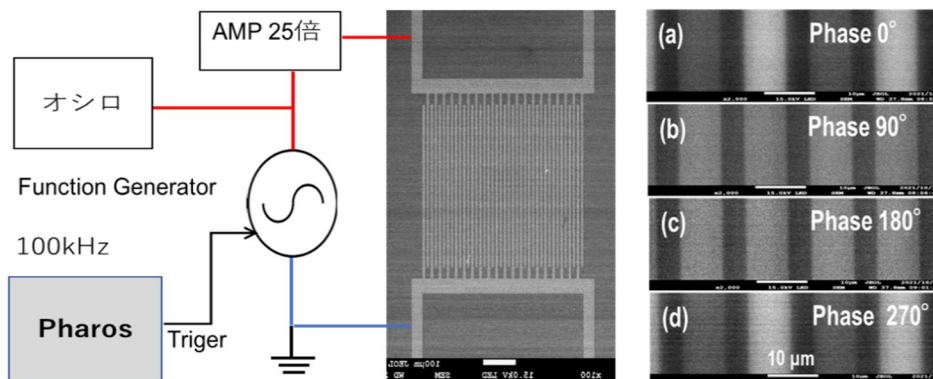


図3 電氣的同期法による高速ポ電位変位可視化

次に、レーザーパルスに電氣的に同期させたパルスジェネレータから20ナノ秒のパルス電位をくし形電極に印加することで、くし形電極の小さな静電容量を反映したポテンシャル電位の減衰過程をSEM画像としての可視化が可能であることを実証した。その実験系と実際のSEM画像、ならびに、時間依存のポテンシャル変化の様子を図4に示す。くし形電極下部はグラウンドに接地されており、上部電極に+5 Vのパルス電位を与えている。5 keVの電子線の鏡筒内走行時間は、おおよそ30ナノ秒である。レーザーパルスに対して電氣的な遅延を与えて、くし形電極に+5 Vの電位パルス20ナノ秒印加している。電子線が+5 Vの電位状態にあるときは、上部くし形電極からの2次電子放出が抑制されるために、SEM像として黒いコントラスト像へと変化する。プローブ電子線照射タイミングが20ナノ秒のパルス電位幅を超えて照射された場合、上部電極電位はゼロとなっているはずである。しかし、図4(b)の60ナノ秒後、さらに180ナノ秒後のSEM画像もわずかに黒のコントラストが残っていることがわかる。これら遅延時間に依存した上部電極のコントラスト変化を示したのが図4(c)である。一連の画像に対して電極部位の輝度情報を平均化し、FFTフィルタリング処理後の電極輝度の時間変化を図4(d)に示す。図のように上部電極のコントラスト像は、約110ナノ秒の時定数を持って減衰しており、これはくし形電極の静電容量にほぼ一致する。つまり、電子回路のローカルな電位パルス応答がナノ秒レベルで可視化できることが判明した。

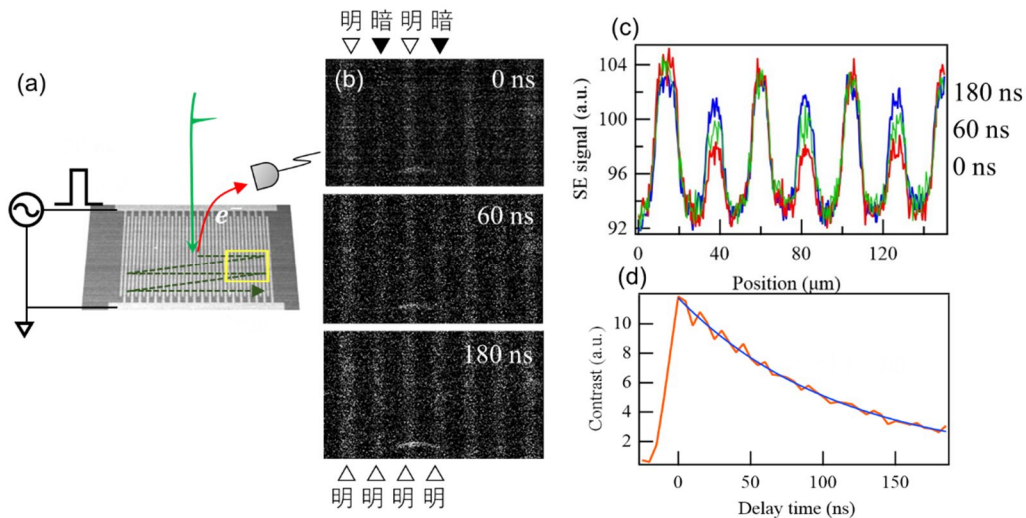


図4 くし形電極のポテンシャル電位減衰過程可視化

フェムト秒レーザーを分岐して光学的な試料へのポンプ系を構成し、電子パルス波をプローブとする高速可視化技術を組み合わせれば、より超高速現象の可視化が可能となる。その概念を図5に示す。光学時間遅延回路は、二段構成のディレイステージ構成とした。一段目は1200ピコ秒、二段目は2000ピコ秒の可動範囲があり、全体で3200ピコ秒の遅延時間範囲を掃引することが可能である。また、ここでは遅延時間を短くするために15kVの電子線を用いている。この場合には、電子線速度は光速の10%程度で、本装置の電子線走行時間は10ナノ秒程度と見積もられ、ポンプ光に対しても、おおよそ10ナノ秒の走行遅延時間を設けている。

このような光学遅延回路で構成した光ポンプ・プローブ系を用い、半導体表面でのキャリア拡散の計測を試みた。ここで、用いた試料はGeでバンドギャップは0.67eV、キャリア寿命はマイクロ秒のオーダーと知られている。一次電子線を試料の一点に照射し、プローブ電子線の到達するタイミング、つまり時間原点の探索を実施した。二次電子検出器が散乱光やポンプ光にも感度があることから、S/N比を向上させるために二次電子の信号を時間フィルタリングして、ロックイン計測を行った結果を図6に示す。

二段目のディレイステージを500ピコ秒ずつずらして、時間分解測定をすると、3200ピコ秒にわたる時間分解スペクトルが得られた。この計測によりGeキャリアの時間原点を特定できたものの、スペクトルの波形から想定される表面キャリアの緩和時間は、Geのキャリア寿命、数マイクロ秒よりもかなり短く、この260ピコ秒の時間依存信号が電子線パルスの幅を示している。今回はポンプ光のフルエンスとして8mJ/cm²と非常に強い光を照射しており、キャリアが高密度に励起されたことによる、キャリア同士の再結合や2キャリア励起が起こっている可能性がある。また、SEMの二次電子の発生範囲は厚さ数十nm程度であるから、最表面の状態が内部の状態と大きく異なり、より高速な拡散を見ている可能性もある。

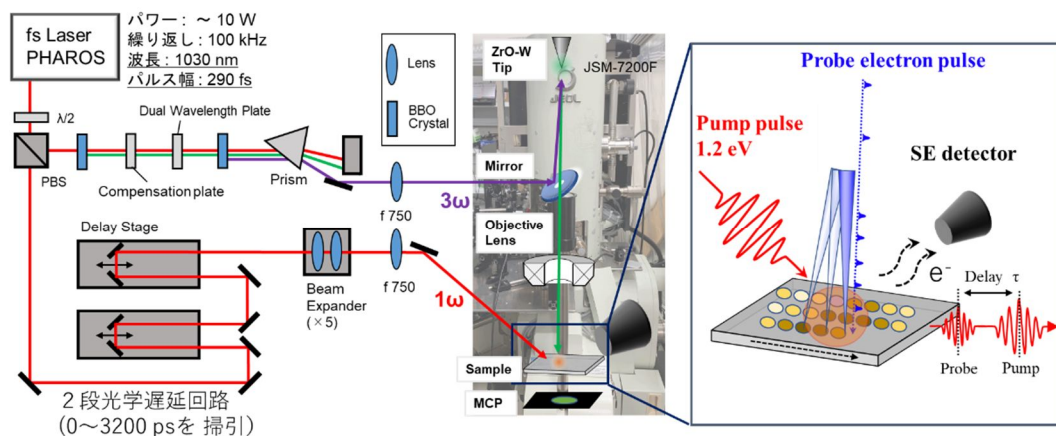


図5 光学的遅延回路を用いたポンプ・プローブ法超高速可視化

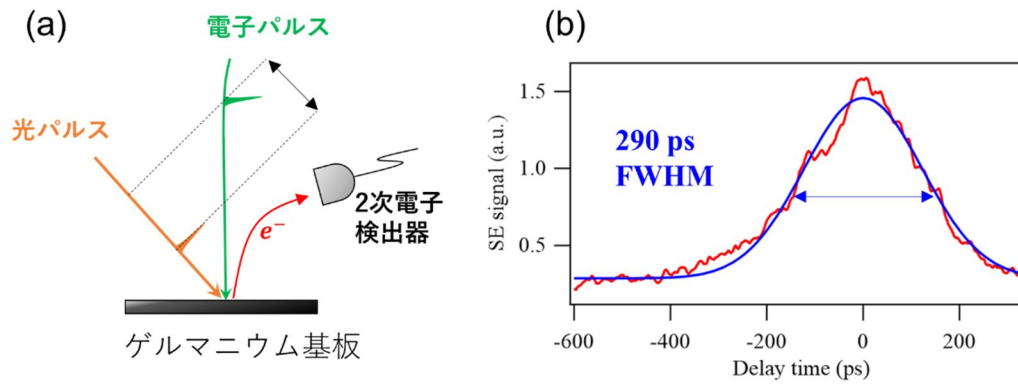


図6 時間原点の探索と、くし形電極電位的高速応答特性

また、THz 波による電子パルス波圧縮についても研究を進めた。図7 (a)に示すようなバタフライ型オリフィスに 2 THz のテラヘルツ波を照射し、このテラヘルツ波に同期させた 35 keV の電子パルス波を通過させた結果、(b)に示すようにバタフライオリフィスに形成される THz 電場により電子パルス波が強い偏向を受け振動する様子を観測することができた。つまり、テラヘルツ波による電子線偏向とパルス波圧縮が可能であることが実験的に判明した。

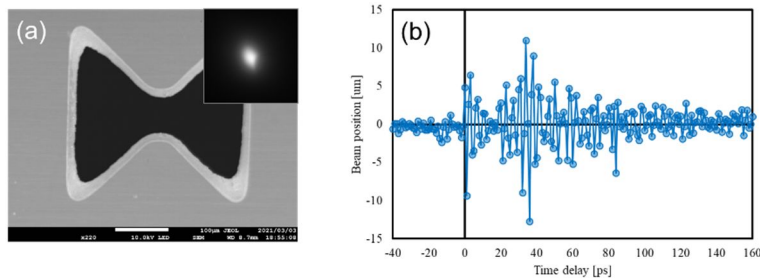


図7 バタフライオリフィスと通過電子パルス波の偏向

本研究により、汎用 SEM (JEM7200)の比較的簡易な改良により、超高速パルス電子波走査型電子顕微鏡として運用できることが証明された。平均的な SEM の電子加速エネルギーはおおよそ 15 keV 程度である。この場合、電子銃から試料への距離はせいぜい 50 cm である。その間の電子飛行時間が 10 ナノ秒程度、さらにこの間の空間電荷効果による電子パルス波の広がり数は数 10 ピコ秒に達することが実験的に示され、数十ピコ秒レベルで高速現象の可視化が可能であることを実証できた。フェムト秒レーザーを用いた全光学的ポンプ・プローブ法によるフェムト秒超高速検出からすると、まだまだその時間分解性能には課題がのこるものの、汎用 SEM による 2 次元的な現象の過渡過程の可視化が可能であり、電子回路のポテンシャル変化など、極めて汎用性の高い高速現象可視化が実証できた。SEM の試料室内での取り回しの自由度は高く、NEMS の機械的挙動や生物・化学反応の可視化も十分に可能である。さらに、THz 波照射による電子パルス偏向も実験的に観測できた。現時点ではまだパルス圧縮効果を証明できていないものの、海外での THz 波圧縮も報告されている。原理的に可能な技術であり、低加速電子の空間電荷効果を抑制しつつ、より高速現象の可視化も実現できるはずである。今後、電子銃へのレーザー照射系の改良とともに、THz 波による電子パルス波の再圧縮を組み合わせた真の SEM 型の超高速現象可視化の実用化と、メカトロニクスや生物・化学領域への応用研究が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 M. Hada*, S. Ohmura, Y. Yamamoto, Y. Kishibe, W. Yajima, R. Shikata, T. Iguchi, K. Akada, S. Yoshida, J. Fujita, S. Koshihara, Y. Nishina	4. 巻 183
2. 論文標題 Tracking the light-driven layer stacking of graphene oxide.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Carbon	6. 最初と最後の頁 612-619
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.carbon.2021.07.058	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 S. Yoshida, Y. Arashida, H. Hirori, T. Tachizaki, A. Taninaka, H. Ueno, O. Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 8
2. 論文標題 Terahertz scanning tunneling microscopy for visualizing ultrafast electron motion in nanoscale potential variations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 315-323
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsp Photonics.0c01572?ref=pdf	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 Y. Arashida, T. Suzuki, S. Nara, I. Katayama, Y. Minami, S. Shindo, Y. Sutou, T. Saiki, J. Takeda,	4. 巻 119
2. 論文標題 Observation of ultrafast amorphization dynamics in GeCu ₂ Te ₃ thin films using echelon-based single-shot transient absorbance spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 61102
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0052872	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4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 江本悠河、菊池優、鄭サムエル、増田秀樹、伊藤 良一、藤田 淳一
2. 発表標題 電子線バイブリズムを応用した高速振動現象のSEM可視化
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 江本 悠河, 山本 祐揮, 嵐田 雄介, 赤田 圭史, 吉田 昭二, 藤田 淳一
2. 発表標題 フェムト秒レーザーの鉛直照射を用いた超高速SEMの開発
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 江本 悠河, 山本 祐揮, 嵐田 雄介, 赤田 圭史, 吉田 昭二, 藤田 淳一
2. 発表標題 鉛直照射型電子パルス発生法による超高速ポンプロープ電子顕微鏡法の開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 川崎 康平, 江本 悠河, 山本 裕揮, 嵐田 雄介, 岸部 義也, 赤田 圭史, 藤田 淳一
2. 発表標題 fsレーザー励起によるCold-FE型パルス電子放出
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

藤田研究室 研究内容 論文
<http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~nanofab/index.html>

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	嵐田 雄介 (Arashida Yusuke) (30715181)	筑波大学・数理物質系・助教 (12102)	フェムト秒レーザー光学系の開発
研究分担者	羽田 真毅 (Hada Masaki) (70636365)	筑波大学・数理物質系・准教授 (12102)	THz波光学系の開発とパルス圧縮技術
研究分担者	吉田 昭二 (Yoshida Shoji) (90447227)	筑波大学・数理物質系・准教授 (12102)	THz技術と極超短電子パルス波可視化技術
研究分担者	早田 康成 (Souta Yasunari) (80837469)	筑波大学・数理物質系・教授 (12102)	超高速電子顕微鏡技術の開発
研究分担者	増田 秀樹 (Masuda Hideki) (10707996)	筑波大学・数理物質系・助教 (12102)	超高速可視化技術実験系の開発とデータ取得

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