

超高圧電子顕微鏡を用いた電子線ホログラフィーの 高分解能化・高感度化に関する研究

明石, 哲也

<https://doi.org/10.15017/2534407>

出版情報 : Kyushu University, 2019, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



博 士 論 文

超高圧電子顕微鏡を用いた電子線ホログラフィーの
高分解能化・高感度化に関する研究

2019年6月

明石 哲也

目 次

第 I 章	はじめに	1
1.	背景	1
1.1	電子線ホログラフィーの概要	1
1.2	電子線ホログラフィーに関わる技術開発の経緯	4
1.3	高分解化・高感度化に関わる技術的課題	6
1.4	本研究の目的	10
1.5	本論文の構成	11
2.	第 I 章の参考文献・参考資料	14
第 II 章	結晶格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発	18
1.	はじめに	18
2.	電子顕微鏡の振動評価	19
2.1	1 MV ホログラフィー電子顕微鏡	19
2.2	電子顕微鏡の振動計測方法と結果	22
2.3	鏡体振動の最小化	25
2.3.1	排気系の低振動化	25
2.3.2	冷却水起因の振動	28
2.4	低振動化対策の効果（振動スペクトルによる評価）	29
3.	暗視野格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発	31
3.1	格子縞観察による機械的安定性評価手法	31
3.2	暗視野結像法を用いた色消し格子像の観察	35
3.3	色消し格子縞の観察結果	38
4.	まとめ	40
5.	第 II 章の参考文献・参考資料	41

第Ⅲ章 超高压電子顕微鏡の加速電圧安定性向上に関する技術開発	43
1. はじめに	43
2. 加速電圧の安定化	44
2.1 加速電圧電源の構成	44
2.2 加速電圧のドリフト低減	45
2.3 商用周波数および kHz オーダーリップルの低減	46
2.3.1 商用周波数のリップル	46
2.3.2 kHz オーダーのリップル	48
2.3.3 浮遊電場・磁場	49
3. 加速電圧の安定性評価	50
3.1 加速電圧のドリフト評価	51
3.1.1 加速電圧のドリフト評価方法	51
3.1.2 加速電圧のドリフト評価結果	52
3.2 加速電圧のリップル評価	53
3.2.1 加速電圧のリップル測定方法	53
3.2.2 加速電圧のリップル評価結果	55
4. まとめ	61
5. 第Ⅲ章の参考文献・参考資料	63
 第Ⅳ章 情報伝達性能の評価手法の開発	64
1. はじめに	64
2. 色収差格子像を用いた空間周波数情報の伝達性能評価手法の開発	65
2.1 情報伝達性能	65
2.2 原子散乱振幅	71
2.3 格子縞を用いた情報伝達性能評価手法の開発	71
2.4 色収差格子縞の観察方法	74
3. 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いた色収差格子縞観察結果	77

4. 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能評価結果	79
5. まとめ	84
6. 第IV章の参考文献・参考資料	85

第V章 円形孔を用いた電子ビームの干渉性評価手法の開発

1. はじめに	87
2. 実験方法	88
2.1 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体構成	88
2.2 照射電子ビームの偏向ノイズ評価の検討.....	90
2.2.1 Lissajous 図形を用いた偏向ノイズ評価手法	90
2.2.2 偏向ノイズの評価条件.....	92
2.2.3 偏向ノイズの評価結果.....	92
3. 円形孔を用いた開き角評価手法の開発.....	95
3.1 フレネル縞観察による開き角評価手法の確認	95
3.2 円形孔から発生するフレネル縞を用いた開き角評価手法	98
3.3 円形孔を用いた開き角の評価結果	103
3.3.1 Cond. 2 レンズを用いた開き角評価結果.....	103
3.3.2 Cond. 1 レンズを用いた開き角評価結果.....	105
3.4 開き角評価結果の検討	108
4. 電子銃輝度評価への適用と結果	109
5. まとめ	111
6. 第V章の参考文献・参考資料	113

第VI章 超高圧電子顕微鏡用の高安定電子線バイプリズム機構の開発

1. はじめに	115
2. 超高圧電子顕微鏡用電子線バイプリズムの開発	116

2.1	電子線バイプリズム	116
2.2	超高圧電子顕微鏡用電子線バイプリズムの設計仕様	117
2.3	超高圧電子顕微鏡用電子線バイプリズムの構成	118
3.	複数の電子線バイプリズムを用いた電子線ホログラフィー	121
3.1	ダブル電子線バイプリズム干渉計	121
3.2	1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたダブル電子線バイプリズム干渉計	124
4.	1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いた原子分解能ホログラフィー	127
4.1	原子分解能ホログラフィーの評価方法	127
4.2	原子分解能ホログラフィーの評価結果	130
5.	まとめ	131
6.	第VI章の参考文献・参考資料	133
第VII章 おわりに		135
謝辞		143

第 I 章 はじめに

1. 背景

1.1 電子線ホログラフィーの概要

各種のデバイスや実用材料あるいは新物質の構造解析において、透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) は重要な研究手段である。材料の原子配列を実空間でイメージングできる高分解能電子顕微鏡法は代表的な手法であり、酸化物高温超伝導体[1]や準結晶[2]など、多くの重要物質の構造解析に利用されてきた。近年では細く絞った電子プローブを用いる走査透過電子顕微鏡法の技術が発達し、結晶の平均構造の解析はもとより、表面・界面における原子配列の乱れ[3]や、ナノ物質 (例えばナノチューブやフラーレンなど) に内包された単原子の観察[4]など局所構造の精密解析においても優れた研究成果が導かれている。これらの構造解析は、結晶構造や原子によって散乱された電子の強度分布の観測に基づくものであり、波の性質を持つ電子の「振幅」の変調に注目した実験と言える。その事情・特徴は X 線回折や中性子散乱の実験と同様であり、そのため、試料を透過した量子線が持つ「位相」の情報をデータから直接読み取ることができない。

これに対して、電子線ホログラフィーは試料を透過した電子の「振幅」と「位相」の両方を明らかにすることができる。電子線ホログラフィーは 1948 年に Gabor によって提案された技術であり[5]、電子の干渉パターンである「電子線ホログラム」の作製と、ホログラムからの振幅・位相情報の再生という二段階からなる結像法である[6]。図 1-1 に電子線ホログラフィーの光学系の模式図を示す。対物レンズの下部には、フィラメント電極と平行平板電極によって構成される電子線バイプリズムが配置されている (この構成は波面分割形電子線ホログラフィーと呼ばれる)。焦点位置に置かれた試料に電子ビームを照射すると、その電子ビーム (試料を透過した物体波) は振幅と位相の変調を被る。この位相の変化(ϕ)は、以下の関係で表されるように、試料

の電場や磁場に起因するものである[7]。

$$\phi(\mathbf{r}) = \sigma \int \varphi(x, y, z) dz - \frac{2\pi e}{h} \oint A(x, y, z) ds \quad (1.1)$$

ここで $\mathbf{r}$ は電子ビームに垂直な平面内 ($x-y$ 平面内) の座標を示す。 σ は電子と試料の相互作用定数、 $\varphi(x, y, z)$ は試料の電位 (スカラーポテンシャル)、 e は素電荷、 h はプランク定数、 $A(x, y, z)$ は磁束 $B(x, y, z)$ のベクトルポテンシャルを表す。電子線ホログラフィーによる位相情報の解析は、物理学や材料科学の分野で多くの優れた研究成果を導いている。外村等によるベクトルポテンシャルの実証実験[8]は特に有名であるが、その他にも超伝導体の磁束量子の観察[9]や、スピン配列のトポロジ (スキルミオン) の研究[10]等でも優れた研究が行われている。

式(1.1)が表す位相変化 ϕ を求めるためには、試料を透過した物体波と、試料の外側を伝播する (すなわち位相変化を被っていない) 参照波とを干渉させ、電子線ホログラムを作製する。具体的には、図 1-1 に示す電子線バイプリズムのフィラメント電極に電圧を印加すると、電場で偏向した物体波と参照波が重なり、像面にホログラムが形成される。得られたホログラムを拡大レンズで適切な倍率に拡大して記録する。

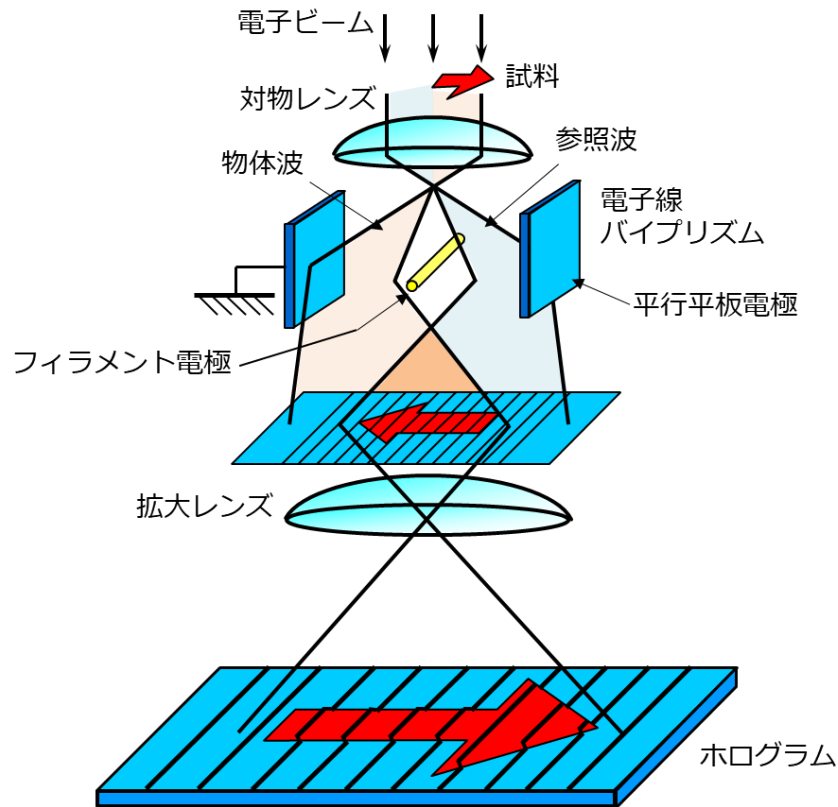


図 1-1 電子線ホログラフイーの模式図

位相情報 ϕ の再生に関しては、当初はフィルムに記録したホログラムに高干渉性のレーザーを照射する光学システムが利用されていた。最近の研究では CCD カメラを使ってホログラムを記録する場合が多く、以下にデジタルデータ化したホログラムからの位相再生手順を記す。図 1-2 にフーリエ変換法と呼ばれる再生法の手順を示す[11, 12]。図中では、酸化マグネシウム微結晶のホログラムを用いている。ホログラムに二次元フーリエ変換を施すと中央にセンターバンドとその両側にサイドバンドと呼ばれるパターンが現れる：図 1-2①。このサイドバンドのひとつを抽出し、マスクを施した領域をフーリエ空間の中心位置へ移動する：図 1-2②。これに二次元フーリエ逆変換を施すことで複素画像が得られる。以上のプロセスで振幅像と位相像を算出することができる：図 1-2③。

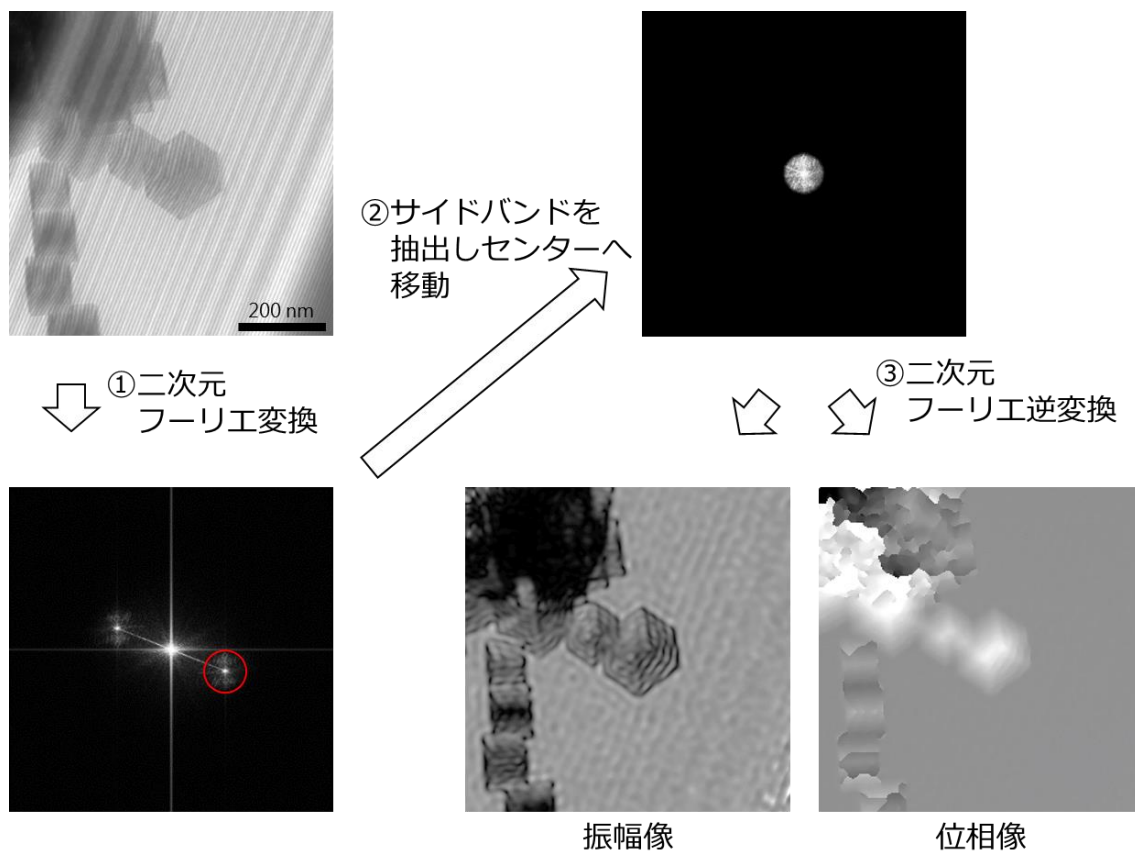


図 1-2 フーリエ変換法を用いたホログラムの位相再生法の手順

1.2 電子線ホログラフィーに関わる技術開発の経緯

試料内外の電磁場によって生じる電子の位相変調を高い空間分解能で検出する場合には、TEM の実際の空間分解能が装置の光学系によって定まる分解能よりも大きく劣るような条件では電子線ホログラフィーの分解能も劣化する。よって、高分解能電子線ホログラフィーを行う際には、TEM の安定性阻害要因からの影響を十分に小さくする必要がある。更に、微弱な位相変調を高い感度で検出するためには、干渉性の良い電子ビームの利用が必須である。言い換えれば、高輝度電子銃が搭載された

TEM の利用が不可欠である。日立製作所の外村を中心とした研究チームは、従来の熱電子銃よりも 1,000 倍以上の輝度を有する電界放出 (Field emission: FE) 電子銃を TEM に搭載し、1970 年代に実用的な 70 kV ホログラフィー電子顕微鏡を完成させた [13, 14]。この電子顕微鏡では、当時の世界最高レベルの $2 \times 10^{12} \text{ A/m}^2 \cdot \text{sr}$ の輝度達成と 62 pm 間隔の格子縞の観察に成功している。格子縞の観察結果は電子顕微鏡の安定性を示す。よって、この結果は、高い輝度と装置安定性が得られたことを示している。

この技術は、後に磁性微粒子 [15] や磁気記録媒体 [16] の研究に応用され、物質内外の磁力線を可視化するという画期的な成果を導くこととなった。その後、更なる高分解能化と高感度化を目指して、加速電圧 350 kV の FE-TEM を基盤とするホログラフィー電子顕微鏡が、同グループによって開発された [17]。この電子顕微鏡には加速電圧の高電圧化と共に従来の FE 電子銃よりも高い輝度を得ることができる磁界重畳型 [18] の FE 電子銃が搭載されたことから、70 kV ホログラフィー電子顕微鏡よりも一桁近く高い $1.4 \times 10^{13} \text{ A/m}^2 \cdot \text{sr}$ の輝度を実現した [19]。更には、格子像を観察した結果においては 55 pm の格子縞を得ることに成功し、収差補正技術の検証や原子レベルのホログラフィーを目指したインジウムリン (InP) の位相像観察 [20, 21] による高分解能電子線ホログラフィーの原理実験などが行われ、応用面ではニオブ薄膜中の磁束量子の観察 [9] など物理学の重要課題に適用され、優れた研究業績を導いている。

その後、同グループは加速電圧を高めることで更なる高輝度を得る [22] と共に厚い試料を観察するため、2000 年に加速電圧 1,000 kV の超高压電子顕微鏡に磁界重畳型 FE 電子銃を搭載した 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡 [23] を開発した。電子銃輝度において $1.8 \times 10^{14} \text{ A/m}^2 \cdot \text{sr}$ の輝度を実現すると共に、格子像の観察においても 49.8 pm の格子縞を観察することに成功している。また、加速電圧が高まったことにより、観察する試料の膜厚が従来の数十ナノメートルから数百ナノメートルへと拡張され、高温超伝体中の磁束量子の観察に用いられた。銅酸化物高温超伝導体である

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi-2212)や $\text{YBaCu}_3\text{O}_{7.8}$ (YBCO)において、試料の膜厚方向に垂直に通過している磁束と傾斜して通過している磁束を区別する[24, 25]など、試料内部の磁束構造を決定することに成功している。

同グループは、2010 年から原子レベルの電磁場を高分解能かつ高感度で可視化できる究極のホログラフィー電子顕微鏡の実現を目指し、Non evaporable getter pump (NEG ポンプ) を搭載した高安定磁界重畳型 FE 電子銃[26]と超高压電子顕微鏡としては世界初となる多極子型収差補正器を搭載した 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発をスタートさせた[27]。この電子顕微鏡の目標性能は 40 pm レベルの分解能と電子線ホログラフィーにおいて原子レベルの微小領域における微弱な位相変調を検出することである。この開発に参画した著者は、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の空間分解能の達成に向けた要素技術の開発と電子線ホログラフィーによる高感度位相計測のために必要な技術開発を担当した。

1.3 高分解化・高感度化に関わる技術的課題

前節で述べた通り、電子線ホログラフィーの高分解能化・高感度化のためには、実験に用いる TEM の分解能と干渉性の向上が必須である。そのためには、ホログラフィー電子顕微鏡の基本性能 (TEM としての基本性能) を精緻に評価し、その実測結果と設計値とに差異がある場合、その原因を究明して対策を施したり、設計そのものにフィードバックしたりする必要がある。しかし、究極的な性能の獲得を目指す TEM では設計上の性能が真に達成されているかどうかを評価すること自体が難しい場合も多く、そのような評価手法の開発は TEM の性能向上のための重要かつ難易度の高い研究開発テーマとなりうる。また、性能評価手法の開発と並行して、機械的振動や電

磁氣的ノイズなどの TEM の安定性阻害要因の探索とその抑制といった要素技術の整備を行うことで初めて設計値どおりの究極の性能が得られることになる。電子線ホログラフィーの高分解能化・高感度化を目指す点では、電子線バイプリズムの性能評価も重要項目である。

以上の背景から、究極性能を追求するホログラフィー電子顕微鏡の開発において必須となる性能阻害要因の抑制と性能評価については、以下の点に関わる要素技術の整備・開発が必要である。

- 1) 電子顕微鏡の機械的安定性阻害要因の抑制と評価手法の開発
- 2) 加速電圧安定性の電磁氣的阻害要因の抑制に関する技術開発
- 3) 電子顕微鏡の情報伝達性能および分解能の高精度評価手法の開発
- 4) 電子ビームの干渉性阻害要因の抑制と高精度評価手法の開発
- 5) 電子線バイプリズムの機械的安定性と利便性向上に関する技術開発

以下に、各項目に関わる研究・技術の現状を記す。

1) TEM における機械的安定性は、格子分解能[28]によって評価することができる。格子分解能の評価に関する論文は 1970 年代には数多く発表されているが、1980 年以降は年々減少傾向であり、新たな手法開発も停滞している。特に本体重量が数十トンとなる 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡や 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡のような百万ボルト以上の加速電圧を有する超高压電子顕微鏡に関する報告は少ない。このため、超高压電子顕微鏡の機械的安定性に関する評価手法を開発することが求められている。

2) TEM において、試料が有する空間周波数の情報を伝達する性能は分解能を決定する要因の一つである。本論文で述べる空間周波数情報とは、電子顕微鏡像における構造情報、すなわち長さの次元で表される“実空間”での構造を“逆空間（周波数

空間)”で表したものである。また、情報伝達性能とは、観察対象物の構造情報をどれだけ微細なものまで、すなわち、どれだけ高い空間周波数までカメラ等の検出系に伝達することができるかを表す指標であり[29]、例えば、電子顕微鏡像のフーリエ変換図形（ディフラクトグラム）を用いて空間周波数解析する方法で評価されていた。空間周波数情報の伝達性能を向上させるためには、電子顕微鏡の色収差[30]を低減する必要がある。そのためには、電子ビームのエネルギーのばらつきや、電子ビームの波長揺らぎを最小限に抑えなければならない。色収差や電子ビームのエネルギーばらつきを低減するため、電子銃モノクロメータや色収差補正器などが提案されている[31, 32]が、いずれも加速電圧 300 kV 以下の電子顕微鏡に搭載された実績が一部あるのみで、加速電圧 1,000 kV 以上の超高压電子顕微鏡では前例がない。従って、超高压電子顕微鏡で電子ビームの波長揺らぎを低減させるためには、電子銃モノクロメータや色収差補正器を新たに開発するよりは、加速電圧の安定性そのものを向上させる方が得策であると判断できる。1,000 kV 級の超高压電子顕微鏡は 1960 年代後半から商品化に向けた開発が行われ、装置の開発ごとに高圧ドリフトやリップルが改善されている[33]。しかしながら、FE 電子銃を搭載した超高压電子顕微鏡の稼働台数は少ないため、高輝度電子銃の性能を発揮することを目標とした加速電圧安定性に関する技術開発例は多くない。更に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能を達成するためには、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡にて達成したトップレベルの加速電圧安定性を上回る必要がある。

3) 球面収差補正器が搭載された TEM において、空間周波数情報の伝達性能は特に重要な分解能決定要因であることから、正確に評価することが求められる。一般的な情報伝達性能の評価には、非晶質のカーボンやタングステン薄膜からの散乱を利用している。しかしながら、試料の散乱強度は高空間周波数領域になるに従い低下することが知られており、TEM の高分解能化に伴い正確な評価が難しくなっている。更

に、加速電圧が高くなるに従い試料からの散乱強度は低下することが知られている[34]。しかも、冷陰極電界放出電子銃を搭載した超高压電子顕微鏡を用いた評価報告例が無い。従って、原子オーダーの高空間周波数領域を計測できる情報伝達性能の評価手法の開発が求められている。

4) 電子線ホログラフィーの高感度化に必須な電子ビームの干渉性は、電子ビームに含まれる偏向ノイズ（電子ビームの進行方向のばらつき）によって制限される。電子ビームの電流密度が同じ条件では、高い輝度を有する電子銃を用いることで干渉性向上が期待できるが、偏向ノイズが含まれる状況では電子銃の性能を発揮することが困難である。従って、電子ビームの偏向ノイズは最小限にする必要がある。また、電子ビームの干渉性は開き角によって評価することが可能であり、電子線バイプリズム干渉縞や試料エッジから発生するフレネル縞から算出される。高輝度電子銃を搭載している超高压電子顕微鏡においては従来よりも高い干渉性が期待できるが、干渉性に関する評価例が少ない。

5) 電子線バイプリズム機構は、2枚の平行平板電極の中央に太さ $1\mu\text{m}$ 程度の金属コートが施されたガラス線で構成されている。ガラス線には、数ボルト～数百ボルト程度の電圧が印加され、微動機構や回転機構などの位置調整機構が組み込まれている。加速電圧 200 kV～300 kV 程度の TEM での電子線ホログラフィー実施例は多く報告されている。しかしながら、今回目標としている世界初の原子レベルでの電磁場観察を行うためには、これまでの電子線バイプリズム機構では十分な安定性を有しているとは言い難い。特に、大型装置である超高压電子顕微鏡用として、これまでの機構の寸法をただ装置の大型化に伴い拡大するだけでは更に安定性が劣化する恐れがある。更に、既存の電子線バイプリズムでは交換時に鏡体の大気開放が伴うなど、超高压電子顕微鏡のような大型装置用としては操作性に難があるのが現状である。よって、究極性能を追求する超高压電子顕微鏡においては、高い安定性と操作性を備えた電子

線バイプリズム機構を開発する必要がある。

1.4 本研究の目的

以上のことから、原子レベルで電磁場を観察することが可能なホログラフィー電子顕微鏡の性能を達成するには、電子ビームや観察する試料に対する電圧ノイズや機械的振動などの要因を極限まで抑える必要がある。とりわけ、最新の 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡が目標とする 40 pm レベルの空間分解能を得るためには、分解能を劣化させる外部からのノイズは 30 pm 以下に抑制する必要があり、加速電圧には 0.5×10^{-6} の安定度が求められる。更に、磁性材料などによって生じる位相変調[35]を原子レベルの空間分解能で観察することを想定すると、 10^{-8} rad オーダーの開き角が必要になる。しかしながら、装置規模が大きく、且つ超高電圧を扱う超高压電子顕微鏡における取り組みは前例がないことから、前述のように性能評価手法を新規に開発しなければならない。

以上の技術的問題を踏まえ、本研究では、十分な性能評価技術が確立されていない超高压ホログラフィー電子顕微鏡（加速電圧 1 MV、および 1.2 MV のホログラフィー電子顕微鏡）に対して、電子顕微鏡本体の機械的安定性の向上と評価、加速電圧安定性の向上と評価、空間周波数情報の伝達性能と分解能の評価等に関わる要素技術を開発することを第一の目的に据えた。これら要素技術の開発については、先行して装置開発がなされた 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を主に用いて研究を進めることにした。更に、これらの要素技術を 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発に適用すると共に、電子ビームの干渉性向上と評価および電子線バイプリズムの安定性と利便性向上に関する技術を開発し、電子線ホログラフィーにて原子レベルの微小領域

における微弱な位相変調を検出するために必須な目標性能である空間分解能と干渉性を、同装置を用いて初めて実現することを最終的な目的とした。

原子分解能で電磁場を定量的に計測できる究極的なホログラフィー電子顕微鏡の完成によって、新しい機能や性能を持った先端機能性材料の開発に貢献すると共に、基礎科学の発展にも寄与することが期待できる。更に、ここで開発した技術がホログラフィー電子顕微鏡や超高压電子顕微鏡以外の大型装置を用いた超精密計測において、機械的振動や電磁気的なノイズなどを極限まで抑制して理論的な性能を実現することに貢献できると考える。

1.5 本論文の構成

本論文の構成は以下の通りである。

第Ⅰ章では、電子線ホログラフィーの概要と技術開発の経緯を述べたうえで、同手法を用いた位相計測の高分解能化・高感度化に関わる技術的な課題、特に超高压電子顕微鏡における基盤的な技術整備の必要性を記した。また、これらの技術的課題を踏まえて設定した本研究の目的と構成について述べている。

第Ⅱ章では、電子顕微鏡の高分解能化で必須となる装置安定性向上と、その評価手法の確立について述べる。具体的には、加速度センサを用いた振動計測によって 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の振動源の特定と最少化を図った成果に言及する。更に、装置安定性を高精度に評価するため、結晶性試料の回折波を任意に選択して結像することで色収差の影響を受けない「暗視野結像法を用いた色消し格子縞観察」による評価手法を提案すると共に、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の装置安定性評価に適用し、その有効性を示した成果を述べる[28]。

第Ⅲ章では、TEM の情報伝達性能を向上させるため、色収差の原因である加速電圧安定性の向上を図った結果について述べる。TEM の加速電圧発生電源には高精度部品が数多く用いられているが、これらの構成部品が有する性能を十分に発揮するためには、設置環境に存在する外乱などからの影響を十分に小さくする必要がある。そこで、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の加速電圧に含まれる数 Hz のドリフトおよび商用周波数や kHz オーダーのリップルに対し、構成部品周辺の温度環境改善やフィルター回路の最適化を検討し、加速電圧の安定化を図った成果を記す。

第Ⅳ章では、原子オーダーの非常に高い空間分解能を得るために必須な情報伝達性能の評価手法を提案する。従来の計測手法で用いられている非晶質試料では、高い空間周波数領域での散乱強度が低下することが知られている。一方、結晶性試料から生じる回折波は空間周波数においては不連続であるものの、その強度は同じ空間周波数であれば非晶質のそれよりも高い。この点に注目して、光軸に沿って伝搬する透過波と試料によって生じた回折波によって形成される通常の、すなわち色収差の影響を反映している格子縞を用いて、空間周波数情報の伝達性能評価手法を検討・開発した。その技術を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に適用し、評価手法の有効性を確認した結果を記す[28]。更に、第Ⅱ章から第Ⅳ章に記述した要素技術を適用した 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の性能評価結果について記す[36]。

第Ⅴ章では、原子レベルの空間分解能を達成した 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡において、電子線ホログラフィーの高感度化に必須となる干渉性を向上させると共に正確に評価するため、電子ビームを偏向させ進行方向にばらつきを与える「偏向ノイズ」の低減を図ると共に、高精度に干渉性を評価する手法を開発した結果について述べる。具体的には、TEM をオシロスコープとみなし、Lissajous 図形を形成・解析することで、偏向ノイズの発生源や進入経路の把握と対策効果を評価した。干渉性評価においては、電子の進行方向ばらつきを示す開き角を高精度に計測するため、円形孔から形成されるフレネル縞の観察限界距離、すなわち可干渉距離を正確に測定する開き角評価手法を検討・開発すると共に、その有効性を確認した結果を取り纏めている[37]。

第VI章では、原子分解能ホログラフィーを行うべく、超高圧電子顕微鏡に高い安定性と操作性を有する電子線バイプリズム機構を開発し、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に導入した結果を述べる。究極の性能を追求する超高圧電子顕微鏡においては、電子線バイプリズム機構においても機械的振動やドリフトが数十ナノメートル以下であることなど、高い安定性が要求される。そこで、試料微動機構を設計ベースとした電子線バイプリズム機構を開発した。また、電子線ホログラフィー機能の利便性の向上と高感度化のため、複数の電子線バイプリズムを用いる「ダブル電子線バイプリズム干渉計」を構築し、その有効性を評価した点に言及する。更に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡においても、ダブル電子線バイプリズム干渉計を立ち上げると共に、原子レベルでの電子線ホログラフィー観察を行い、超高圧電子顕微鏡における高分解能・高感度電子線ホログラフィーの実用性を確認した結果を記す。

2. 第 I 章の参考文献・参考資料

- [1] K. Hiraga, D. Shindo, M. Hirabayashi, M. Kikuchi, N. Kobayashi, Y. Shono,
“Crystal structures of Tl-Ba-Ca-Cu-O superconducting phases studied by high-
resolution electron microscopy” *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**(10), L1848-L1851,
(1988).
- [2] K. Hiraga, K. H. Lee, M. Hirabayashi, A. P. Tsai, A. Inoue, T. Masumoto,
“Phason strains and periodicity in Al-Ru-Cu icosahedral quasicrystals” *Jpn. J.*
Appl. Phys. **28**(9), L1624-L1627, (1989).
- [3] N. Shibata, A. Goto, S. Y. Choi, T. Mizoguchi, S. D. Findlay, T. Yamamoto, Y.
Ikuhara, “Direct imaging of reconstructed atoms on TiO₂ (110) surfaces”
Science **322**, 570-573, (2008).
- [4] K. Suenaga, M. Tencé, C. Mory, C. Colliex, H. Kato, T. Okazaki, H. Shinohara,
K. Hirahara, S. Bandow, S. Iijima, “Element-selective single atom imaging”
Science **22**, 2280-2282, (2000).
- [5] D. Gabor, “A new microscopic principle” *Nature* **161**, 777-778, (1948).
- [6] A. Tonomura, “*Electron Holography*, 2nd ed.” p.29, *Springer Verlag*, Berlin.
(1999).
- [7] 村上恭一, 進藤大輔, “電子線ホログラフィーによる局所磁化分布のイメージング”
日本結晶学会誌 **47**, 89-94, (2005).
- [8] A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, S. Yano, H.
Yamada, “Evidence for Aharonov-Bohm effect with magnetic field completely
shielded from electron wave” *Phys. Rev. Lett.* **56**(8), 792-795, (1986).
- [9] K. Harada, T. Matsuda, J. Bonevich, M. Igarashi, S. Kondo, G. Pozzi, U.
Kawabe, A. Tonomura, “Real-time observation of vortex lattices in a
superconductor by electron microscopy” *Nature* **360**, 51-53, (1992).
- [10] H. S. Park, X. Yu, S. Aizawa, T. Tanigaki, T. Akashi, Y. Takahashi, T.
Matsuda, N. Kanazawa, Y. Onose, D. Shindo, A. Tonomura, Y. Tokura,
“Observation of the magnetic flux and three-dimensional structure of

- skyrmion lattices by electron holography” *Nature Nanotech.* **9**, 337-342, (2014).
- [11] 平山司, “電子線ホログラフィーによる半導体デバイスのドーパント分布観察” 顕微鏡 **45**(3), 143-146, (2010).
- [12] 藤田武志, “電子線ホログラフィーにおける解析手法の実際” まてりあ **45**(7), 535-539, (2006).
- [13] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, H. Todokoro, T. Komoda, “Development of a field emission electron microscope” *J. Electron Microsc.* **28**(1), 1-11, (1979).
- [14] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, “High resolution electron holography with field emission electron microscope” *Jpn. J. Appl. Phys.* **18**(1), 9-14, (1979).
- [15] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arai, K. Mihama, “Direct observation of fine structure of magnetic domain walls by electron holography” *Phys. Rev. Lett.* **44**(21), 1430, (1980).
- [16] N. Osakabe, K. Yoshida, Y. Horiuchi, T. Matsuda, H. Tanabe, T. Okuwaki, J. Endo, H. Fujiwara, A. Tonomura, “Observation of recorded magnetization pattern by electron holography” *Appl. Phys. Lett.* **42**(8), 746-748, (1983).
- [17] T. Kawasaki, T. Matsuda, J. Endo, A. Tonomura, “Observation of a 0.055 nm spacing lattice image in gold using a field emission electron microscope” *Jpn. J. Appl. Phys. Lett.* **29**, L508-L510, (1990).
- [18] 松田強, 遠藤潤二, 川崎猛, 外村彰, “高性能電界放出電子銃とその電線干渉法への応用” 電子顕微鏡 **33**, 75-81, (1998).
- [19] 川崎猛, “磁界重畳型電界放出電子銃の開発とその応用に関する研究” 名古屋大学博士課程論文, p.49, (2013 年).
- [20] T. Kawasaki, Q. X. Ru, T. Matsuda, Y. Bando, A. Tonomura, “High-resolution holography observation of $\text{H-Nb}_2\text{O}_5$ ” *Jan. J. Appl. Phys.* **30**, L1830-L1832, (1991).
- [21] T. Kawasaki, A. Tonomura, “Direct observation of InP projected potential using high-resolution electron holography” *Phys. Rev. Lett.* **69**, 293-296,

- (1992).
- [22] 川崎猛, “磁界重畳型電界放出電子銃の開発とその応用に関する研究” 名古屋大学博士課程論文, p.91, (2013 年).
- [23] T. Kawasaki, T. Yoshida, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, “Fine crystal lattice fringes observed using a transmission electron microscope with 1 MeV coherent electron waves” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1342–1344, (2000).
- [24] A. Tonomura, H. Kasai, O. Kamimura, T. Matsuda, K. Harada, Y. Nakayama, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri, K. Kitazawa, M. Sasase, S. Okayasu, “Observation of individual vortices trapped along columnar defects in high-temperature superconductors” *Nature* **412**, 620-622, (2001).
- [25] A. Tonomura, H. Kasai, O. Kamimura, T. Matsuda, K. Harada, T. Yoshida, T. Akashi, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri, K. Kitazawa, T. Masui, S. Tajima, N. Koshizuka, P. L. Gammel, D. Bishop, M. Sasae, S. Okayasu, “Observation of structure of chain vortices inside anisotropic high-Tc superconductors” *Phys. Rev. Lett.* **88**, 237001, (2002).
- [26] K. Kasuya, T. Kawasaki, N. Moriya, M. Arai, T. Furutsu, “Magnetic field superimposed cold field emission gun under extreme-high vacuum” *J. Vac. Sci. Technol.* **B 32**, 031801, (2014).
- [27] 品田博之, “原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発—数々の困難を乗り越えて—” 日立評論 2015.06-07, 90-102, (2015).
- [28] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Onai, H. Kasai, H. Shinada, N. Osakabe, A. Tonomura, “Information transfer of 25.5 nm^{-1} in a 1 MV Field-emission transmission electron microscope” *Microscopy* **65**(4), 378-382, (2016).
- [29] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡—原理と利用法—」, p.169, 共立出版, (1988).
- [30] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*” p.219, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [31] B. Freitag, S. Kujawa, P. M. Mul, J. Ringnalda, P. C. Tiemeijer, “Breaking the spherical and chromatic aberration barrier in transmission electron

- microscopy” *Ultramicroscopy* **102**, 209-214, (2005).
- [32] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi, K. Suenaga,
“Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy”
Microscopy **62**(1), 23-41, (2013).
- [33] 下山宏, 鷹岡昭夫, 本田敏和, 松井功, “超高压電子顕微鏡 (HVEM) ” 電子顕微鏡 **35**, 18-21, (2000).
- [34] 上田良二編, 「電子顕微鏡」 実験物理学講座 23, p.196, 共立出版, (1982).
- [35] 松田強, “超伝導磁束量子の直接観察のための高干渉電子顕微鏡に関する研究”
名城大学博士課程論文, p.60, (2001 年).
- [36] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Tanigaki, T. Shimakura, T. Kawasaki, T. Furutsu,
H. Shinada, H. Müller, M. Haider, N. Osakabe, A. Tonomura, “Aberration
corrected 1.2-MV cold field emission transmission electron microscope with a
sub-50-pm resolution” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 074101, (2015).
- [37] T. Akashi, Y. Takahashi, K. Harada, T. Onai, Y. A. Ono, H. Shinada, Y.
Murakami, “Illumination semiangle of 10^{-9} rad achieved in a 1.2-MV atomic
resolution holography transmission electron microscope” *Microscopy* **67**(5),
286-290, (2018).

第Ⅱ章 結晶格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発

1. はじめに

透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) の最も重要な性能指標である空間的な分解能 (解像度) は、原理的には電子ビームの波長や対物レンズの収差などの電子光学系によって定まる [1]。ここではこの分解能を理論分解能と呼ぶことにする。ところが、実際に得られる性能には設置環境が大きく影響することが知られていることから [2]、理論的性能を踏まえたうえで TEM 本体や安定性阻害要因を考慮し、各部位で実現すべき仕様が決定する。そのため、近年市販されている高性能 TEM においては、防音や磁場シールドなどの機能を有する電子顕微鏡カバーの設置 [3] や、高精度な温度調節機能を有する実験室内に収められたりすることも多い。このように、高性能 TEM において目標とする装置の分解能を実現するには機械的振動や電磁ノイズなどを低減させると共に、設置環境を含めた装置安定性を十分に確保することが必須条件になっている。

TEM の分解能性能に影響する装置安定性の阻害要因は、TEM 本体や設置環境に依存しており、真空ポンプや空調機などから発生する振動や音波による機械的振動、レンズ電源や浮遊磁場などの電磁氣的要因、そして、レンズ冷却水の水温変化や設置環境の室温の変動などである。従って、TEM の理論分解能を達成するためには、これらの安定性阻害要因の発生原因を把握し、その影響を最小化する必要がある。一方、安定阻害要因を抑制した効果を検証するためには、取得した電子顕微鏡像を精緻に解析する必要がある。しかし、電子顕微鏡画像には機械的振動や色収差、球面収差、レンズ電流の安定性など、複数の因子の影響が記録されるため、安定性阻害要因を抑制した効果を正確に検証するためには評価技術そのものを整備する必要がある。なお、電子線ホログラフィーにおける空間分解能は必ずしも TEM の空間分解能と 1 対 1 に対応しているわけではないが、TEM の実際の分解能が安定性阻害要因の影響によっ

て理論分解能より大きく劣るような条件では電子線ホログラフィーの分解能も当然劣化する。とりわけ、40 pm レベルの空間分解能を目標とする 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡においては、安定性阻害要因による分解能の劣化は、30 pm 以下に抑制する必要がある。

本研究では、超高圧ホログラフィー電子顕微鏡の安定性阻害要因による分解能の劣化を抑制するため、その影響が最も大きいと考えられる機械的振動に着目し、電子顕微鏡本体の機械的振動を加速度センサを用いて計測することで振動の発生源の特定と最小化を図った。更に、高精度に機械的安定性を評価するため、結晶性試料を用いた格子像観察による評価手法を検討・適用し、その有効性を確認した。これらの研究は、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡[4]を用いて実施した。更に、高精度に機械的安定性を評価するため、結晶性試料を用いた格子像観察による評価手法を検討・適用し、その有効性を確認した。

2. 電子顕微鏡の振動評価

2.1 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡

図 2-1(a)に振動評価の対象とした 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を示す。高分解能ホログラフィー観察や超伝導体中磁束量子の動的観察を目標に開発された超高圧電子顕微鏡である。高輝度電子銃である磁界重畳型電界放出電子銃を搭載し、加速電圧は 1,000 kV である。遠隔操作方式が採用されており、観察試料や記録媒体のひとつである電頭フィルムを交換する操作以外の TEM 操作は全て別室の操作室から行うことができる。

図 2-1(b)に 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡全体の断面図を示す。加速電圧発

生回路には 3 タンクケーブル結合方式が採用されている。加速電圧発生タンク、電子銃制御タンクおよび加速管タンクの各々は高圧ケーブルで接続されている。ケーブル結合方式を採用することにより、広い設置面積が必要となる。しかし、電子銃と加速管が納められている加速管タンクの小型化が可能となるため、除振がコンパクトにできるメリットがある。加速管タンクおよび鏡体部は、4 台の除振台によってコンクリート立上げ基礎から分離されている。

真空排気系には複数台・複数種類の真空ポンプを使用しており、排気架台内に設置している。図 2-2 に 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の排気系系統図を示す。赤丸で表示されているバルブは、観察時に Open で使用しているバルブであり、Close のバルブは白丸で表示している。青地で表示されている部位は稼働している真空排気ポンプであり、白地は停止している真空ポンプである。1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の排気系には、11 台のイオンポンプ (Ion pump: IP)、5 台のターボ分子ポンプ (Turbo molecular pump: TMP) が設置されている。また、6 台の油回転ポンプ (Rotary pump: RP) は、鏡体から 7 m ほど離れた別室で稼働している。なお、通常観察では加速管部の TMP01 と RP01 は停止している。緑丸の IG は電離真空計 (キャノンアネルバ製 Nude Ion Gauge) であり、加速管部および試料・対物レンズ付近の高真空領域 ($<10^{-5}$ Pa) の真空度監視を行っている。黄丸の MG はフルレンジマキシゲージ (ファイファーバキューム製 PKR251) であり、試料予備排気系統などの $10^{-5} \sim 10^{-4}$ Pa オーダーの領域において真空度監視を行っている。

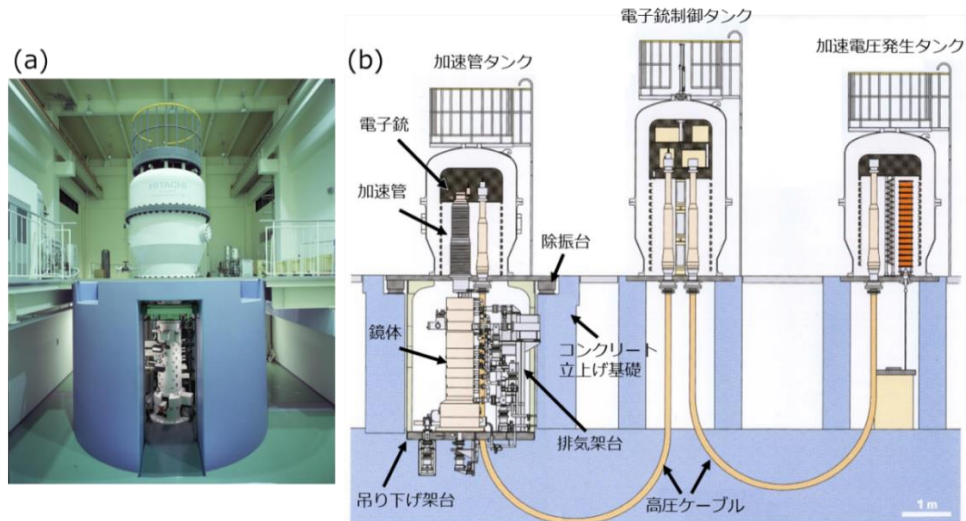


図 2-1 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡

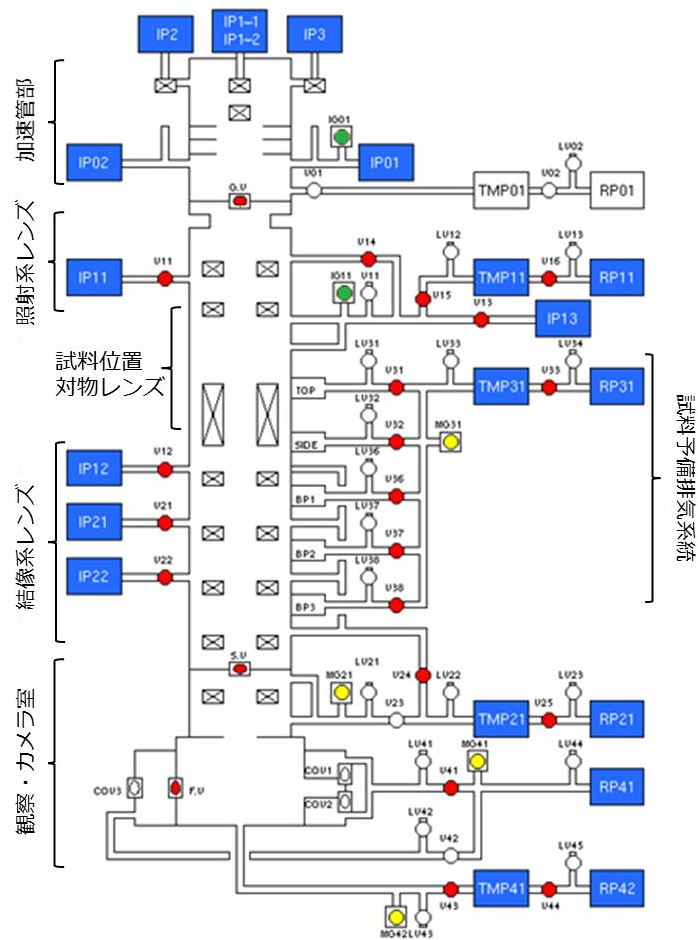


図 2-2 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の排気系系統図

2.2 電子顕微鏡の振動計測方法と結果

電子顕微鏡像の解析において問題となる機械的振動とは、TEM 本体と試料が異なるモードで振動する相対的なズレである。究極的には、対物レンズと試料が一体構造となっており且つ振動によって鏡体が歪むことなく揺れる場合には、電子顕微鏡像に振動の影響は及ばない。しかしながら、実際の電子顕微鏡には試料の移動や傾斜を行う試料ステージなどの可動部が設置されており、各々が固有の共振周波数を有しているために完全な一体構造を得ることは困難である。従って、対物レンズと観察試料そして記録媒体との相対振動を把握し、その効果を低減する必要がある。

一般的に、振動計測には圧電素子が組み込まれた加速度センサが用いられており、相対的振動であれば基準部位と被試験体に設置したセンサを同時に測定する。また、必要に応じて X 方向、Y 方向、Z 方向の 3 方向にセンサを設置して計測する。TEM においては、被試験体である試料が非常に小さく且つ真空中に設置されることから、基準部位である対物レンズとの相対的振動を計測することは困難である。そこで、「TEM 本体が各部位・各機構の共振周波数で揺れなければ、相対振動は生じない」と考える。鏡体の複数箇所に加速度センサを設置し、且つ広い周波数範囲の振動計測によって、振動源の把握と低減策を施した。

図 2-3 に振動計測機器および振動計測箇所を示す。(a) は、対物レンズ付近に設置した加速度センサ（Wilcoxon 社製 圧電型加速度検出器 731-207 型）であり、X 方向、Y 方向、Z 方向の 3 方向に独立した素子で構成されている。共振周波数は約 2.4 kHz である。(b) は、加速度センサで得られる電圧信号を計測する振動計（昭和測器社製 チャージ振動計 1607 型）と解析用 PC である。振動計から得られる出力電圧に FFT などの処理が可能であり、振動の振幅や振動スペクトルなどを得ることができる。システムとしては最大 15 個の加速度センサからのデータ取得が可能である。(c) に、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に設置した加速度センサの位置を示す。図中の矢印

で示した①照射系レンズ付近、②対物レンズ付近、③結像系レンズ付近の 3 か所に、Z 方向が光軸と一致するように加速度センサを設置した。また、X 方向および Y 方向は、図中の矢印にて示している。

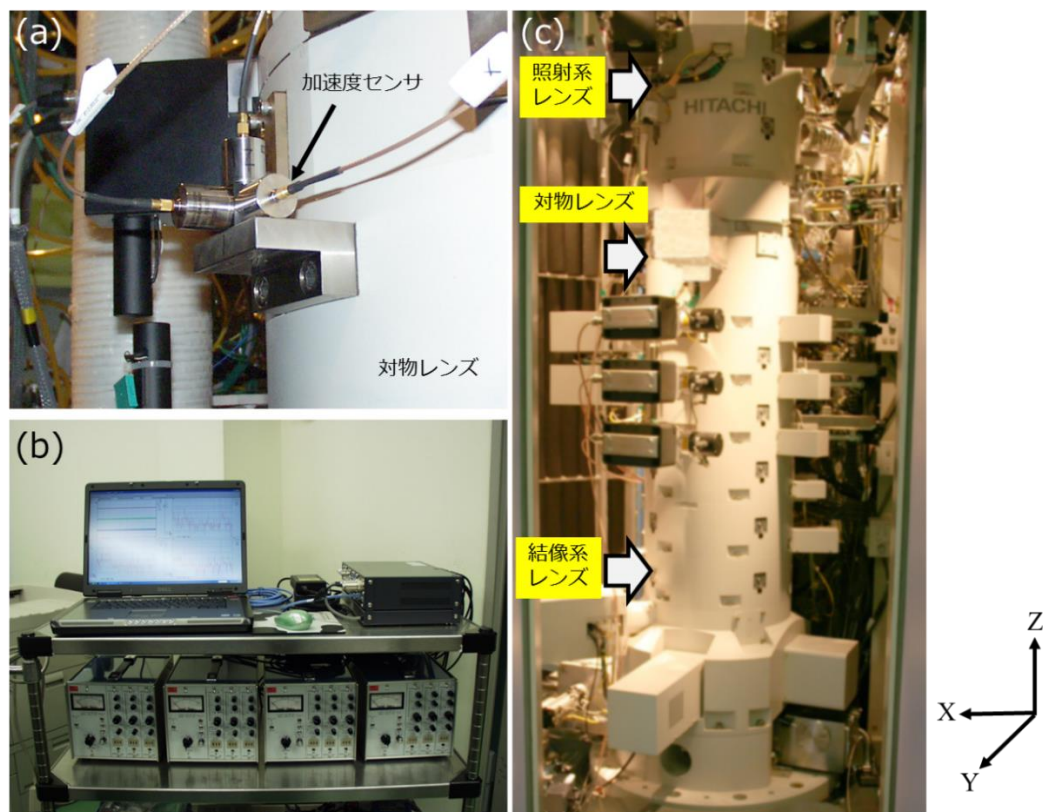


図 2-3(a) 振動計測に用いた加速度センサ、(b) 振動計および解析用 PC、(c) 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体と加速度センサ設置箇所。

機械的振動の発生源を把握する手順として、通常観察時や真空排気ポンプなどの装置を個別に稼働させる前後における振動スペクトルを取得・比較し、その変化の有無を確認した。ここで、想定される振動源はレンズの冷却水や TMP など機械的な動作を伴う装置である。それぞれの発生源となり得る装置を稼働・停止させた際に、振動スペクトルのどの部分に変化が生じるかを調べた。図 2-4 に、振動対策前の振動スペクトルを示す。対物レンズ X 方向である。完全に装置を停止したときの振動ス

ペクトルを示すことができなかったため、同図に振動計測によって把握した機械的振動の発生源を振動ピークに書き添えている。レンズコイルに使用している冷却循環水によって、数十 Hz から 200 Hz 周辺までの広い範囲の振動が生じていることを確認した。また、真空排気を使用している TMP による振動が 200 Hz、600 Hz、800 Hz の鋭いピークの他にも 800 Hz 以上の周波数帯で確認された。更に、IG によって 700 Hz 付近の振動が発生することが確認された。IG はフィラメントを加熱して数 mA の熱電子を取り出しており、フィラメントに対しグリッドおよびコレクター電極には数十～数百 V の電位が与えられている[5]。これらが IG 由来の振動を誘発すると考えられるが、その詳細な機構は不明である。

加速度センサを用いた振動計測によって、TMP、IG およびレンズ冷却水が機械的振動の発生源であることを確認した。電子顕微鏡を正常に使用するためには、電子顕微鏡の機能を損なうことなく、機械的振動を低減する必要がある。そこで、TMP と IG の停止が可能となる排気系に変更した。また、冷却水量と機械的振動の関係を調査し、最適な冷却水量を把握した。対策の詳細と、その効果を次の 2.3 節に記す。

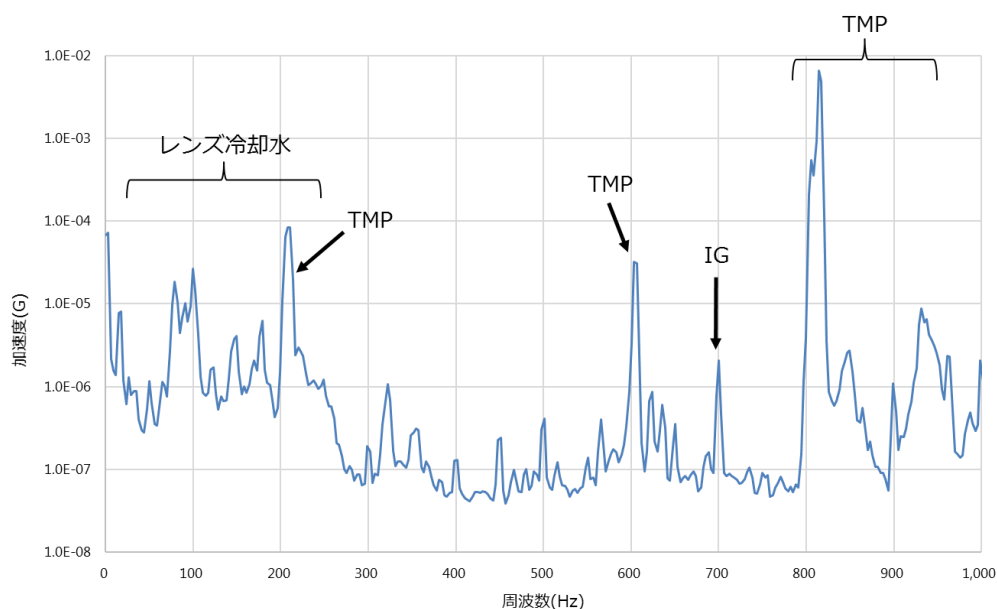


図 2-4 振動対策前の振動スペクトル。振動計測で確認した機械的振動の発生源を加速度ピークに書き添えている。

2.3 鏡体振動の最小化

2.3.1 排気系の低振動化

排気系には、5 台の TMP と 2 台の IG が使用されている。これらは電子顕微鏡の安定稼働に重要な真空維持と真空監視に用いられているため、安易に停止することは難しい。そこで、個々の TMP と IG に応じて停止方法を検討し、排気系の低振動化を図った。

(1) TMP11

TMP11 は照射系レンズ部や試料付近および対物レンズ付近を排気しており、観察時における加速管部や試料付近の真空度に影響する。TMP11 を停止したところ、観察時における加速管部真空度が 1 桁以上低下し、 10^{-6} Pa オーダーになることが確認された。加速管部の真空度低下は、加速電圧の放電や電界放出電子銃の不安定動作の原因になりうる。そのため、照射系レンズ部に IP (Varian 社製 VacIon Plus 55 StarCell) を新設すると共に (図 2-5)、差動排気絞りの設置および V14 を Close することで、照射系レンズ部と試料位置・対物レンズ部を独立した排気系とした。その結果、TMP11 停止時においても、TEM の通常使用が可能な 10^{-7} Pa オーダーの加速管部真空度を維持することが可能となった。

試料位置・対物レンズ部の真空度低下は TEM の使用可能範囲であったが、試料コンタミネーションの増加が懸念された。そこで、レンズコイルの発熱を利用した鏡体加熱 (マイルドベーキング) を数日間・複数回行った。試料コンタミネーションの低減には液体窒素等を用いたアンチコンタミネーションデバイス[6]を用いることも多いが、本研究においては液体窒素のバブリングが振動源となることから設置を見送った。

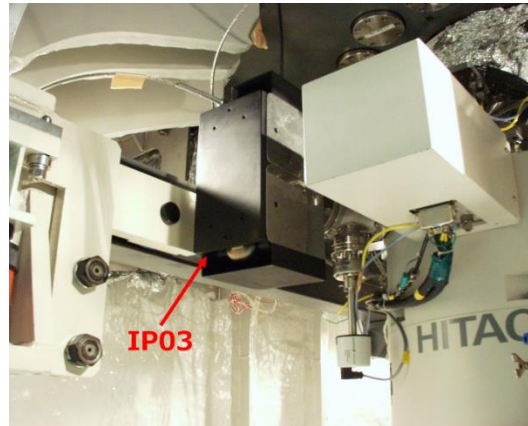


図 2-5：照射系に追加したイオンポンプ(IP03)

(2) TMP31

TMP31 が設置されている試料予備排気系統は鏡体を大気開放することなく試料を交換するための機構であり、試料位置や対物レンズ部とは分離されている排気系統である。TMP31 の停止操作によって試料交換操作の必要時間は増加したが、装置稼動への影響は特に確認できなかった。そのため、本研究において改造は行わず単に停止するのみとした。

(3) TMP21 および TMP41

TMP21 および TMP41 は、巨大な空間である結像系レンズ部と観察・カメラ室を真空排気している。とりわけ、観察・カメラ室には、観察用蛍光板や像記録用の電子顕微鏡フィルムとその機構などが設置されており、IP のみによる真空排気系の実現が難しい。更に、観察・カメラ室の真空度低下は、結像系レンズ部の IP の正常稼働に支障をきたす。そこで、RP42 と TMP41 の間で且つ鏡体と離れた位置に、TMP42 (セイコー精機社製 : STP-451H) を新設することで、観察・カメラ室の真空度維持を図った。図 2-6 に、新設した TMP42 を示す。新たな振動源とならないように、鏡体とは別室に設置・稼働させた。これにより、観察・カメラ室の真空度を $1 \times 10^{-2} \text{Pa}$ 程度に

維持できるようになり、結像系レンズ部の IP12、IP21、IP22 の正常稼働が可能となった。また、結像系レンズ部においても、マイルドベーキングを実施し、高真空化に努めた。

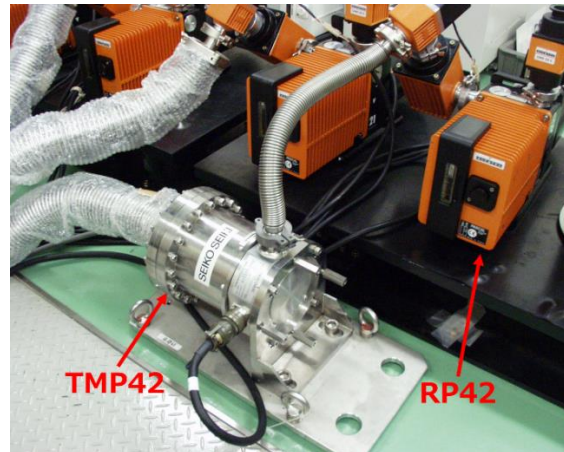


図 2-6 観察・カメラ室に追加したターボ分子ポンプ(TMP42)

(4) 電離真空計

電離真空計(IG)は、 10^{-6} ~ 10^{-8} Pa オーダーの超高真空を計測できることから、加速管や試料室などの部位で用いられることが多かった。近年では、同等領域の測定が可能な別方式の真空計が開発・市販されており、真空計の選択肢が増えている。そこで、真空計単体の振動計測を実施し、特に振動スペクトルに変化を与えない代替真空計を選定した。試料・対物レンズ部の IG11 については、試料予備排気系統などで使用実績のあるフルレンジマキシゲージ（ファイファークリューム製 PKR251）を採用した。一方、加速管部の IG01 については、真空計を交換するためには加速管の大気開放が伴い、超高真空の回復作業に膨大な時間を要する。そのため、本研究においては一時的な停止操作で対応した。

2.3.2 冷却水起因の振動

一般的な電子顕微鏡で使用されるレンズには、電磁コイルが用いられている。とりわけ、TEM のように強励磁で使用するレンズコイルには冷却水が必要不可欠であり、電子線通路の真空排気機構と同様に完全に停止することはできない。よって、コイル冷却水によって発生する振動を低減させるためには、冷却効率向上や振動低減などを考慮した冷却水路の設計が必要である。しかしながら、すでに稼動している電子顕微鏡においては、レンズ形状や冷却水系統の変更などを伴う改良を実施することは困難な場合が多い。そこで、現状の TEM において通常使用が可能且つ最も振動の小さい冷却水量を調査・設定した。具体的には、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の冷却水が発生させる振動を直接測定することで、冷却水量と鏡体振動の関連を把握し、水温設定を含めた最適な冷却水量を調査した。

図 2-7 に、冷却水量を変化させたときの鏡体振動の一例を示す。測定箇所は対物レンズの Y 方向であり、測定時間は 15 秒である。冷却水量は、レンズ全系統の総流量である。青は水量 0 L/min、赤は 10 L/min、緑は 15 L/min、紫は 20 L/min、水色は 25 L/min であり、水量 0 L/min を基準に、1 桁ずつシフトさせて表示している。定性的な評価であるが、25 L/min では、10～350 Hz、550～750 Hz、900～950 Hz 付近の振動が増加していることが確認できる。15 L/min では目立ったピークは見受けられず、10 L/min では 0 L/min と顕著な差が見られない。従って、15 L/min 以下の冷却水量で TEM を安定稼動できるようにすることを目標とした。

冷却水が必要なレンズコイルは、2 段の照射系レンズ、対物レンズおよび 5 段の結像系レンズである。一般的な高分解能観察においては、対物レンズのアンペアターン（コイル電流とコイル巻き数の積）が最大であり、最も発熱する。よって、冷却水量を減らすことで対物レンズの温度が上昇する。そのため、鏡体からのアウトガスが増加し、試料コンタミネーションが顕著になると考えられる。そこで、継続的なマ

イルドベーキングを実施し、試料コンタミネーションの抑制に努めた。その結果、全冷却水量を 15 L/min に調整後、結露に注意しながら冷却水温を 15℃～17℃に設定したところ、観察時の対物レンズ温度が約 30℃で安定することおよび試料コンタミネーションが像観察に支障をきたさないことを確認した。

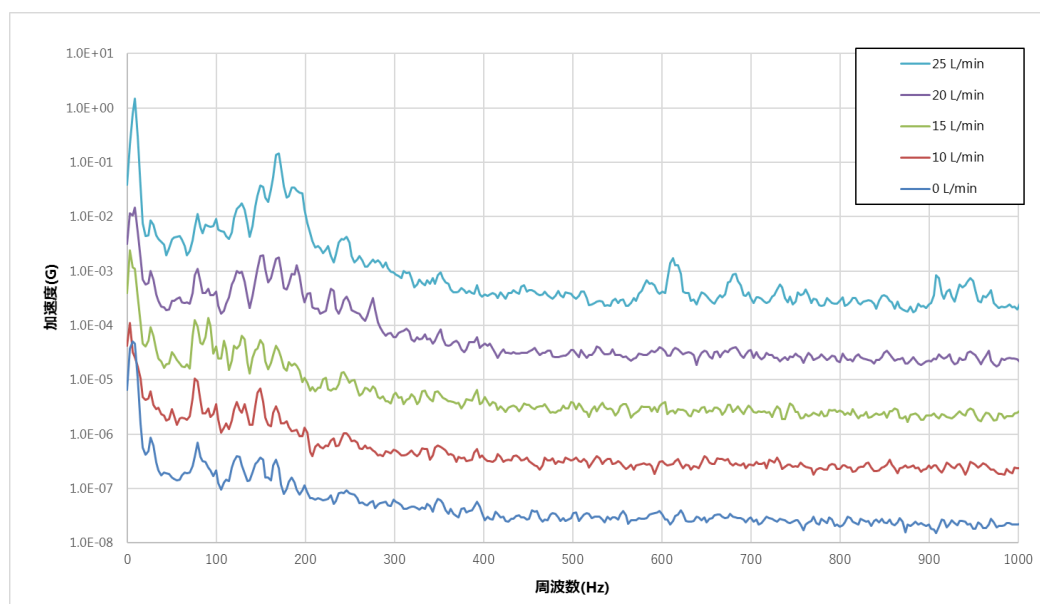


図 2-7 冷却水量を変化させたときの鏡体振動

2.4 低振動化対策の効果（振動スペクトルによる評価）

2.3 節で説明した電子顕微鏡の低振動化対策の効果を、振動計測によって評価した。図 2-8 に振動対策前後の振動スペクトルを示す。図 2-4 で示した振動スペクトル（青色）、すなわち振動対策前のスペクトルに、振動対策後のスペクトル（赤色）を追加して表示している。レンズ冷却水、TMP および IG によって生じている振動のピークは劇的に抑制されていることが確認できる。一方、変化が見られないピークも存在する。この変化が見られないピークについては、電子顕微鏡を完全に停止した

際にも確認されることを別途確認している。よって、電子顕微鏡外に振動源があると思われるが、本研究では発生源を特定することはできなかった。電子顕微鏡の機械振動を極限まで抑えるためには、電子顕微鏡の設置環境をも含めた機械的振動の発生源の調査・対策が必要であると考えている。

以上の結果をまとめると、加速度センサを用いた振動計測を実施し、TMP、IG およびレンズコイルの冷却水が機械的振動の主要な発生源であることを確認した。排気系の改良と冷却水量調整を行うことにより、電子顕微鏡の機能を損なうことなく、低振動化を図った。振動スペクトルにて低振動化の効果を確認した結果、劇的に抑制されていることを確認した。

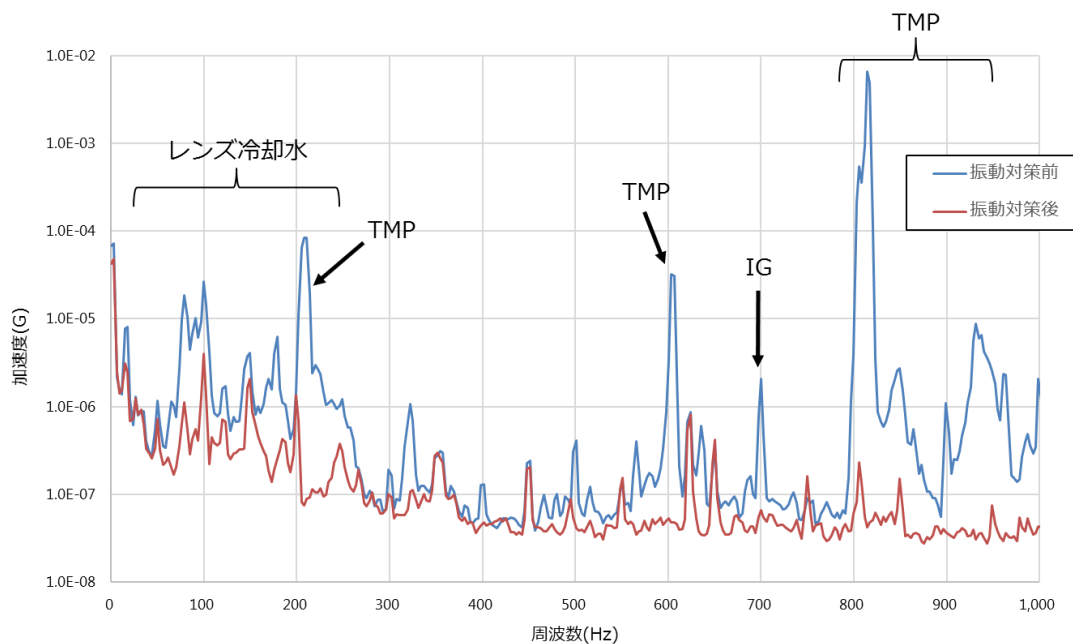


図 2-8 低振動化対策前後の振動スペクトル

3. 暗視野格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発

前節で述べた通り、本研究では 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の機械的振動の低減を図った。振動抑制の効果は、図 2-8 に示す振動スペクトルの変化としても確認できるが、それを通して高分解能電子顕微鏡像の像質が確実に改善されているか、電子顕微鏡像を観察することによって直接評価する必要がある。そこで本研究では、暗視野格子像の利用、すなわち収差の影響を無視できる理想的な実験条件で格子縞を解析することにより、振動抑制の効果を直接的に評価した。

3.1 格子縞観察による機械的安定性評価手法

結晶格子像で観察される最も細かい格子縞の間隔を測ることで、TEM の分解能を評価することができる。この方法で示される分解能は格子分解能と呼ばれ、装置の分解能とは区別して用いられている[7]。

格子分解能は、電子ビームの波長と球面収差、開き角および対物レンズの色収差および、機械的振動等の安定性阻害要因によって決定される。ここで、格子縞が透過波と回折波の 2 波による干涉縞であると考え、球面収差によって生じるフォーカスのズレは適切なデフォーカス量に調整することで修正することができる[7]。図 2-9 に球面収差とデフォーカス量の関係を示す。光軸に沿った電子ビームで結晶性試料を照射したとき、透過波と回折波が角度 θ で Bragg 回折したとする。対物レンズの球面収差係数を Cs 、倍率を M とすると、像面から $MCs\theta^2$ 離れた位置が最適なフォーカス位置となる。よって、試料面に換算したデフォーカス量を $\varepsilon (= Cs\theta^2)$ に調整することで、球面収差によって生じるフォーカスのズレを修正することができる。その結果、格子分解能は、電子ビームの波長、照射ビームの開き角と対物レンズの色収差および安定性阻害要因によって決定されることになる。

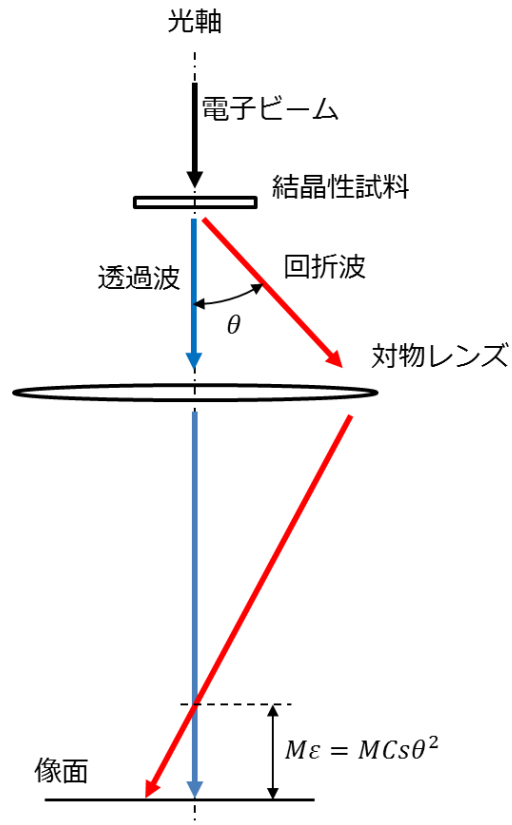


図 2-9 球面収差によって生じるフォーカスのズレとデフォーカス量の関係

更に、電界放出電子銃のような高輝度電子銃が搭載された TEM の場合には、開き角を 10^{-5} rad 程度と十分小さくすることができる[8]。この場合、開き角は回折角 θ よりも数桁小さいことから、格子分解能の主制限要因にならないと考えてよい。次に格子分解能に対する色収差の影響について考える。図 2-10 に格子分解能と色収差の概念図を示す。図 2-9 と同様に、光軸に沿った電子ビームで試料を照射しており、透過波と一つの回折波の干渉によって格子縞が形成されている様子を示している。図を簡単にするため、 $2g$ など高次の回折波は記載していない。また、透過波と回折波によって形成される格子縞のピークを点線で示している。このとき、色収差の影響により像面に $M\Delta$ の幅で光軸方向の変動が生じたとする。ここで、 M は対物レンズの倍率である。試料面に換算した像面の変動幅すなわち色収差による焦点変化量は Δ であり、次式で表される。

$$\Delta = C_c \sqrt{\left(\frac{\Delta V}{V_0} f_r\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E_0} f_r\right)^2 + \left(2 \frac{\Delta I}{I}\right)^2} \quad (2.1)$$

ここで、 C_c は色収差係数、 $\Delta V/V_0$ は加速電圧の変動率、 $\Delta E/E_0$ は加速された電子の持つエネルギー E_0 に対する初速エネルギーの安定性、 $\Delta I/I$ はレンズ励磁電流の変動率である。また、超高圧電子顕微鏡のように加速電圧が高くなると電子のエネルギーには相對論を考慮する必要であるため、式(2.2)で示す補正項 f_r を用いている。

$$f_r = \frac{1 + E_0/E_c}{1 + E_0/2E_c} \quad (2.2)$$

ここで、 E_c は電子の静止エネルギーである。

図 2-10 のように、光軸と一致した照射電子ビームで試料を照射し、透過波と一つの回折波の干渉によって格子縞が形成されているとき、格子縞のピーク（透過波と回折波の合成波の強度のピーク：図中の点線）が光軸に沿っていない。そのため、光軸方向に像面が変動すると、格子縞のピークが横方向に移動する。これは、像面の変動によって、観察される格子縞がボケることを表しており、そのボケ量が格子間隔に達すると格子縞のコントラストが消失すると考えられる[9]。このとき、対物レンズの倍率を M として試料面に換算すると、格子分解能 d_c は、

$$d_c = \sqrt{\frac{\lambda \Delta}{2}} \quad (\theta = 2d_c/\Delta = \lambda/d_c \text{より}) \quad (2.3)$$

で与えられる。ここで、 λ は電子ビームの波長であり、透過波と回折波の Bragg 角を θ とする。

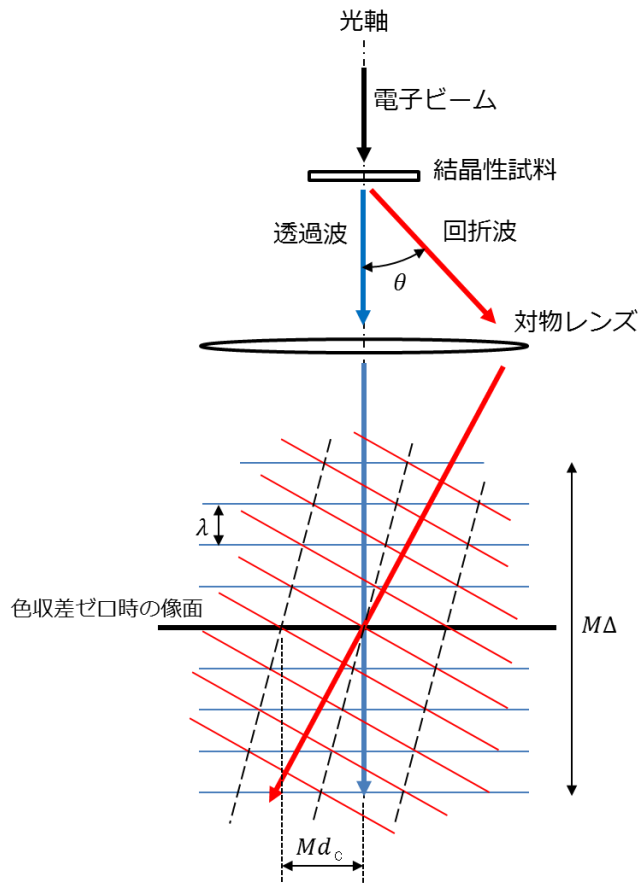


図 2-10 格子分解能と色収差の概念図

一方、照射電子ビームを傾斜するビーム傾斜法などを用いて、光軸対称な透過波と回折波、または回折波と回折波によって形成される格子縞は、色収差の影響がキャンセルされる[7, 10]。このような条件は色消し条件と呼ばれており、色消し条件で得られた格子縞を本稿では「色消し格子縞」と呼ぶことにする。図 2-11 に色消し条件によって形成される色消し格子縞の模式図を示す。ここで、 M は対物レンズの倍率、 d_a は試料面上の色消し格子縞の間隔である。照射電子ビームは光軸と平行に照射されており、 $\mathbf{g}$ と $-\mathbf{g}$ の回折波は光軸に対称な回折波である。図を簡単にするため、透過波や $2\mathbf{g}$ など高次の回折波は記載していない。図 2-10 と同様に格子縞のピークを点線で示している。光軸対称な回折波によって形成された格子縞のピークは光軸と平行になるため、色収差による焦点変化量 Δ が存在しても、格子縞のピークの位置は変化しない

ことがわかる。すなわち、光軸対称な透過波と回折波、または回折波と回折波によって形成される格子縞は、色収差の影響を受けない。従って、適切なデフォーカス量に調整して観察した色消し格子縞の観察限界は機械的振動等の安定性阻害要因のみで決まることになる。

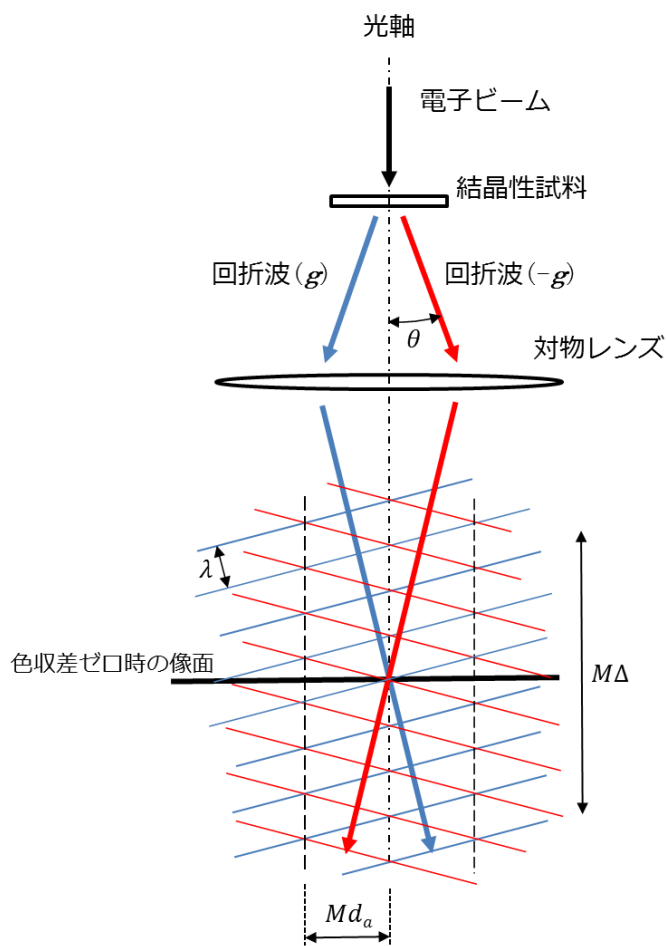


図 2-11 色消し条件によって形成される色消し格子縞の模式図

3.2 暗視野結像法を用いた色消し格子像の観察

結晶性試料を電子ビームで照射すると、透過波と複数の回折波が形成される。このとき、色消し条件を満足する回折波の組み合わせは複数存在する。しかしながら、

機械的安定性を示すためには、観察し得る最も細かい間隔の色消し格子縞を形成する回折波の対を選択することが重要であり、それ以外の回折波はノイズになると考えられる。そこで、不要な回折波をビームストッパーで遮光し、目的の回折波対のみで色消し格子縞を形成する暗視野結像法を考案した[11]。

図 2-12(a)に暗視野結像法の光学系を示す。対物レンズの後焦点面に特殊な形状の対物絞り（ビームストッパー）を用いて透過波を遮光し、目的とする回折波（ g と $-g$ ）を選択し、色消し格子縞を形成している様子を示している。この方法により、最も細かい格子縞を形成する色消し条件の回折波の対のみを選択することが可能であり、色消し格子縞の S/N 比の改善が期待できる。

図 2-12(b)に、ビームストッパーの光学顕微鏡像を示す。 $\phi 500 \mu\text{m}$ の対物絞り孔に $\phi 100 \mu\text{m}$ タングステンワイヤーをエポキシ製接着剤にて固定し、金属コートをした。更にタングステンワイヤーの方向を変えた複数のビームストッパーを製作することによって、任意の回折波を遮光できるようにした。

図 2-12(c)に[111]方向から見たイリジウム単結晶薄膜の電子線回折図形を示す。ビームストッパーの有無の二条件を二重露光で撮影しており、 $\phi 100 \mu\text{m}$ のビームストッパーで遮られる領域（上部の矢印が示す範囲）を含んでいる。色消し格子縞の形成に使う回折波は $\bar{8}26$ と $8\bar{6}2$ であり、 $\bar{2}20$ や $20\bar{2}$ などの回折波はビームストッパーによって遮光されるため実際の結像には寄与しない。実際の実験では、 $\bar{8}26$ と $8\bar{6}2$ の回折波のみが強く励起している場所を選択し、ビームストッパーで遮蔽できないその他の Bragg 反射の影響を抑制することで、色消し格子縞のコントラスト向上に努めた。

色消し格子縞の観察条件を以下に示す。試料は、集束イオンビーム加工装置によるマイクロサンプリング法を用いて製作した。試料厚さは、約 15 nm である。色消し格子縞観察における球面収差によって生じるフォーカスのズレを修正するためのデフォーカス量 ε_c は、 $\varepsilon_c = C_s(\lambda/2d_a)^2$ から算出した。ここで、 C_s は対物レンズの球面収

差係数、 λ は電子ビームの波長、 d_a は結像に使った回折波対によって形成される色消し格子縞間隔である。更に、設定したデフォーカス量の近辺にて 10 枚程度のスルーフフォーカス撮影を実施した。記録媒体はフィルム（Kodak SO-163）で、露光時間は 5 秒～30 秒とした。加速電圧は、1,000 kV である。

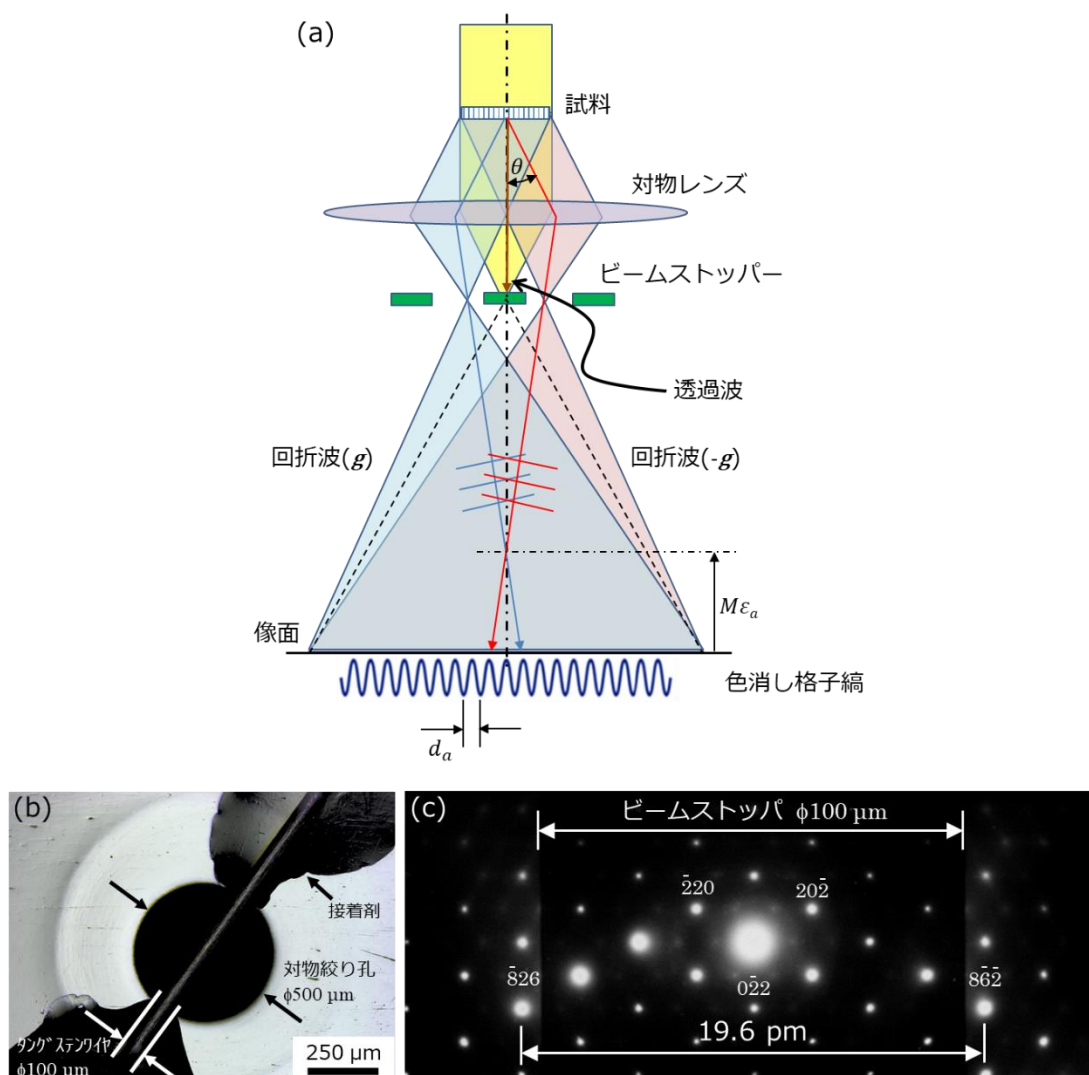


図 2-12(a) 暗視野結像法の光学系、(b) ビームストッパーの光学顕微鏡像、
(c) ビームストッパーで遮られる領域を含む電子線回折図形。ビームストッパーの有無の二条件を二重露光で撮影した。

3.3 色消し格子縞の観察結果

図 2-13 に、本実験で得られた最も細かい色消し格子縞を示す[12]。試料は、イリジウム単結晶薄膜であり、照射ビームは[111]方向から入射している。(a)は、イリジウムの{16 8 8}面間隔に相当する 19.6 pm の色消し格子縞である。撮影条件は、デフォーカス量；950 nm、鏡体倍率；2,000 k、露光時間；13 秒である。(b)は、(a)よりも広い視野のディフラクトグラムである。矢印は、19.6 pm に対応したスポットを示している。本研究で得られた 19.6 pm 間隔の色消し格子縞は、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡が完成した際に得られた 49.8 pm 間隔格子縞[13]の 39%に相当する。観察手法が異なるため直接比較は難しいが、実施した低振動化が効果的であったと考えている。

以上の結果は、本研究で開発された要素技術が分解能を劣化させる安定性阻害要因の影響を 20 pm レベルで評価することが可能であることを示している。この 20 pm という数値は、後の章で詳しく述べる最新の超高圧ホログラフィー電子顕微鏡(1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡)の目標分解能である 40 pm レベル、すなわち世界最高水準の分解能を達成するうえでも十分に小さな値と評価される。よって、本研究で一連の要素技術が開発されたことにより、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡だけでなく、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能に影響を及ぼす因子（特に機械的安定性に関わる因子）を高精度で評価することが可能となった。本研究の成果は、これから超高圧ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能の実現と、その装置機能を活かした物質材料研究の展開を促進するうえで重要である。

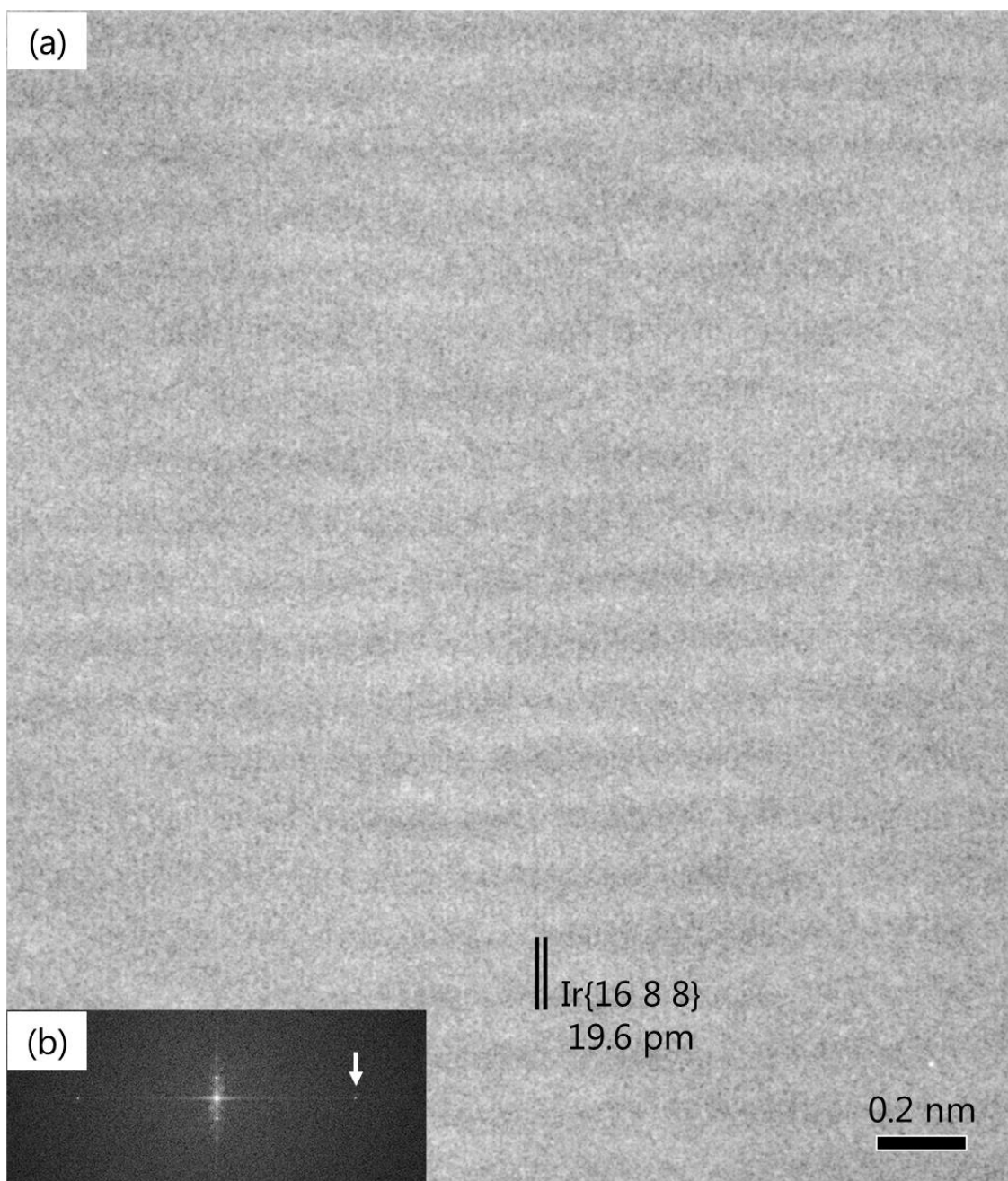


図 2-13(a) イリジウム{16 8 8}面間隔相当の色消し格子縞、(b) ディフракトグラム

4. まとめ

1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標分解能、すなわち世界最高水準となる 40 pm 級の超高分解能を達成するうえでも、分解能を劣化させる安定性阻害要因の影響を精緻に評価する必要がある。本研究では、先行して開発された 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて、安定化阻害要因を評価するための要素技術を開発した。具体的には、電子顕微鏡本体の機械的振動の発生源に着目し、鏡体振動の最小化を図ると共に、暗視野結像法を用いた色消し格子像観察手法を提案し、電子顕微鏡の機械的安定性の評価を行った。

まず、加速度センサを用いた鏡体振動計測の結果、ターボ分子ポンプや電離真空計およびレンズ冷却水が機械的振動の発生源であることを確認した。電子顕微鏡の機能を損なうことなくターボ分子ポンプの停止と代替真空計を導入するため、真空排気系を改良した。振動スペクトルにて低振動化の効果を確認した結果、劇的に抑制されていることを確認した。

次に、暗視野結像法を利用した色消し格子像を観察し、振動抑制の効果を直接的に評価した。その結果、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡が完成した際に得られた 49.8 pm 間隔格子縞の 39%に相当する 19.8 pm 間隔の色消し格子縞を観察することに成功し、実施した低振動化が効果的であったことを示した。

以上、本研究で開発した要素技術は、分解能を劣化させる安定性阻害要因の影響（機械的振動の影響）を 20 pm レベルで決定できることを示した。これらの要素技術は、上記の 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に留まらず、最新の 1.2 V ホログラフィー電子顕微鏡が目指す究極的な分解能（40 pm オーダーの分解能）の実現を適切に評価することができる。更に、本研究で開発した技術は超高压電子顕微鏡のみならず市販されている TEM における性能評価に対しても高度な汎用性を持つものである。

5. 第Ⅱ章の参考文献・参考資料

- [1] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.201, 共立出版, (1988).
- [2] H. Ichinose, H. Sawada, E. Takuma, M. Osaki, “Atomic resolution HVEM and environmental noise” *J. Electron Microsc.* **48**, 887-891, (1999).
- [3] 例えば、株式会社日立ハイテクノロジーズ「電界放出形透過電子顕微鏡 HF5000」(<https://www.hitachi-hightech.com/jp/science/products/microscopes/electron-microscope/tem/hf5000.html>).
- [4] T. Kawasaki, I. Matsui, T. Yoshida, T. Katsuta, S. Hayashi, T. Onai, T. Furutsu, K. Myochin, M. Numata, H. Mogaki, M. u, T. Akashi, O. Kamimura, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, K. Kitazawa, “Development of 1 MV field emission transmission electron microscope” *J. Electron Microsc.* **49**(6), 711-718, (2000).
- [5] 一村信吾, “正しい圧力（真空度）の測り方” *J. Surf. Anal.* **1**(2), 182-188, (1995).
- [6] 上田良二編, 「電子顕微鏡」実験物理学講座 23, p.111, 共立出版, (1982).
- [7] 菰田孜, “電子顕微鏡による結晶格子像の観察” *J. Electron Microsc.* **13**(1), 3-18, (1964).
- [8] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, H. Todokoro, K. Komoda, “Development of a field emission electron microscope” *J. Electron Microsc.* **28**, 1-11, (1979).
- [9] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.88, 共立出版, (1988).
- [10] T. Kawasaki, T. Matsuda, J. Endo, A. Tonomura, “Observation of a 0.055 nm spacing lattice image in gold using a field emission electron microscope” *Jpn. J. Appl. Phys. Lett.* **29**, L508–L510, (1990).
- [11] T. Akashi, A. Sugawara, T. Yoshida, T. Matsuda, K. Harada, A. Tonomura, “Fine crystal lattice of 31.8-pm-spacing observed by dark-field imaging” *Proceedings of the 16th International Microscopy Congress (IMC16)*, 585, (2006).
- [12] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Onai, H. Kasai, H. Shinada, N. Osakabe, A. Tonomura, “Information transfer of 25.5 nm⁻¹ in a 1 MV Field-emission

- transmission electron microscope” *Microscopy* **65**(4), 378-382, (2016).
- [13] T. Kawasaki, T. Yoshida, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, “Fine crystal lattice fringes observed using a transmission electron microscope with 1 MeV coherent electron waves” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1342–1344, (2000).

第Ⅲ章 超高压電子顕微鏡の加速電圧安定性向上に関する技術開発

1. はじめに

レンズの球面収差が補正されるようになった現在では、透過電子顕微鏡（Transmission electron microscope: TEM）の分解能を向上するためには、空間周波数情報を伝達する性能（以下、情報伝達性能）を向上させることが重要である。情報伝達性能の決定要因のひとつである色収差は、対物レンズの色収差係数と電子ビームのエネルギーばらつき、加速電圧の電圧安定度および対物レンズの励磁電流安定度によって決まる[1]。近年、数十～数百 kV の加速電圧を有する汎用 TEM においては、電場と磁場を用いた色収差の補正技術や、電子銃モノクロメータを搭載することによって電子ビームのエネルギーばらつきを低減した結果が報告されている[2,3]。

一方、1 MV 以上の加速電圧を有する超高压電子顕微鏡に関しては色収差補正技術に関する報告は見当たらないものの、加速電圧発生電源などに用いられる電気部品の高精度化を目指した試作は行われている。日立製作所の外村らの研究チームは、高安定高精度抵抗器や高電圧抵抗ケーブルを試作するなどの要素技術開発を行い、電子ビームの単色化を図った[4]。

このように、電子顕微鏡の加速電圧発生部には高精度部品が数多く用いられる。これらの構成部品が有する性能を十分に発揮するためには、設置環境に存在する外乱の影響を十分に小さくする必要がある。一般的には、外乱の発生源を実験機器から離れたレイアウトや恒温層の導入、装置全体を覆うシールドカバーなどの設置が行われる。しかしながら、設置面積が 300 m² を超える超高压電子顕微鏡では、装置全体をシールドすることは困難であるため、それぞれのユニットにおいて、安定性阻害要因の影響を最小化することが重要となる。

そこで、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて、加速電圧に含まれる数 Hz のドリフトや商用周波数および数 kHz オーダーのリップルに着目し、構成部品の温度

環境改善やフィルター回路の最適化などを行い、それぞれの対策の効果を確認した。

これらの取り組みによって、超高圧電子顕微鏡（加速電圧 $\geq 1\text{ MV}$ ）の加速電圧安定性の阻害要因の定量的な知見と、安定度向上に対する指針を得ることができた。

2. 加速電圧の安定化

2.1 加速電圧電源の構成

図 3-1 に、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の加速電圧発生回路の構成を示す。加速電圧発生タンク内に設置されているコッククロフト・ウォルトン回路（Cockcroft-Walton (C-W) 回路）[5]によって昇圧された加速電圧は、高圧単芯ケーブルによって電子銃制御タンクへ伝達され、電子銃を駆動するための電圧と共に、高圧多芯ケーブルを介して、加速管タンク内に設置されている電子銃および加速管に伝達される。加速管は 36 段であり、分割抵抗器によって分圧された加速電圧が各々電極に伝達される。加速電圧の安定性を確保するため、基準抵抗器を通過した電流によって生じる電圧とレファレンス電圧との差分を誤差増幅器にて増幅し、発振器からの信号の波高値を変化させるフィードバック制御[6]が行われている。

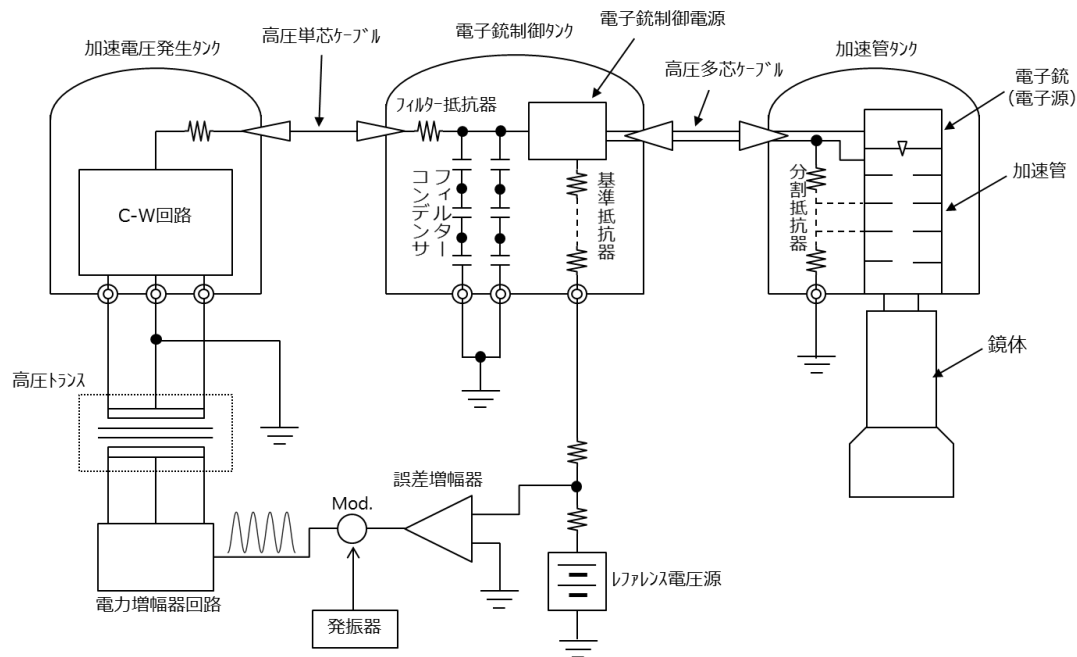


図 3-1 加速電圧発生回路の構成

2.2 加速電圧のドリフト低減

抵抗器や増幅器などの電気部品は、その周辺温度が変化することによって、抵抗値の変化や熱雑音が生じることが知られている。加速電圧電源は 2.1 節で示したフィードバック制御によって安定化されているが、フィードバック制御回路内のレファレンス電圧や誤差増幅器周辺の温度が変化するとフィードバック補正量に影響を及ぼす。その結果、加速電圧のドリフトが発生し、電子ビームのエネルギーにばらつきが生じる。そこで、ドリフトと熱雑音を低減するため、レファレンス電圧源や誤差増幅器などの周辺温度の安定化を図った。図 3-2 に加速電圧電源のフィードバック制御回路と温度の安定化を図った部位を示す。一点鎖線で囲んだ部分が温度安定化対策を実施した部分である。レファレンス電圧源や誤差増幅器などが配置されている高電圧電源ユニットには冷却ファンが稼動していることから、絶えず空気対流が発生している。

そのため、フィードバック構成部品の周辺には、対流による温度変動が生じると考えられる。大出力電源が含まれる高圧電源においては、ファンの停止は難しい。恒温槽内に構成部品を設置する方法もあるが、既に稼働している TEM においては大幅な改造が困難である。そこで、温度制御の必要が無く、比較的設置が容易なガラスウールを部品周辺に配置することで、構成部品周辺の対流を防止した。

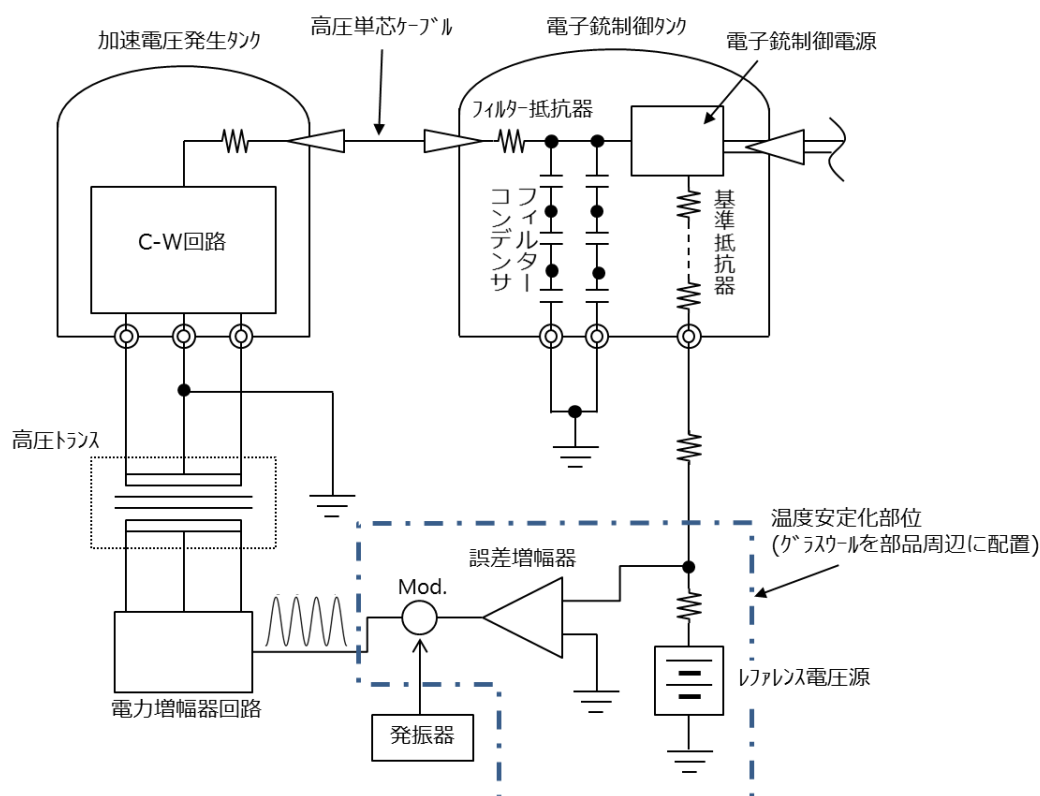


図 3-2 フィードバック制御回路の構成と温度安定化部位

2.3 商用周波数および kHz オーダーリップルの低減

2.3.1 商用周波数のリップル

一般的な定電圧電源は、商用周波数の交流電圧を整流することで定電圧（直流

電圧)を得ている。一般的にはフィルター回路などにより電圧変動(リップル)の低減を図っているが、高安定度が求められる基準電源などでは商用周波数の影響を除くため二次電池を用いた定電圧電源などを用いることも多い。電子顕微鏡の加速電圧においても商用周波数変動の影響を確認することが多々あるが、加速電圧発生電源を二次電池で稼働させることは困難であることから、その影響を完全に除去することは難しい。そこで、逆位相電圧を導入することによって、商用周波数成分のリップル補正を試みた。

図 3-3 に、商用周波数リップルを補正するための逆位相電源を導入したフィードバック制御回路のブロック図を示す。加速電圧発生タンク内の C-W 回路のセンターに商用周波数とは逆位相の電源を接続することで、加速電圧発生回路は逆位相電源を介して接地する。この構成のもとで、商用周波数の波形を基にした逆位相電源出力の位相と波高値を調整することで、加速電圧に重畳している商用周波数リップルの補正を行った。

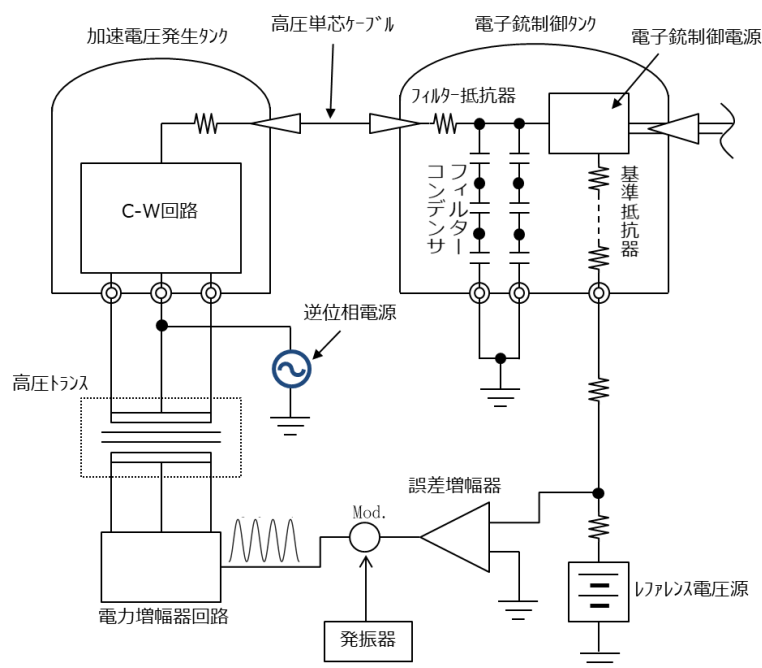


図 3-3 商用周波数逆位相電源を接続したフィードバック制御回路のブロック図

2.3.2 kHz オーダーのリップル

加速電圧発生回路である加速電圧発生タンク内の C-W 回路は、その両端に数 kHz（駆動周波数と呼ばれている）の交流電圧を導入することによって、直流電圧を得る。そのため、加速電圧に駆動周波数の交流電圧が残存することが多々ある。1 MV ホログラフィー電子顕微鏡においては、電子銃制御タンク内に設置されているフィルター回路（フィルター抵抗器およびフィルターコンデンサ）が設置されており、高周波数成分のリップルを除去している。また、フィルター回路は、その抵抗器とコンデンサ容量によって 100 Hz 程度の周波数リップルに対してもフィルター効果を発揮する。

フィルター回路のフィルター効果は、フィルター抵抗器とフィルターコンデンサによって決定される。入力電圧 V_{in} とフィルター回路を通過した出力電圧 V_{out} の関係は、

$$V_{out} = \left(\frac{1}{2\pi f C_f \cdot R_f + 1} \right) \cdot V_{in} \quad (3.1)$$

となる（図 3-4(a)）。ここで、 f はリップル周波数、 C_f はフィルターコンデンサの静電容量、 R_f はフィルター抵抗器の抵抗値である。式(3.1)から、リップルが高周波数になるに従いフィルター効果が高く、また、 C_f や R_f を大きくすれば低周波数リップルに対してもフィルター効果が期待できるようになる。

ところが、実際のフィルター回路では、その設置場所周辺の電位環境がフィルター効果に影響を及ぼす可能性がある。とりわけ、フィルター抵抗は加速電圧電位に囲まれるような配置になっていることから、抵抗器と加速電圧電位間の浮遊容量 (C_s) を考慮する必要がある。図 3-4(b)に、浮遊容量を考慮したフィルター回路のブロック図を示す。フィルター抵抗器の周辺が出力電圧電位に囲まれる配置のときには入力電圧 V_{in} と出力電圧 V_{out} の間に浮遊容量 C_s が生じており、その容量は部品配置によって変

化すると考えられる。このとき、式(3.1)の R_f は $\left(R_f/(2\pi f C_s R_f + 1)\right)$ と書き換えられることになり、 C_s や R_f によってフィルター効果が変化する。そこで、比較的容易に入手・交換が可能なフィルター抵抗器の抵抗値を変えて、リップル電圧を実測・比較し、kHzオーダーのリップル抑制に対する有効性を検証した。具体的には、8 M Ω および 16 M Ω のフィルター抵抗器を実装して比較した。

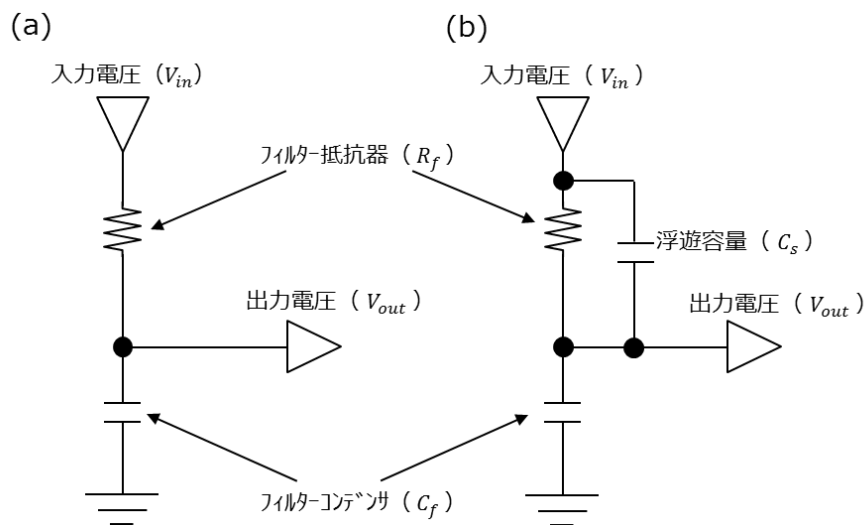


図 3-4(a) フィルター回路のブロック図、(b) 浮遊容量を考慮した場合

2.3.3 浮遊電場・磁場

一般的に、定電圧源は商用周波数を整流することで直流定電圧を発生させている。加速電圧電源においても、レファレンス電圧源や誤差増幅器などの機器用に定電圧源を用いていることから、商用周波数の電源ラインが多数存在する。交流電圧周辺には浮遊電場・磁場が生じていることが知られており、これらの影響がフィードバック信号に重畳すると、加速電圧に商用周波数のリップルを生じさせる信号になる。そ

ここで、加速電圧電源内の商用周波数電源ラインを見直すと共に、フィードバック制御信号ラインの浮遊電場・磁場のシールドを設置した。

図 3-5 に、設置した浮遊電場シールドの一例として、加速電圧電源内のケーブルシールドを示す。既に稼働中の装置においても比較的設置が容易であるジッパータイプのケーブルシールドを導入した。電子銃制御タンク内の基準抵抗器から加速電圧電源内のフィードバック制御回路までのケーブルや電源に用いられる交流電圧ケーブルに取り付けた。また、移動できる計測機器は、加速電圧電源から離れた位置に再配置した。

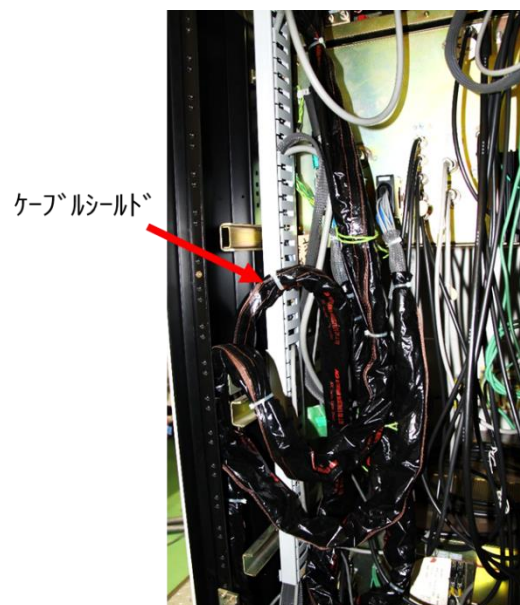


図 3-5 加速電圧電源内に設置したケーブルシールド

3. 加速電圧の安定性評価

前節では、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の加速電圧に影響を及ぼす因子として、加速電圧のドリフト（熱変動の影響）、商用周波数のリップル、kHz オーダーのリップル、浮遊電場・磁場に注目し、それぞれに対して実施する安定化対策について述

べた。本節では、これらの安定化対策の効果を、加速電圧の測定に基づいて評価した結果について報告する。

3.1 加速電圧のドリフト評価

3.1.1 加速電圧のドリフト評価方法

加速電圧の安定度 δ は、加速電圧を V_0 、電圧の変動を ΔV とすると、 $\delta = \Delta V/V_0$ で定義される。高電圧の変動を直接計測することは難しいので、本研究では、加速管タンク内に設置されている分割抵抗器の出力を利用した。図 3-6 にドリフト計測のブロック図を示す。分割抵抗器の出力に検出抵抗器を接続し、その出力に基準電圧発生電源とレコーダを接続する。このとき、検出抵抗器の両端電圧を V_d とする。基準電圧発生電源の出力 (V_r) を $V_r = V_d$ となるように調整し、電圧の変動分をレコーダにて記録する。このとき、単位時間あたりの電圧変動の振幅を V_{pp} とすると、加速電圧安定度 δ は、

$$\delta = \Delta V/V_0 = V_{pp}/V_r \quad (3.2)$$

で示すことができる。例えば、 $V_r=10\text{ V}$ のとき、1 分間あたりの V_{pp} が $10\text{ }\mu\text{V}$ だとすると、加速電圧の安定度は $1\times 10^{-6}/\text{min}$ となる。なお、本研究では、電圧の変動を振幅（ピークピーク値）で示すことにする。

この加速電圧安定度の測定方法では、分割抵抗器や検出抵抗器の安定度および V_r の安定性が重畳された結果が得られる。そのため、分割抵抗器には基準抵抗器と同型の超高安定抵抗器を設置し、検出抵抗器周辺にはフィードバック回路と同様にガラスウールを設置した。基準電圧発生電源内の回路周辺においてもガラスウールを設置しており、更に電源全体を恒温槽内に配置した。

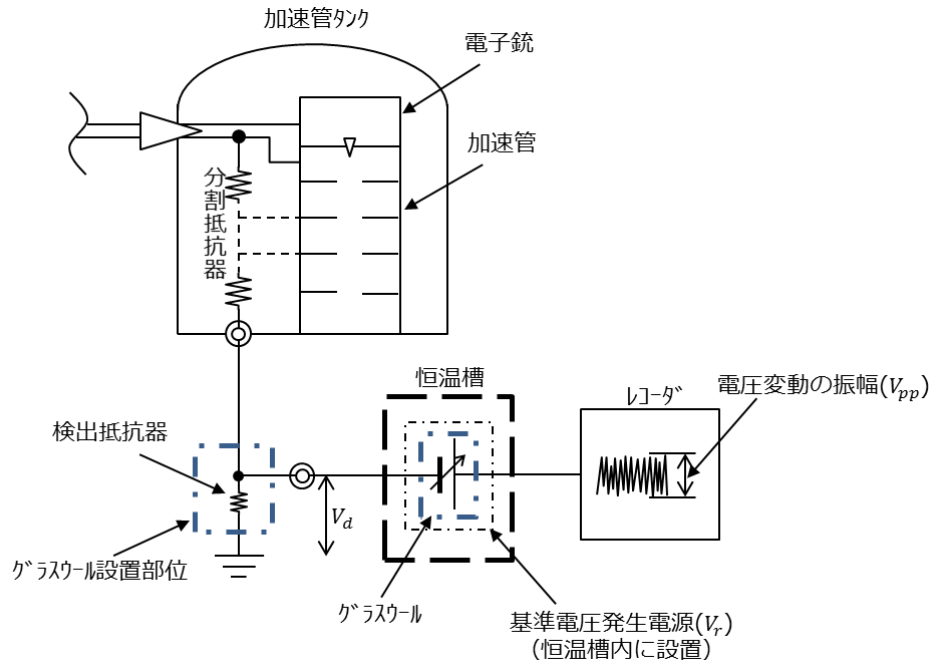


図 3-6 ドリフト計測のブロック図

3.1.2 加速電圧のドリフト評価結果

図 3-7 に加速電圧ドリフトの測定結果を示す。図中の横軸において、1 目盛が 1 分間である。加速電圧は 1,000 kV であり、電子ビームの引き出し電圧等の電子銃制御電圧は 0 V 設定とした。基準電圧発生電源の電圧は 7.311 V である。縦軸において 1 目盛分の V_{pp} は 1 μ V である。よって、レコーダ上で 1 目盛の電圧変動が確認された場合、 0.14×10^{-6} の安定度となる。加速電圧のドリフトを評価した結果は、およそ $0.28 \times 10^{-6}/\text{min}$ であった。高分解能観察時の電子顕微鏡像を取得する時間は 0.5 秒～2 秒であることを考慮すると、露光時間中の加速電圧安定度は本評価結果よりも良い状態であると考えられる。1 MV ホログラフィー電子顕微鏡が完成した際の加速電圧ドリフトは $0.5 \times 10^{-6}/\text{min}$ [7]であったことから、本対策によって加速電圧ドリフトを 56%程度に低減させることに成功した[8]。

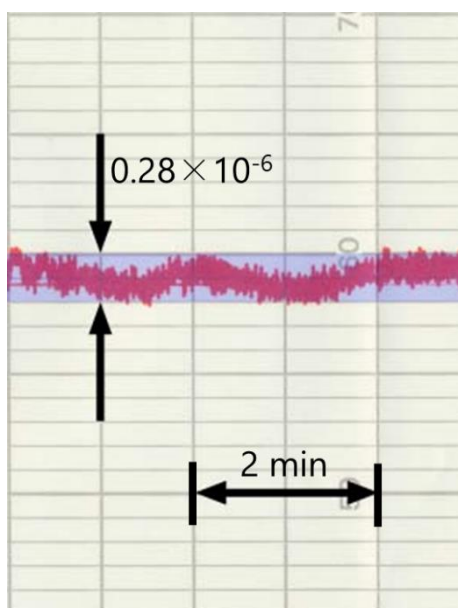


図 3-7 加速電圧ドリフトの測定結果

3.2 加速電圧のリップル評価

3.2.1 加速電圧のリップル測定方法

加速電圧のリップル測定には、電子銃制御タンク内に設置されているフィルターコンデンサの出力を用いた。図 3-8 に実使用時のフィルター回路とリップル測定時のフィルター回路のブロック図を示す。(a)は、実使用時のフィルター回路である。1 MV ホログラフィー電子顕微鏡のフィルターコンデンサは、3000 pF の静電容量を有するコンデンサを 6 本用いている。3 本を直列に接続したコンデンサ組を 1 カラムとし、フィルター回路内に 2 カラムを並列に設置している。リップルの測定には、(b)のようにフィルターコンデンサ 1 カラムの出力に検出抵抗器 R_d を接続し、両端電圧をオシロスコープでモニタした。

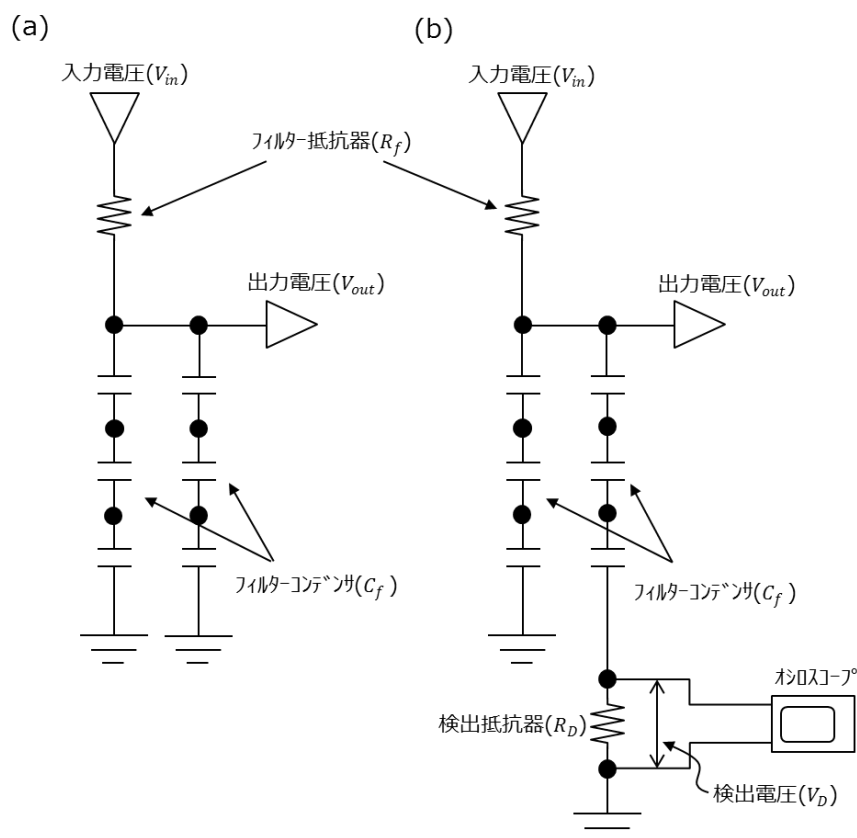


図 3-8(a)実使用時のフィルター回路、(b)リップル測定時のフィルター回路

このリップル電圧測定方法は、フィルターコンデンサのインピーダンスが周波数によって変化するため、それぞれのリップル周波数で検出感度が異なる。更に、リップル測定中のフィルター効果は検出抵抗器を接続したことによって、通常使用時の $1/2$ に低下する。従って、測定したリップル電圧を実使用時のリップル電圧に換算する必要がある。そこで、想定されるリップル周波数における検出感度の補正係数 k_r および実使用時の加速電圧に含まれるリップル電圧に換算する係数 ($k_r/2$) を算出した。

リップル測定時において、フィルターコンデンサ 1 カラムの静電容量を C_f 、検出抵抗器の抵抗値を R_D とする。このとき、検出抵抗器両端の電圧 V_D と加速電圧に重畳しているリップル電圧 V_{out} との関係は、

$$V_{out} = k_r \times V_D = \left\{ \left(\frac{1}{2\pi f \cdot C_f} + R_D \right) / R_D \right\} \times V_D \quad (3.3)$$

となる。ここで、 f はリップル周波数である。

表 3-1 に式(3.3)を用いて算出した k_r と実使用時のリップル電圧に換算するための係数($k_r/2$)を示す。1 MV ホログラフィー電子顕微鏡のリップルは、商用周波数関連の 50 Hz、100 Hz そして加速電圧駆動周波数の 2.92 kHz が主な周波数であると想定される。これらの係数を用いて、実測したリップルを周波数ごとに換算することで、加速電圧安定性を評価した。ここで、 C_f は 1000 pF、 R_D は 470 kΩ である。

表 3-1 各リップル周波数の補正係数

リップル周波数	補正係数(k_r)	実使用時へ換算する係数($k_r/2$)
50 Hz	7.78	3.89
100 Hz	4.39	2.19
2.92 kHz	1.12	0.56

3.2.2 加速電圧のリップル評価結果

(1) 逆位相電源による商用周波数リップルの補正結果

表 3-2 に、C-W 回路のセンターに接続した逆位相電源による 50 Hz 補正前後のリップル波形を示す。縦軸は 1 目盛あたり 50 mV、横軸は 1 目盛あたり 20 msec である。加速電圧は 1,000 kV、フィルター抵抗器は 8 MΩ である。表 3-3 は、計測したリップル周波数ごとの電圧変動の振幅（ピークピーク値）を示した。実使用時のリッ

プル電圧は、表 3-1 で示した周波数ごとに求めた係数($k_r/2$)を用いている。

逆位相電源を OFF にした補正前のリップル波形では 50 Hz リップルが顕著である。実使用時のリップル電圧に換算すると 50 Hz リップル電圧の振幅は約 350 mV であり、2.92 kHz リップル電圧の振幅は、78.4 mV であった。逆位相電源を ON にして商用周波数を補正すると、50 Hz リップルが大幅に減少し、約 100 Hz のリップルが検出されるようになった。この周波数は、定電圧源等による商用周波数の全波整流の影響が検出されていると思われる。商用周波数補正と同様に全波整流波形を再現することができれば、将来的には打ち消すことが可能であると考えている。

以上の結果をまとめると、逆位相電源を用いることで 50 Hz リップルを補正することが可能であることが確認できた。50 Hz リップルを打ち消したことで、全波整流成分の 100 Hz リップルを確認し、その振幅は 54.8 mV であった。この結果によって、50 Hz および 100 Hz の商用周波数起因のリップル電圧が逆位相電源導入前の約 15.7%($= (54.8/350) \times 100$)に低減したことを確認した。

表 3-2 逆位相電源による 50 Hz リップルの補正結果

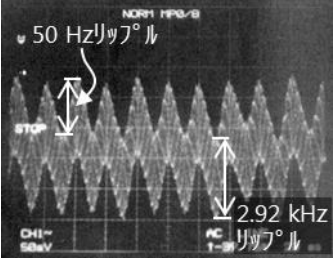
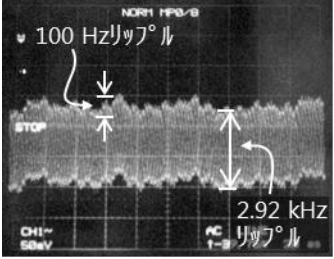
	50 Hz リップル補正前	50 Hz リップル補正後
50 Hz および 100 Hz	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec

表 3-3：リップル波形の測定値（振幅）および実使用時リップルの算出結果

	50 Hz	100 Hz	2.92 kHz	全周波数合計 (実使用時換算)
リップル補正前 (実測)	90 mV	50 Hz に埋もれ 計測困難	140 mV	
リップル補正後 (実測)	計測されず	25 mV	140 mV	
リップル補正前 (実使用時換算)	350 mV	50 Hz に埋もれ 計測困難	78.4 mV	428.4 mV
リップル補正後 (実使用時換算)	計測されず	54.8 mV	78.4 mV	133.2 mV

(2) フィルター抵抗器によるリップル測定結果

表 3-4 に、フィルター抵抗器 8 M Ω および 16 M Ω のリップル波形を示す。上段は 100 Hz のリップルに着目した結果であり、中段には上段の波形を 2 倍に拡大した結果を表示している。下段は 2.92 kHz に着目したリップル波形である。いずれも、縦軸は 1 目盛あたり 50 mV、横軸は 1 目盛あたり 20 msec である。逆位相電源を動作させて、商用周波数リップルは補正している。表 3-5 には、表 3-4 の結果と表 3-1 の係数に基づいて算出した周波数ごとのリップル電圧の振幅を示す。フィルター抵抗器を 8 M Ω から 16 M Ω に変更することで、表 3-5 における実使用時に換算した 100 Hz リップルを比較すると 48.0%($= (26.3/54.8) \times 100$)に低減している。 R_f を大きくすることでフィルター効果が増大し、リップルが低減したと考えられる。しかしながら、駆動周波数である 2.92 kHz 成分は 121.4%($= (95.2/78.4) \times 100$)に増大した。これは、フィルター回路の設置環境における浮遊容量が無視できなくなり、高周波数リップルに対してフィルター効果が低減したと推定している。リップル周波数が 1 桁違うことから単純足し算でリップル量を比較したところ、フィルター抵抗器が 8 M Ω のときのリップル電圧の振幅は 133.2 mV であるのに対し、16 M Ω のときの電圧の振幅は 121.5

mV であった。

以上の結果をまとめると、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡のフィルター抵抗器を 8 M Ω から 16 M Ω に変更することで、表 3-5 における実使用時換算の全周波数合計において、リップル電圧を 91.2%(=(121.5/133.2) $\times$ 100)に低減することができた。

表 3-4 フィルター抵抗 8 M Ω および 16 M Ω のリップル波形

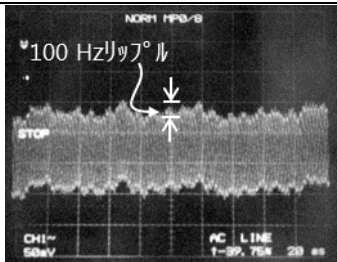
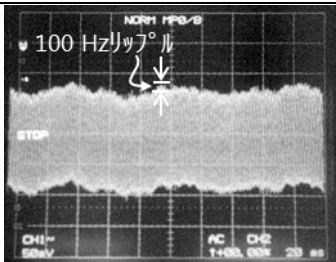
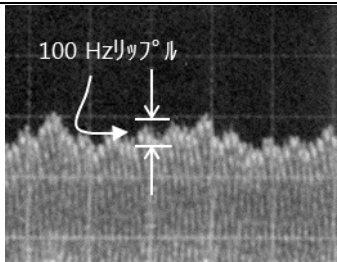
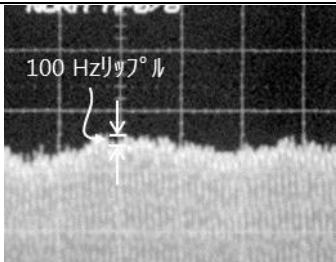
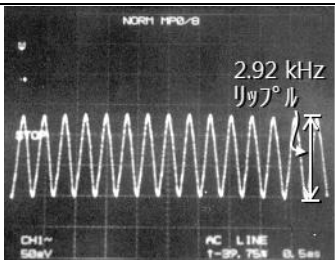
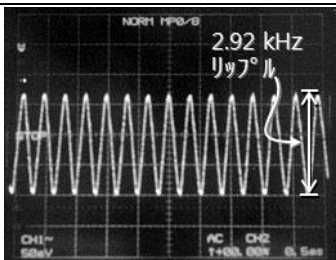
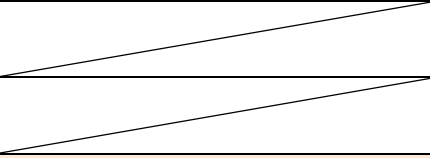
	フィルター抵抗 8 M Ω	フィルター抵抗 16 M Ω
100 Hz に着目に着目	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec
2 倍に拡大	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec
2.92 kHz に着目	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 0.5 msec	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 0.5 msec

表 3-5：リップル波形の測定値（振幅）および実使用時リップルの算出結果

	100 Hz	2.92 kHz	全周波数合計（実使用時換算）
R_f : 8 M Ω （実測）	25 mV	140 mV	
R_f : 16 M Ω （実測）	12 mV	170 mV	
R_f : 8 MΩ（実使用時換算）	54.8 mV	78.4 mV	133.2 mV
R_f : 16 MΩ（実使用時換算）	26.3 mV	95.2 mV	121.5 mV

（３）浮遊電場・磁場対策による測定結果

表 3-6 に、浮遊電場・磁場の対策であるジッパーシールド設置時のリップル波形を示す。フィルター抵抗器は、16 M Ω である。上段は 100 Hz のリップルに着目した時であり、中段には上段の波形を 2 倍に拡大して表示している。下段は 2.92 kHz に着目したリップル波形である。いずれも、縦軸は 1 目盛あたり 50 mV、横軸は 1 目盛あたり 20 msec である。逆位相電源を動作させて、商用周波数リップルは補正している。表 3-7 には、周波数ごとのリップル電圧を示す。表 3-5 における「 R_f : 16 M Ω 実使用時」と比較すると、100 Hz リップルが 66.5%($= (17.5/26.3) \times 100$)、2.92 kHz リップルは 70.6%($= (67.2/95.2) \times 100$)に低減しており、単純な合計では約 69.7%($= (84.7/121.5) \times 100$)に改善できたことが確認できた。更に、リップル波形に揺らぎを与えるような低周波数リップルについても低減しているように見受けられる。これらは周波数の特定が難しいことからリップル電圧は算出していないが、ジッパーシールド設置による効果であると考えている。

以上の結果をまとめると、商用周波数の逆位相電源の設置やフィルター抵抗器

の最適化および加速電源内のジッパーシールド設置により、加速電圧リップルの振幅を 84.7 mV に低減することに成功した。これは、商用周波数補正の効果を含めると、表 3-3 で示したリップル対策前の約 19.8% $(=(84.7/428.4) \times 100)$ に相当する。

表 3-6 ケーブルシールド設置時のリップル波形

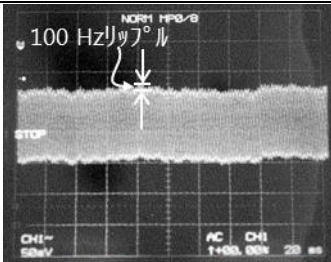
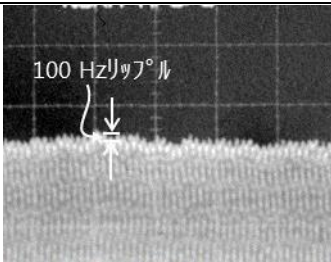
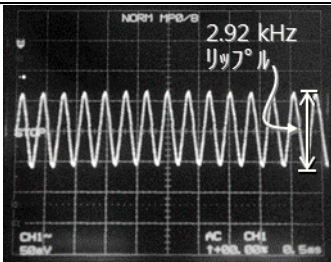
	フィルター抵抗 16 M Ω およびシールドを設置	
100 Hz に着目	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec	
2 倍に拡大	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 20 msec	
2.92 kHz に着目	 縦軸：1 目盛あたり 50 mV 横軸：1 目盛あたり 0.5 msec	

表 3-7 ケーブルシールド設置時のリップル測定値（振幅）と実使用時リップル電圧

	100Hz	2.92kHz	全周波数合計（実使用時換算）
実測値	8 mV	120 mV	
実使用時に換算	17.5 mV	67.2 mV	84.7 mV

4. まとめ

電子顕微鏡の情報伝達性能の阻害要因である色収差を低減するため、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて加速電圧安定性向上に関する技術開発を行った。

加速電圧に含まれる数 Hz のドリフトを低減するため、フィードバック制御回路の構成部品の温度安定化を図った。その結果、 $0.28 \times 10^{-6}/\text{min}$ 以下の安定性が得られ、対策前の 56%程度に抑えることに成功した。

更に、加速電圧駆動周波数のリップルを低減するため、商用周波数の逆位相電源を導入することによるリップル電圧補正とフィルター回路内抵抗器の抵抗値の最適化を図った。また、浮遊電場・磁場の影響を遮蔽するため、ケーブルシールドを設置した。その結果、商用周波数と駆動周波数に起因するリップル電圧振幅が 84.7 mV に低減されたことを確認した。この結果は、対策前の 19.8%程度のリップル量である。

これらの結果によって、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子ビームのエネルギーばらつきが低減し、情報伝達性能が向上することが期待される。それを評価するにあたって、従来よりも精度よく評価できる情報伝達性能手法を開発した。その手法の詳細とそれを適用して評価した 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の情報伝達性能について第IV章にて述べる。

更には、これらの加速電圧安定性向上に関する技術を適用することによって、球面収差が補正された TEM においては装置の分解能が向上すると考えられる。1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡は、まさに球面収差補正が施された最先端の装置であ

り、目標性能である 40 pm 級の分解能を達成するためには、加速電圧のドリフトとリップルの合算値に対して、 $0.5 \times 10^{-6}/\text{min}$ 以下という条件が求められる。このような加速電圧の安定性を精緻に評価するためには、本研究で開発された要素技術の利用が不可欠となる。

5. 第Ⅲ章の参考文献・参考資料

- [1] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*” p.219, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [2] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi, K. Suenaga,
“Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy”
Microscopy **62**(1), 23-41, (2013).
- [3] K. Kimoto, “Practical aspects of monochromators developed for transmission
electron microscopy” *Microscopy* **63**(5), 337-344, (2014).
- [4] 文部科学省 科学技術試験研究委託事業：「電子ビームの高輝度化・単色化に関する要素技術の開発」, (2006 年－2008 年).
- [5] 上田良二編, 「電子顕微鏡」実験物理学講座 23, p.121, 共立出版, (1982).
- [6] 上田良二編, 「電子顕微鏡」実験物理学講座 23, p.123, 共立出版, (1982).
- [7] T. Kawasaki, I. Matsui, T. Yoshida, T. Katsuta, S. Hayashi, T. Onai, T.
Furutsu, K. Myochin, M. Numata, H. Mogaki, M. Gorai, T. Akashi, O.
Kamimura, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, K. Kitazawa,
“Development of 1 MV field emission transmission electron microscope”
J. Electron Microsc. **49**(6), 711-718, (2000).
- [8] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Onai, H. Kasai, H. Shinada, N. Osakabe, A.
Tonomura, “Information transfer of 25.5 nm^{-1} in a 1-MV field-emission
transmission electron microscope” *Microscopy* **65**(4), 378-382. (2016).

第IV章 情報伝達性能の評価手法の開発

1. はじめに

透過電子顕微鏡(Transmission electron microscope: TEM)の性能指標のひとつである、どこまで高い空間周波数の情報を伝達できるか（以下、情報伝達性能）は、レンズの球面収差を補正した TEM において装置の分解能を決定する重要な要因である。第 I 章でも言及した通り、ここで論じる空間周波数とは、電子顕微鏡像に記録された実空間上の構造情報を、逆空間（フーリエ空間）で表現したものに対応する。また、空間周波数に対する情報伝達性能は、解像限界の指標となる[1]。すなわち、原子レベルでの構造解析や電磁場解析を行うためには、必要な装置分解能と同等以上の情報伝達性能を得ることが必須であり精度よく評価することが重要となる。

情報伝達性能の計測手法には、一般的に高分解能電子顕微鏡像のディフракトグラムを用いる方法が採用される。これは非晶質（アモルファス）試料の電子顕微鏡像を撮影後、フィルムまたは CCD カメラ等によって得られた画像データにフーリエ変換を施し、フーリエ空間における空間周波数の伝搬の様子を解析することにより、情報伝達性能を求める方法である[2]。この評価手法は、Scherzer によって与えられた TEM における情報伝達理論 [3]に基づいており、理論的にも古くから体系化され、実験的にも従来から行われてきた最も一般的な方法である。

このディフракトグラムによる評価手法は、アモルファス薄膜による電子ビームの散乱が、広範な空間周波数に対して十分な強度を持っていることを前提としている。これまでに行われた研究では、数 nm^{-1} 程度までの空間周波数領域では、十分な散乱強度が確認されている。しかしながら、それ以上の空間周波数領域では散乱強度が著しく低下する。従って、高空間周波数領域でのディフракトグラムによる情報伝達性能の評価には、試料の散乱強度が影響することによる不明瞭さが含まれているのが現状である。

一方、結晶性試料によって生じる Bragg 反射による回折波は不連続な強度分布を与えるが、同じ空間周波数で比較するとアモルファス試料の散乱強度よりも強い強度を示す。なお、ここでは結晶性試料が示す Bragg 反射を回折波と称し、アモルファスも含めた全ての物質で屈折率が真空の値と異なることで生じる散乱波とは区別することにする。本研究では、情報伝達性能を広範な周波数領域に亘って解析する技術として、光軸上を沿って伝搬する透過波と試料によって生じた回折波によって形成される格子縞を利用する手法を考案した。更に、この計測技術の有効性を検証するために、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたデータ収集と解析を行い、同電子顕微鏡の情報伝達性能を評価した[4]。

2. 色収差格子像を用いた空間周波数情報の伝達性能評価手法の開発

2.1 情報伝達性能

TEM 像にコントラストがつく要因は複数あるが、原子オーダーで試料を観察する高分解能電子顕微鏡法においては、位相コントラストをもとに議論されることが多い[5]。

いま、波動関数 $\Psi_1(\mathbf{r})$ であらわされる入射電子ビームが、結晶性試料を透過する事例を考える。試料によって散乱を受けるために、透過した電子（試料出射直後の電子）の波動関数 $\Psi_2(\mathbf{r})$ は、次のように表される[6]。

$$\Psi_2(\mathbf{r}) = q(\mathbf{r}) \cdot \Psi_1(\mathbf{r}) \quad (4.1)$$

ここで、 $q(\mathbf{r})$ は透過関数と呼ばれており、 $\mathbf{r}$ は入射方向に垂直な面内の位置ベクトルである。このとき、入射ビームに対して、試料が特に弱い位相変化しか起こさない場合（弱位相物体近似）の透過関数は、

$$q(\mathbf{r}) = 1 + i\sigma t V_p(\mathbf{r}) \quad (4.2)$$

と表される[7]。ここで、 σ は相互作用定数、 $V_p(\mathbf{r})$ は結晶ポテンシャル（静電ポテンシャル）、 t は膜厚である。式(4.2)の両辺をフーリエ変換することにより、レンズの後焦点面における回折スポットの振幅は次のように求まる。

$$Q(\mathbf{q}) = F_r\{1 + i\sigma t V_p(\mathbf{r})\} \approx \delta(\mathbf{q}) + i\sigma t V_q(\mathbf{q}) \quad (4.3)$$

ここで、 $\mathbf{q}$ は散乱ベクトル、 t は試料の膜厚であり、 $F_r\{\}$ はフーリエ変換を表す。また、 $\delta(\mathbf{q})$ はデルタ関数、 $V_q(\mathbf{q})$ は、 $V_p(\mathbf{r})$ のフーリエ係数をそれぞれ表している。

一方、後焦点面の回折スポットから出た電子が像面で干渉して像を形成するとき、散乱ベクトルの長さとなる q を用いて、後焦点面上での振幅を $Q(q)$ 、レンズを通過することによって生じる位相変化量を $2\pi\chi(q)$ とすると、像面上における合成振幅 $\psi(r_i)$ は次のように書くことができる[8]。

$$\psi(r_i) = F_q[Q(q)A(q)\exp\{2\pi i\chi(q)\}] \quad (4.4)$$

ここで、 $F_q[\]$ は q に関するフーリエ変換を意味する。 $A(q)$ は後焦点面に挿入された絞りの効果を示す関数である。このとき、絞りの穴径が無限大（ $A(q) = 1$ ）であるときには、

$$\psi(r_i) = F_q[\{\delta(q) + i\sigma t V_q(q)\}\exp\{2\pi i\chi(q)\}] \quad (4.5)$$

となり、像面上での強度は次のようになる[9]。

$$I(r_i) \approx 1 - 2\sigma t F_q[V_q(q) \sin\{2\pi\chi(q)\}] \quad (4.6)$$

よって、像のコントラストは $\sin\{2\pi\chi(q)\}$ に依存することが示される。この $\sin[2\pi\chi(q)]$ は、コントラスト伝達関数(Contrast transfer function: CTF)と呼ばれており、対物レンズの球面収差によって決定される。 $\chi(q)$ は収差関数と呼ばれており、以下のよう
に示される[10]。

$$\chi(q) = \frac{1}{4}C_s\lambda^3q^4 - \frac{1}{2}\varepsilon\lambda q^2 \quad (4.7)$$

ここで、 C_s は球面収差係数であり、 λ は電子ビームの波長である。 ε はデフォーカス量

であり、 $\varepsilon > 0$ が対物レンズ弱励磁のアンダーフォーカスとしている。

実際の電子顕微鏡では、電子ビームの波長には有限の広がりがあり、レンズに流れる電流も一定ではないからレンズの強さにもある範囲の広がりがある。これらは干渉性に影響することから、 q の値が大きくなるに従い CTF はダンピングを被る。よって、CTF にこれらの影響を乗じた実効的な CTF（ここでは Phase contrast transfer function: PCTF と呼ぶことにする）は次のようになる[11]。

$$\text{PCTF}(q) = E_s(q)E_c(q) \sin[2\pi\chi(q)] \quad (4.8)$$

式(4.8)における $E_s(q)$ と $E_c(q)$ は包絡関数であり、それぞれ、下記のように表される。ここで、 β は電子ビームの開き半角である。

$$E_s(q) = \exp[-\beta^2\pi^2(C_s\lambda^2q^3 - \varepsilon q)^2] \quad (4.9)$$

$$E_c(q) = \exp\left[-\frac{1}{2}\pi^2\lambda^2\Delta^2q^4\right] \quad (4.10)$$

$$\Delta = C_c \sqrt{\left(\frac{\Delta V}{V_0} f_r\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E_0} f_r\right)^2 + \left(2\frac{\Delta I}{I}\right)^2} \quad (4.11)$$

ここで、式(4.11)で表される Δ は加速電圧やレンズ電源などの安定性を示す指標であり、フォーカスのばらつき幅を示す。 $\Delta V/V_0$ は加速電圧の安定性、 $\Delta I/I$ はレンズ電流の安定性、 $\Delta E/E_0$ は加速された電子のエネルギー E_0 に対する電子の初期エネルギーの安定性である。また、 f_r は、相対論を考慮した補正項であり、電子の静止エネルギーを $E_c(=511 \text{ keV})$ としたとき、

$$f_r = \frac{1 + E_0/E_c}{1 + E_0/2E_c} \quad (4.12)$$

である。

PCTF の一例として、磁界重畳型電界放出電子銃を搭載している 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の情報伝達性能を図 4-1(a)に示す。青線が PCTF であり、算出するために用いたパラメータは、 $\lambda : 0.872 \text{ pm}$ 、 $C_s : 1.6 \text{ mm}$ である[12]。ここで、 ε は 44 nm のアンダーフォーカスとした。 β は、RMS 値*を用いており[13]、 $1.27 \times 10^{-5} \text{ rad}$ とした。赤線(E_{C_s})が式(4.9)で示した包絡関数 $E_s(q)$ に対応しており、 C_s と β および ε によって決定される。緑線(E_{C_c})は式(4.10)で示した包絡関数 $E_c(q)$ であり、 $\Delta V/V_0$ などの安定性に起因する Δ によって決定される。計算に用いたパラメータは、RMS 値[13]を用いて、 $\Delta V/V_0 : 1.3 \times 10^{-7}$ 、 $\Delta E/E_0 : 1.5 \times 10^{-7}$ 、 $\Delta I/I : 5 \times 10^{-8}$ とした。 C_c は 2.9 mm である。散乱ベクトルの長さである q は空間周波数に相当することから、PCTF が最初にゼロと交差する q の値(空間周波数上の値)が装置の分解能である[14]。図 4-1(a)では、 8.5 nm^{-1} (実空間では 120 pm に対応)である。一方、コントラストの反転、すなわち PCTF の正負の符号が反転を繰り返しているものの、装置分解能より高周波数側の領域にも結晶構造に関わる情報が含まれている(結晶構造に関わる情報が伝達されている)。しかし、この高周波数領域の領域では包絡関数 $E_s(q)$ および $E_c(q)$ によって情報が減衰されてしまう。言い換えれば、包絡関数 $E_s(q)$ および $E_c(q)$ は構造情報の伝達性能に関わる重要な因子である。

図 4-1(b)に、(a)において ΔE と β を一桁程度大きな値である $\Delta E = 0.42 \text{ eV}$ (RMS 値)として、また $\beta = 1.27 \times 10^{-4} \text{ rad}$ (RMS 値)と仮定して計算した PCTF を示す。これは熱電子銃を搭載している超高压電子顕微鏡の PCTF に相当する。包絡関数の減衰によって、伝達している空間周波数が大幅に小さくなっていることがわかる。すなわち、エネルギー幅と開き角を小さくできる電界放出電子銃を搭載することによって、点分解能よりも細かい空間周波数情報を伝達する性能を得ることができる。

* RMS 値：二乗平均平方根(Root Mean Square)。ノイズの波形が正弦波であると仮定した場合、その振幅となるピークピーク値(V_{pp})と RMS 値(V_{rms})には $V_{rms} = V_{pp}/2\sqrt{2}$ の関係がある。実効値とも呼ばれる。

1 MV ホログラフィー電子顕微鏡において、球面収差が補正された状況を想定する (図 4-1(c))。色収差に関する包絡関数 $E_c(q)$ のパラメータは(a)と同じ値とし、 $C_s = 0$ として計算した。デフォーカス量は -1 nm である。 $C_s \sim 0$ の条件が達成されたことによって、 E_{C_s} がダンピングせずに“1”を維持していることがわかる。また、 E_{C_c} の影響により PCTF はダンピングするものの、コントラストの反転が起こらない領域が大幅に拡張している。すなわち、球面収差が補正されたことによって、PCTF がゼロと交差する箇所は高周波数側に移動し、実質的に点分解能が情報伝達性能（包絡線によるダンピング）によって決定されることになる。よって、電界放出電子銃と球面収差補正器を搭載した TEM において分解能を向上させるためには情報伝達性能を改善することが必須であると同時に、高空間周波数領域の情報伝達性能を高精度に評価することが重要となる。

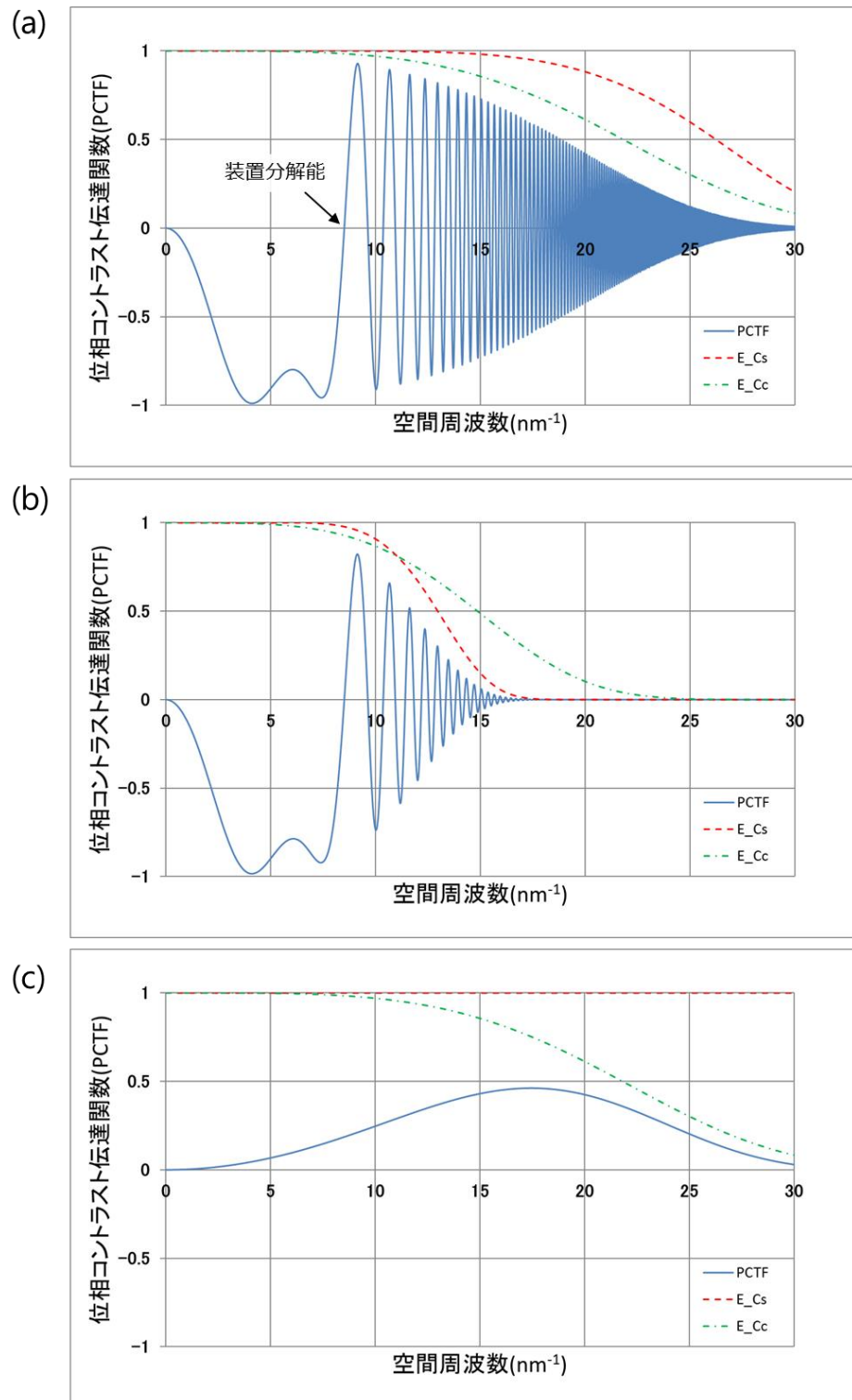


図 4-1 異なる光学条件で算出した PCTF。(a) 電界放出電子銃を搭載した電子顕微鏡における情報伝達性能の例、(b) 熱電子銃を搭載した電子顕微鏡の例、(c) 電界放出電子銃と球面収差補正を搭載した電子顕微鏡の例。

2.2 原子散乱振幅

一般的に、情報伝達性能の評価に用いられるディフラクトグラムは、カーボン蒸着薄膜などのアモルファス薄膜から得た高分解能電子顕微鏡像から取得する。高分解能電子顕微鏡像における像コントラスト、あるいはディフラクトグラムにおけるスペクトルの強度には、いずれも物質による電子散乱の強さ、すなわち散乱振幅 f_{sc} が関係している。電子に対する散乱振幅 f_{sc} は、X線の原子散乱因子 f_x を用いて以下のように表される[15]。

$$f_{sc}(q) = \frac{m_0 e^3}{2h^2} \cdot \frac{Z - f_x}{q^2} \quad (4.13)$$

ここで、 Z は散乱体の原子番号、 m_0 は電子の静止質量、 e は素電荷、 h はプランク定数である。式(4.13)より、 q が大きくなるに従い散乱振幅が小さくなることがわかる。収差補正によって可能となる高空間分解能での評価や、相互作用定数が小さく位相コントラストが付きにくい超高压電子顕微鏡での評価では、散乱振幅が大きくなることを期待して、カーボンよりも Z が大きなゲルマニウム[16]、タングステン[17]などのアモルファス薄膜が利用されている。しかし、これらのアモルファス膜を用いても原子散乱振幅は空間周波数 q の二乗に逆比例して減衰するため、高空間周波数において大きなS/N比を確保することは難しいのが現状である。

そこで、試料の散乱振幅を大きくするため、結晶性試料に電子ビームを照射することによって生じる Bragg 反射に着目した情報伝達性能の評価方法を考案した。

2.3 格子縞を用いた情報伝達性能評価手法の開発

情報伝達性能を高精度に評価するためには、高空間周波数領域における散乱強度を増加させる必要がある。そこで、結晶性試料に電子ビームを照射することによって生じる Bragg 反射による回折波に着目した。

一般的に行われているアモルファス試料を用いた情報伝達性能は、光軸に沿って伝搬する透過波とアモルファス試料によって散乱する散乱波によって得られる電子顕微鏡像を撮影し、フーリエ変換を施すことで解析される。一方、結晶性試料においては、透過波に加えて、Bragg 反射に伴う強い回折波が複数生じる。このとき、透過波が光軸に沿って伝播するように照射電子ビームの調整を行うと、空間周波数は不連続ではあるが、アモルファスから生じる散乱波よりも強いピークを有する回折波を使って電子顕微鏡像を得ることができる。結果的に、アモルファス試料を使う場合に比べて、高空間周波数領域における散乱強度（回折強度）を増加させることができる。

このように、透過波が光軸に沿う形で伝搬する観察条件では、ここで注目する色収差の影響を強く反映した格子縞を取得することができる。よって、光軸上透過波と回折波によって形成される格子縞の観察可否を判断することで、色収差と情報伝達性能の関係を議論することが可能となる。本稿では、このような条件で形成された格子縞を第Ⅱ章で用いた「色消し格子縞」と区別するために「色収差格子縞」と呼ぶことにする。色収差補正器を備えていない電子顕微鏡で試料を観察する際、通常は色収差の影響を受けた条件で画像を形成することになり、色収差格子縞を観察することができれば、その空間周波数情報を伝達する性能を有していると判断できる。

しかしながら、回折波を使う解析では空間周波数情報が不連続であるため、1枚の電顕画像を用いるだけでは連続的な空間周波数や、その方向性に関する情報伝達評価を実施できない。よって、適切な空間周波数情報となる回折波を選択するためには、複数の結晶方位や試料を用意する必要がある。一例として、金単結晶薄膜を用いたときに実験で利用できる回折波 hkl と、それに対応する空間周波数および格子縞間隔を表4-1に纏めた。入射方向は $[100]$ 、 $[111]$ 、 $[110]$ である。これらを用いることで十分な空間周波数領域を選択できることがわかる。更に試料としてイリジウム単結晶を用いれば格子定数が 0.3839 nm になることから、同じ指数の回折波を選択しても金単結晶と比べて 94%狭い格子縞を得ることができる。また、タングステン単結晶など、金とは異なる結晶構造を有する薄膜を併用すれば、確認できる格子縞間隔の種類が大幅に増加する。このように、格子定数や結晶構造の異なる物質を用いることで、広範な空間周波数について情報伝達性能を評価することができる。

表 4-1 情報伝達の性能評価に利用可能な空間周波数一覧 ($a = 0.4078 \text{ nm}$)

	Au [100]		Au [111]		Au [110]	
{hkl}	$q_{\text{hkl}} (\text{nm}^{-1})$	$d_{\text{hkl}} (\text{nm})$	$q_{\text{hkl}} (\text{nm}^{-1})$	$d_{\text{hkl}} (\text{nm})$	$q_{\text{hkl}} (\text{nm}^{-1})$	$d_{\text{hkl}} (\text{nm})$
111	---	---	---	---	4.25	0.2354
200	4.90	0.2039	---	---	4.90	0.2039
220	6.94	0.1442	6.94	0.1442	6.94	0.1442
311	---	---	---	---	8.13	0.1230
222	---	---	---	---	8.49	0.1177
400	9.81	0.1020	---	---	9.81	0.1020
331	---	---	---	---	10.69	0.0936
420	10.97	0.0912	---	---	---	---
422	---	---	12.01	0.0832	12.01	0.0832
333	---	---	---	---	12.74	0.0785
511	---	---	12.74	0.0785	12.74	0.0785
440	13.87	0.0721	13.87	0.0721	13.87	0.0721
442	---	---	---	---	14.71	0.0680
600	14.71	0.0680	---	---	14.71	0.0680
620	15.51	0.0645	---	---	---	---
533	---	---	---	---	16.08	0.0622
622	---	---	---	---	16.27	0.0615
444	---	---	---	---	16.99	0.0589
551	---	---	---	---	17.51	0.0571
711	---	---	---	---	17.51	0.0571
640	17.68	0.0566	---	---	---	---
642	---	---	18.35	0.0545	---	---
553	---	---	---	---	18.84	0.0531
800	19.62	0.0510	---	---	19.62	0.0510
733	---	---	---	---	20.07	0.0498
644	---	---	---	---	20.22	0.0495
820	20.22	0.0495	---	---	---	---
660	20.81	0.0481	20.81	0.0481	20.81	0.0481
822	---	---	---	---	20.81	0.0481
555	---	---	---	---	21.24	0.0471
662	---	---	---	---	21.38	0.0468
840	21.93	0.0456	---	---	---	---
664	---	---	---	---	23.00	0.0435
844	---	---	24.03	0.0416	24.03	0.0416
755	---	---	---	---	24.40	0.0410
771	---	---	---	---	24.40	0.0410
933	---	---	---	---	24.40	0.0410
860	24.52	0.0408	---	---	---	---
862	---	---	25.01	0.0400	---	---
773	---	---	---	---	25.37	0.0394

2.4 色収差格子縞の観察方法

色収差格子縞を得るためには、透過波が光軸に沿って伝搬するように照射光学系を調整し、透過波と回折波による干渉縞を形成する必要がある。ところが、実際の観察においては回折波同士の干渉による格子縞も形成される。とりわけ、光軸対称な回折波と回折波が干渉すると色収差の影響を受けない色消し格子縞（第Ⅱ章を参照）が形成される。これらは本来確認したい色収差格子縞とは異なるが、得られた電顕画像から両者を区別することは困難である。そこで、電子顕微鏡中で回折図形が形成される後焦点面（回折面）の位置に、矩形などの特殊な形状のスリットを導入することで不要な回折波による干渉縞形成を防止し、透過波と確認したい色収差格子縞を形成する回折波のみを選択した。

図 4-2 に色収差格子縞の観察光学系を示す。試料を照射する電子ビームは、透過波が光軸に沿って伝搬するように調整されている。電子ビームが結晶性試料を通過すると透過波と複数の回折波が形成される。このうち、透過波と確認したい空間周波数に対応する回折波 hkl とを正確に選択するため、通常の対象物絞り位置である回折面にスリットを配置する。透過波が光軸と一致しているため、スリットは光軸に対して非対称な配置となる。これによって、例えば回折波 hkl は格子縞の形成に寄与するが、回折波 $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ はスリットによって遮蔽されるため、格子縞の形成に寄与しない。すなわち、スリットの形状や配置を適切に選定することにより、光軸対称な配置の回折波同士による色消し格子縞の形成を抑止することが可能となり、色収差格子縞を的確に観察することが可能となる。

色収差格子縞の観察においても、適切なデフォーカス量に調整することによって、球面収差によって生じるフォーカスのズレを修正することができる。実際の観察では、目標とする色収差格子縞の間隔から事前に算出した。色収差格子縞の間隔を d_c とし、 M を対物レンズの倍率として試料面に換算すると、色収差格子縞の観察における球面収差によって生じるフォーカスのズレを修正するデフォーカス量 ε_c は、

$$\varepsilon_c = C_s \left(\frac{\lambda}{d_c} \right)^2 \quad (4.14)$$

で算出することができる。ここで、 C_s は対物レンズの球面収差係数であり、 λ は電子ビームの波長である。

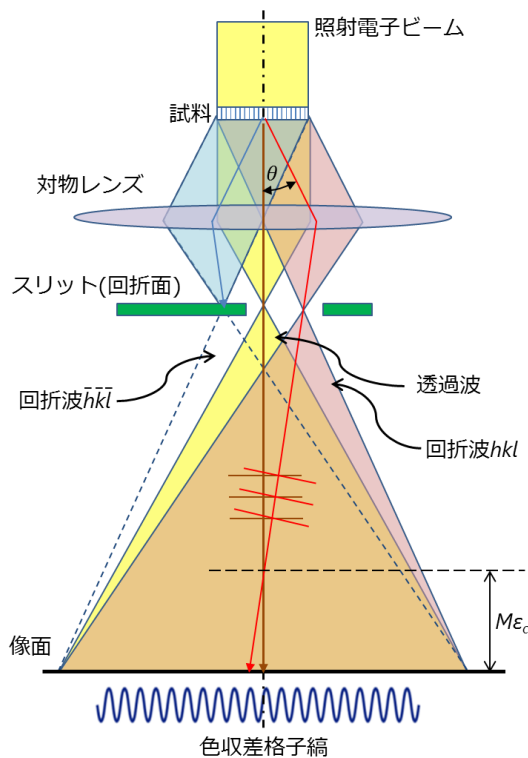


図 4-2 色収差格子縞の観察光学系。通常の対物絞りの位置（回折面）にスリットを挿入し、透過波と回折波 hkl を選択している。

上記で説明した光学系を用いて色収差格子縞を観察したときの観察条件を説明する。図 4-3 に、(a)試料であるイリジウム単結晶薄膜に $[111]$ 方向から電子ビームを入射して観察する際の回折スポットとスリットの配置と、(b)実際に得られた電子線回折図形を示す。赤点は透過波 000 を示しており、光軸と一致するように調整されている。回折面（後焦点面）上のスリットには、集束イオンビーム装置（Focused ion beam system: FIB）を用いて加工した $15\text{ }\mu\text{m}\times 90\text{ }\mu\text{m}$ の矩形穴を用いた。ここでは、注目する回折波は $8\bar{4}4$ であり、 $\{844\}$ 面の面間隔に相当する色収差格子縞を解析

の対象とする。なお図 4-3(a)に示す実験配置では、 $4\bar{2}2$ や $20\bar{2}$ など、他の回折波によって形成される色収差格子縞も形成されることになる。これらは確認したい色収差格子縞ではないが、方位や縞間隔を検証するスケールとして利用するために選択している。

図 4-3(b)に、イリジウム単結晶薄膜の電子線回折図形を示す。電子ビームは $[111]$ 方向から入射している。スリットの有無の二条件で二重露光にて撮影しており、スリットによって遮蔽される領域も併せて表示している。スリットの配置は(a)と同様であり、透過波 000 と回折波 $84\bar{4}$ の干渉に注目した実験を想定している。ここで観察したい格子縞の間隔は 39.2 pm である。透過波と回折波の二波干渉によって得られる干渉縞が観察対象であるから、晶帯軸入射ではなく、注目する回折波が強く励起されるように試料傾斜を調整した。実際には、試料の傾斜機構を用いて適切な角度に調整したり、試料内において適切な回折条件が満たされている場所、すなわち最適な傾斜になっている場所を探してデータを取得した。

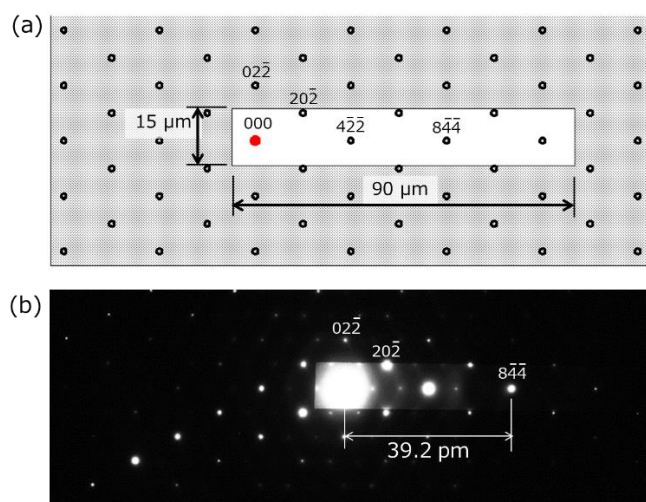


図 4-3(a) イリジウム単結晶薄膜を $[111]$ 入射で観察したときの電子線回折図形とスリットの模式図、(b) イリジウム薄膜の $[111]$ 入射による電子線回折図形。スリットの有無の二条件にて二重露光にて撮影した。

3. 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いた色収差格子縞観察結果

2.4 節において説明した観察方法にて、イリジウム単結晶薄膜を用いた色収差格子縞の観察結果を説明する。

図 4-4 に本実験で得られた色収差格子縞を示す。観察条件は、図 4-3(b)で示した配置である。図 4-4(a)には、透過波 000 と回折波 $8\bar{4}4$ によって形成された、イリジウムの{844}面間隔相当の 39.2 pm 色収差格子縞が示されている。撮影倍率は 100 万倍、デフォーカス量は 990 nm であり、 $C_s \sim 1.8$ mm、 $\lambda=0.87$ pm で算出したデフォーカス量を中心に約 50 nm ステップのスルーフォーカス法で取得した。(b)は(a)よりも広い視野から得たディフラクトグラムであり、矢印で示したスポットは 39.2 pm 色収差格子縞に対応している。ディフラクトグラムには、挿入したスリットの位置に対応する像が、回転対称性のある二重像として現れている。これは、電子顕微鏡像からディフラクトグラムを得るために二次元フーリエ変換を施したためであり、図 4-4(a)で示した電子顕微鏡像がスリットを光軸に対し非対称な配置に挿入して撮影されたことと矛盾しない。また、図 4-3(b)で示した配置でスリットを挿入しているため、目的である回折波 $8\bar{4}4$ の他にも回折波 $4\bar{2}2$ が同時に取り込まれている。そのため、ディフラクトグラムに $4\bar{2}2$ (=78.4pm)に対応するスポットが現れている。経験的に、フィルムの記録・現像条件によっては光回折図形やディフラクトグラムの解析において倍周期のスポットが観察されることがある。しかしながら、イリジウムの{202}格子縞をスケールとすることで得られた格子縞間の角度や格子縞間隔を解析した結果、39.2 pm 間隔の色収差格子縞であることを確認している。この結果は、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡が実空間上の 39.2 pm に相当する 25.5 nm^{-1} の空間周波数情報を正確に伝達する性能を有していることを示している。

2010 年から開始された 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡には、これまでに開発した機械的安定度評価手法(第Ⅱ章)、加速電圧安定性の向上に関する技術(第Ⅲ章)

および情報伝達性能評価手法が適用されている。従って、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡とほぼ同等の情報伝達性能が得られる見通しが得られている。更に、収差補正器が搭載されていることから、装置の分解能は情報伝達性能レベルまで拡張する。次節では、色収差格子縞観察による 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能評価結果について報告する。

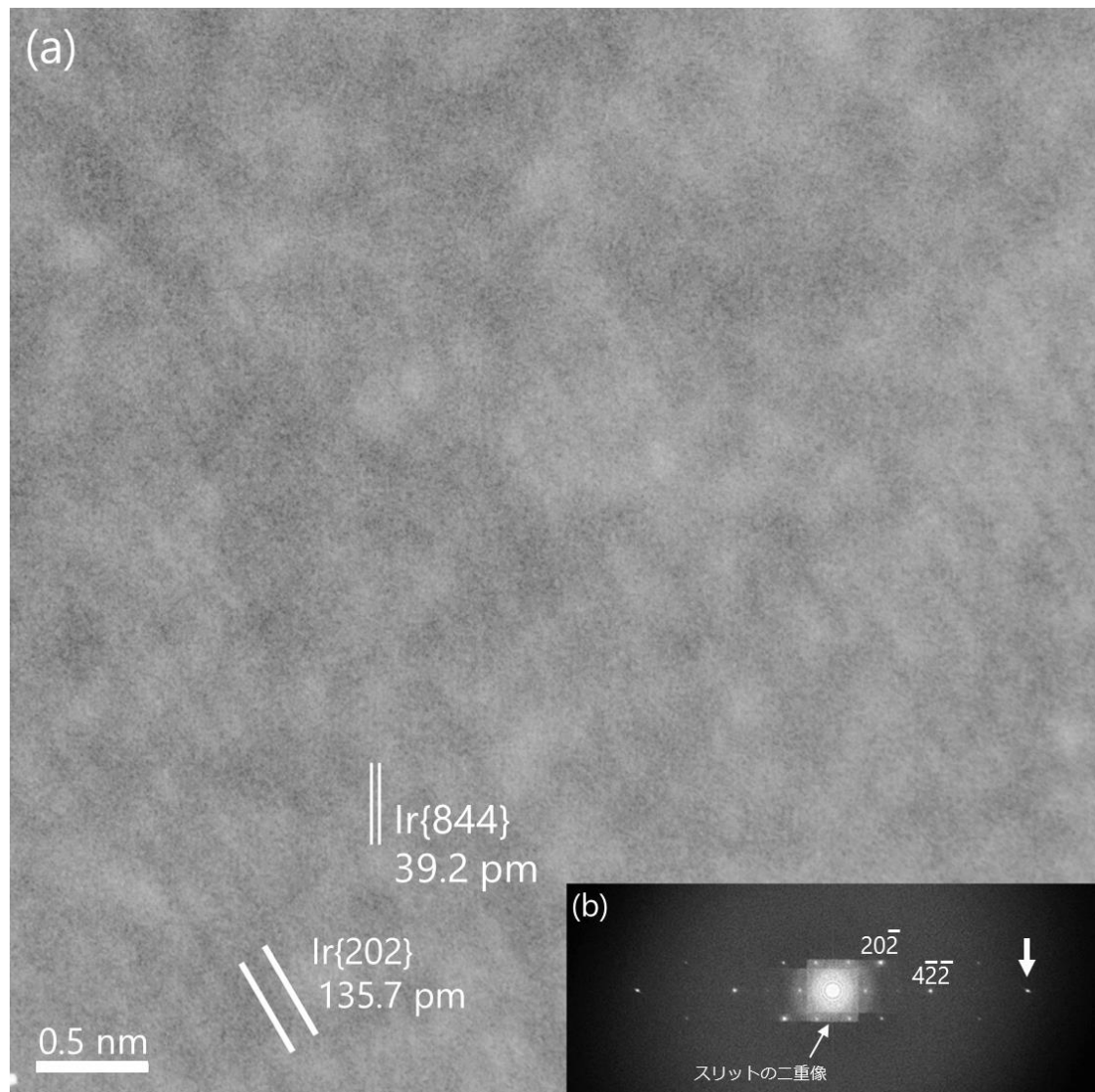


図 4-4(a) イリジウム{844}面間隔相当の 39.2 pm 間隔の色収差格子縞、
(b) ディフラクトグラム。

4. 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能評価結果

日立製作所の外村らの研究チームは、2010 年から、加速電圧 1,200 kV の 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発を開始した。超高压電子顕微鏡としては世界初となる球面収差補正器を搭載し、高安定・高輝度電子銃、低振動の建屋、球面収差補正器、高安定加速電圧などの新規開発技術を導入することで[18]、原子オーダーの電磁場観察を目指した。その性能目標は 40 pm レベルの空間分解能を達成することである。そのため、加速電圧を伝送する高压ケーブルには抵抗ケーブル[19]を採用するなど、機械的安定性や加速電圧安定性の向上に関する高度な技術などが盛り込まれている。

図 4-5 に 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の全体構成を示す。基本構成は、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡をベースにしている。高電圧発生タンク内に設置されているコッククロフト・ウォルトン回路（Cockcroft-Walton (C-W) 回路）によって昇圧された加速電圧は、高压ケーブルを介して、電子銃制御タンクへ伝達される。電子銃を駆動するための電圧と共に、加速管タンク内の電子銃・加速管に伝達される。電子銃・加速管および鏡体は、コンクリート基礎上に設置された除振台によって、除振されている。

電子顕微鏡の操作には遠隔操作を採用しており、実験者は別室で操作する。また、電子顕微鏡の制御電源やレンズ電源等は電子顕微鏡鏡体とは別室に設置されており、それぞれの壁には、グラスウールなどによる防音・遮音を行っている。空調設備は、高分解能観察時には停止することを前提としており、建物の断熱性能により、空調設備を停止したときでも、電子顕微鏡周辺では 8 時間で ± 0.2 °C の温度変化に抑えられている。

その他、第Ⅱ章および第Ⅲ章にて説明した 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて開発した高安定化技術を踏襲している。機械的振動の発生源を低減するため真空排気システムを新規に設計し、すべての排気システムにおいてフルレンジマキシングゲージを採用した。また、ターボ分子ポンプの停止・稼動を自動シーケンスで行えるようにすることで電子顕微鏡像の観察中における機械的振動の最小化を図り、30 pm を下回る間隔の色消し格子縞が観察できることを確認できた。加速電圧発生回路においては、加

速電圧安定化回路（フィードバック制御回路など）周辺にグラスウールを配置すると共に恒温槽内に設置することによる加速電圧のドリフト低減と、逆位相電源を設置することによる商用周波数リップルの補正を行った。その結果、ドリフトとリップルの振幅の合算で、 0.5×10^{-6} 程度の安定性を達成した。

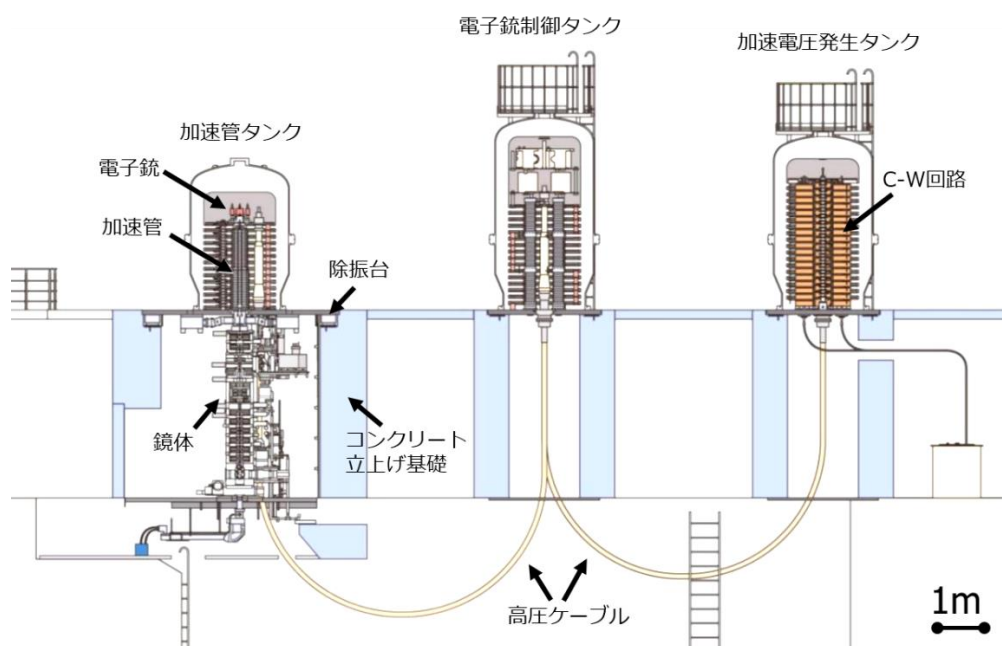


図 4-5 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の全体構成

1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡には、球面収差補正器が搭載されていることから、球面収差係数をほぼゼロで観察することができる。よって、図 4-1(c)で示した PCTF と同様に、コントラストの反転が生じない領域が大幅に拡張し分解能が向上する。

図 4-6 に 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の PCTF を示す。計算に用いたパラメータは、 C_s : $-23 \mu\text{m}$ 、 C_e : 3.5 mm 、 β : 0.043 mrad (RMS 値)である[17]。また、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発目標である 40 pm レベルの分解能に対し、色消し格子縞の観察結果による分解能阻害要因の影響が 30 pm であったことから装

置安定性に起因する包絡関数 (E_{C_m}) [20]を含めて算出した PCTF を算出している。計算に用いたパラメータは、 $\Delta V : 1.8 \times 10^{-7}$ (RMS 値)、 $\Delta E : 1.5 \times 10^{-7}$ (RMS 値)、 $\Delta I/I : 5 \times 10^{-8}$ (RMS 値)とした。開き角と球面収差に起因する包絡関数(E_{C_s})は、レンズの球面収差を補正することによって、ほとんど減衰しておらず“1”を維持している。従って、色収差に起因する包絡関数(E_{C_c})と装置安定性に起因する包絡関数(E_{C_m})および CTF が PCTF を決定する要因である。このとき、コントラストが $1/e^2$ (=0.135)に低下する空間周波数[21]を装置の分解能とすると、 23 nm^{-1} (=43 pm)となる[22]。従って、色収差格子縞を観察し情報伝達性能を評価することで 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能を決定することができる。

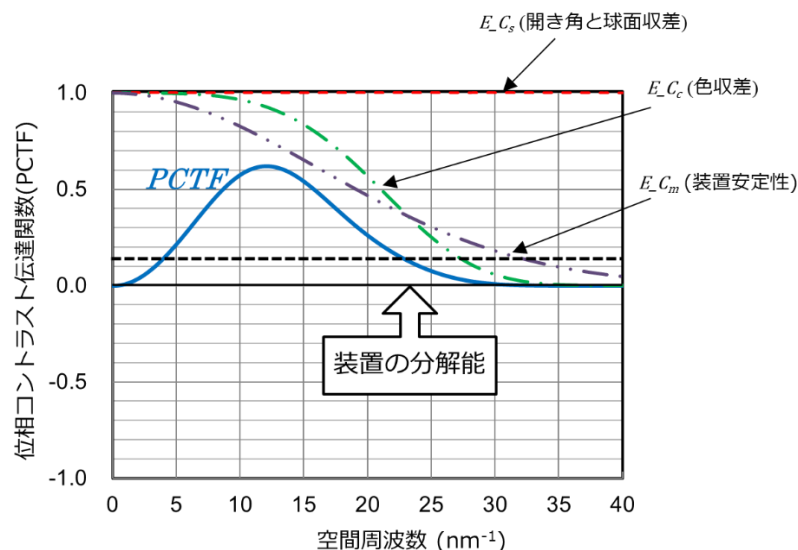


図 4-6 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の PCTF

図 4-7(a)に、色収差格子縞の観察光学系を示す。試料にはタングステン薄膜を用いており[111]方向から電子ビームを入射している。タングステンの結晶構造は体心立方構造であることから、面心立方構造の結晶試料よりも多くの回折波が生成される。そこで、回折波を選択するスリットの形状は、(b)の走査電子顕微鏡像で示したように、

透過波が通過できる程度の穴(直径 10 μm)と目標とする回折波が通過できる小さな矩形の穴(10 μm ×30 μm)を、FIB を用いて銅薄膜に作製した。タングステンの回折図形とスリットの配置を示す模式図を(c)に示す。スリットの円形の穴で透過波 000 を選択し、且つ目標とする回折波 633 とスケールとする回折波 642 および 651 のみを選択した。

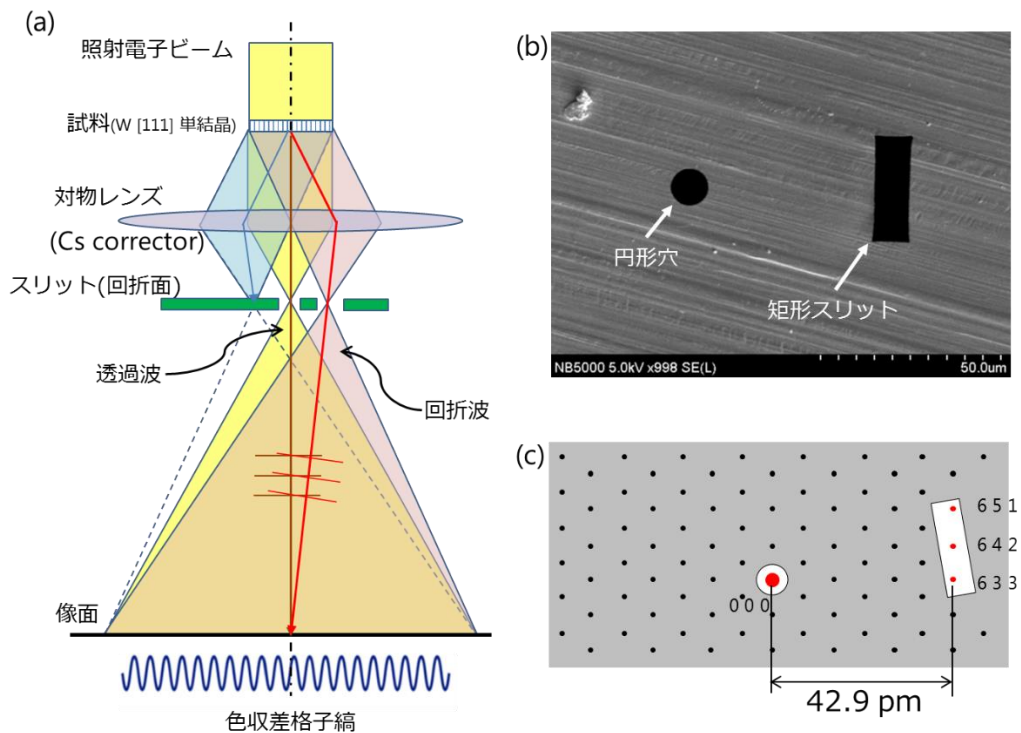


図 4-7(a) 色収差格子縞の観察光学系、(b)回折波を選択したスリットの走査電子顕微鏡像、(c)タングステンの[111]方向の電子線回折図形とスリットの配置を示す模式図

図 4-8(a)に色収差格子縞の観察結果を示す[22]。透過波と回折波 633 によって形成されたタングステン{633}面間隔に相当する 42.9 pm 間隔の色収差格子縞である。(b)は、(a)よりも広い視野から得たディフラクトグラムである。矢印で示したスポットは 42.9 pm の色収差格子縞に対応している。ディフラクトグラムには挿入したスリットの二重像が現れており、透過波 000 と回折波 633 によって形成された格子縞である

こと示している。色収差格子縞を観察するときの光学条件は、図 4-6 で示した PCTF を算出した光学条件に基づいて調整していることから、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能は 42.9 pm であるといえる。この結果より、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標分解能である 40 pm レベルを満足していることが確認できた。

本研究によって、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能である 40 pm レベルの分解能が得られ、電子線ホログラフィーにおいても試料内外の電磁場によって生じる電子の位相変調を高い空間分解能で検出できる可能性が示された。次章では、電子に生じた微弱な位相変調を高い感度で検出するために必須となる電子ビームの干渉性を正確に評価するための計測手法を開発すると共に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡に適用した結果について説明する。

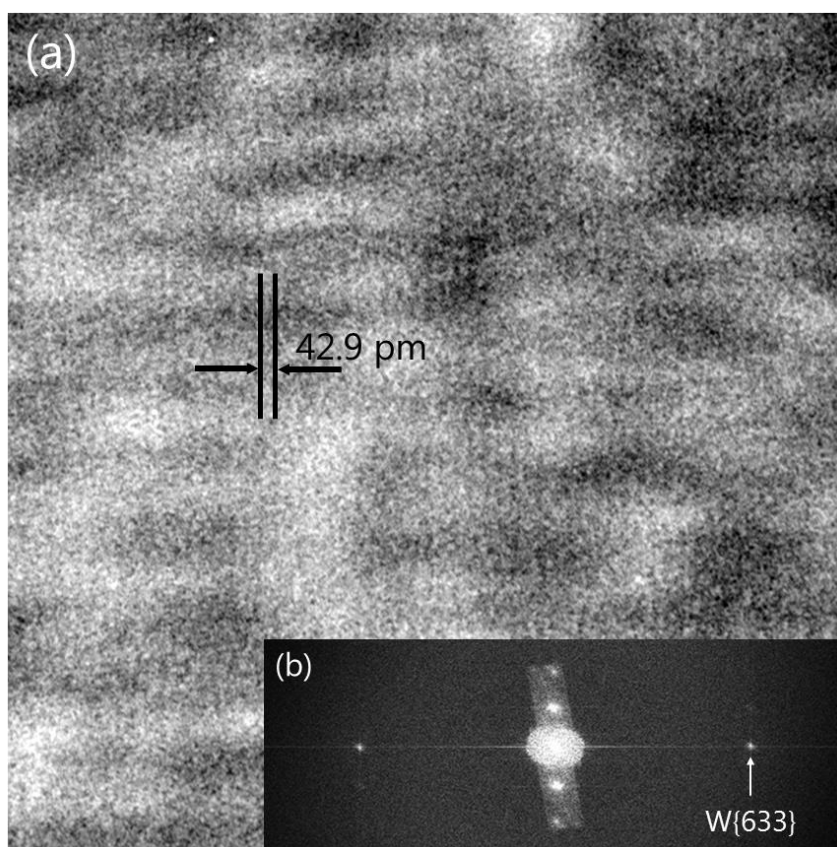


図 4-8(a) タングステン{633}面間隔相当の 42.9 pm 間隔の色収差格子縞、
(b) ディフラクトグラム。

5. まとめ

レンズの球面収差が補正された TEM においては、分解能を決定する主要因は空間周波数の情報伝達性能となる。この情報伝達性能を広範囲にわたって評価・解析するための技術として、光軸上に沿って伝搬する透過波と、試料によって生じた回折波によって形成される色収差格子縞を利用する手法を考案した。この計測技術の有効性を検証するため、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたデータ収集（フォーカス調整を通して球面収差によって生じる光路差を補正した条件で行ったデータ収集）と解析を行った結果、イリジウムの{884}間隔に相当する 39.2 pm 間隔の色収差格子縞を得ることができた。この結果は、同超高压電子顕微鏡が、少なくとも 39.2 pm ($=25.5 \text{ nm}^{-1}$)の空間周波数情報を伝達する性能を有していることを示している。

上記の成果を踏まえて、本章では更に、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を通して開発した要素技術（機械的安定性や加速電圧安定性の向上に関する技術など）を盛り込んだ、最新鋭の 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の分解能を評価した。1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡には収差補正器が搭載されているため、空間周波数の情報伝達性能は、そのまま装置の分解能に対応する。色収差格子縞を観察することで、情報伝達性能を評価した結果、タングステンの{633}面間隔に相当する 42.9 pm の色収差格子縞を得ることに成功し、装置の分解能が 23.3 nm^{-1} であることを確認できた。この結果によって、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能である 40 pm レベルの分解能が達成できたことを示した。1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いた電子線ホログラフィーによって、試料内外の電磁場によって生じる位相変調を原子レベルで観察できる可能性があることを示している。

6. 第IV章の参考文献・参考資料

- [1] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.169, 共立出版, (1988).
- [2] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.203, 共立出版, (1988).
- [3] O. Scherzer, “The theoretical resolution limit of the electron microscope”
J. Appl. Phys. **20**(20), 20, (1949).
- [4] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Onai, H. Kasai, H. Shinada, N. Osakabe, A. Tonomura, “Information transfer of 25.5 nm^{-1} in a 1-MV field-emission transmission electron microscope” *Microscopy* **65**(4), 378-382. (2016).
- [5] 上田良二編, 「電子顕微鏡」実験物理学講座 23, p.193, 共立出版, (1982).
- [6] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.117, 共立出版, (1988).
- [7] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.145, 共立出版, (1988).
- [8] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.139, 共立出版, (1988).
- [9] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.146, 共立出版, (1988).
- [10] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*”, p.217, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [11] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*”, p.219, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [12] T. Kawasaki, I. Matsui, T. Yoshida, T. Katsuta, S. Hayashi, T. Onai, T. Furutsu, K. Myochin, M. Numata, H. Mogaki, M. Gorai, T. Akashi, O. Kamimura, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, K. Kitazawa, “Development of 1 MV field emission transmission electron microscope”
J. Electron Microsc. **49**(6), 711-718, (2000).
- [13] B. Freitag, S. Kujawa, P. M. Mul, J. Ringnald, P. C. Tiemeijer, “Breaking the spherical and chromatic aberration barrier in transmission electron microscopy” *Ultramicroscopy* **102**, 209, (2005).
- [14] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.201, 共立出版, (1988).
- [15] P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley, M. J. Whelan, “*Electron Microscopy of Thin Crystals*”, p.90, (*Butlerworths*, London), (1965).

- [16] H. Ichinose, H. Sawada, E. Takuma, M. Osaki, “Atomic resolution HVEM and environmental noise” *J. Electron Microsc.* **48**, 887-891, (1999).
- [17] Y. Takai, Y. Kimura, T. Ikuta, R. Shimizu, Y. Sato, S. Isakozawa and M. Ichihashi, “Development of a real-time defocus-image modulation processing electron microscope. II. Dynamic observation of spherical aberration-free phase image of surface atoms” *J. Electron Microsc.* **48**, 879, (1999).
- [18] 川崎猛, 高橋由夫, 明石哲也, 谷垣敏明, 小内俊男, 糟谷圭吾, 古津忠夫, 品田博之, 長我部信行, “1.2 MV 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発” 顕微鏡 **51**(2), 122-126, (2016).
- [19] 文部科学省 科学技術試験研究委託事業：「電子ビームの高輝度化・単色化に関する要素技術の開発」, (2006 年－2008 年).
- [20] M. Haider, H. Müller, S. Uhlemann, J. Zach, U. Loebau, R. Hoeschen, “Prerequisites for a Cc/Cs-corrected ultrahigh-resolution TEM” *Ultramicroscopy* **108**, 167-178, (2008).
- [21] M. A. O’Keefe, ““Resolution” in high-resolution electron microscopy” *Ultramicroscopy* **47**, 282-297, (1992).
- [22] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Tanigaki, T. Shimakura, T. Kawasaki, T. Furutsu, H. Shinada, H. Müller, M. Haider, N. Osakabe, A. Tonomura, “Aberration corrected 1.2-MV cold field emission transmission electron microscope with a sub-50-pm resolution” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 074101, (2015).

第V章 円形孔を用いた電子ビームの干渉性評価手法の開発

1. はじめに

電子線ホログラフィーは、試料内外の電場・磁場を可視化する観察手法のひとつである。その実験・解析では、干渉性の良い電子ビームを試料に照射し、試料を透過した物体波と真空中の参照波によって形成される干渉縞を観察することにより、試料内外の電磁場によって生じた位相変化を計測する。この際、試料サイズが小さい場合や、電場・磁場がもともと微弱な場合には電子の位相変化量が非常に小さくなる。従って、電子線ホログラフィーを用いた精緻な実験を行うためには、まず第一に微小な位相変化の検出に有用な干渉性の良い電子ビームが必要となる。

試料に照射する電子ビームの干渉性は、その進行方向の角度ばらつきを示す開き角によって示される。すなわち、開き角が小さいほど干渉性が良い。高輝度な電子ビームを用いるほど、同じ電流密度の条件において開き角を小さくすることができるため、熱電子銃よりも高い輝度を有する電界放出(Field emission: FE)電子銃[1]や磁界重畳型 FE 電子銃[2]の開発が行われた。ところが、電子ビームの進行方向にばらつきを与えるようなノイズ(偏向ノイズ)が混入していると開き角が増大する。従って、微弱な位相変化を検出できる干渉性を得るためには、電子ビームに含まれる偏向ノイズを低減することが必須であると共に、開き角を高精度で評価することが重要である。

日立製作所の外村を中心とした研究チームは、原子レベルの電磁場を高分解能且つ高感度で可視化できる究極のホログラフィー電子顕微鏡を実現するため、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡を開発した。第II章および第III章で説明した、分解能阻害要因からの影響低減や機械的安定性および加速電圧安定性の高精度評価技術などの要素技術を適用したことで、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡が 42.9 pm の分解能を達成したことを確認した[3]。原子レベルでの電磁場観察では、微小領域における微弱な位相変動を検出する必要があることから、高い干渉性、すなわち小さな開き角を得ることが必須となる。そこで、開き角の目標値を 10^{-8} rad オーダーに設定した。これは、超伝導体中の磁束量子によって生じる電子ビームの偏向量[4]の $1/10 \sim 1/100$ であり、磁性材料によって生じる位相変動[5]を原子レベルの分解能で観察することを想定

している。

本研究では、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子ビームに含まれる偏向ノイズの評価と最小化を図ると共に、偏向ノイズを抑えた状態で実現される開き角を正確に評価するため、円形孔から発生するフレネル縞を用いた開き角計測手法を開発し、その有効性を確認した[6]。

2. 実験方法

2.1 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体構成

図 5-1 に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体構成を示す[7]。電子銃は、NEG ポンプが搭載された磁界重畳型 FE 電子銃[8]が採用されており、極高真空化が図られている。光源となる FE チップ直下に磁界レンズと軸調整用の偏向コイルが配置されている。

加速管は 44 段の多段電極加速管であり、電極材料には、浮遊磁場をシールドするため、パーマロイが採用されている。加速管と鏡体との間に、軸調整用の偏向コイル (Gun BD) が搭載されており、電子銃・加速管の光軸と鏡体の光軸との調整に用いられる。

コンデンサレンズは、2 段レンズ (Cond. 1 と Cond. 2) で構成されており、通常は、Cond. 1 レンズを使用している。Cond. 1 上部には、可動絞り機構 (Cond. APT) が搭載されている。Cond. 2 レンズの下部には、対物レンズの軸調整や試料の照射位置や角度を調整する偏向コイル (Cond. BD) が設置されている。

1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡は、2 箇所を試料ステージを有している。通常の対物レンズ内に試料を配置する高分解能試料位置 (以下、HR 試料位置と示す) と、試料をゼロ磁場の環境下で観察できるローレンツ試料位置 (以下 LRZ 試料位置と示す) である[9]。LRZ 試料位置は、磁性材料などの磁化状態を観察するときに適している。

結像系レンズには、高分解能観察専用の対物レンズ（HR レンズ）とローレンツ観察専用の対物レンズ（以下 LRZ レンズと示す）および球面収差補正器（Cs-corrector）と、4 段の中間レンズおよび 2 段の投射レンズが設置されている。通常の TEM 像観察や電子線回折図形観察および電子線ホログラフィー観察などによる光学系変更に伴う光軸補正のため、レンズ間に複数の結像系アライメントコイル（AL コイル）が設置されている。また、電子線バイプリズムは、中間レンズ間の 3 箇所（Int. 1 と Int. 2 の間、Int. 2 と Int. 3 の間および Int. 3 と Int. 4 の間の 3 箇所）に設置されており、ダブル電子線バイプリズム干渉計[10]などを用いた観察などに対応可能である。

観察カメラは、光軸や観察位置を調整するための広視野観察用に浜松ホトニクス社製 1K-CCD カメラが設置されている。その他、高倍率観察用の Gatan 社製 Orius SC200、Gatan 社製 K2 カメラ(Direct Detection Camera; K2® Summit Camera, Gatan Inc.)および一般的な電子顕微鏡フィルムが使用できるフィルムカメラ（Film camera）が設置されている。また、EELS（Electron energy-loss spectroscopy）エネルギーフィルター像の取得が可能な Gatan 社製 GIF（Gatan image filter）を搭載している。

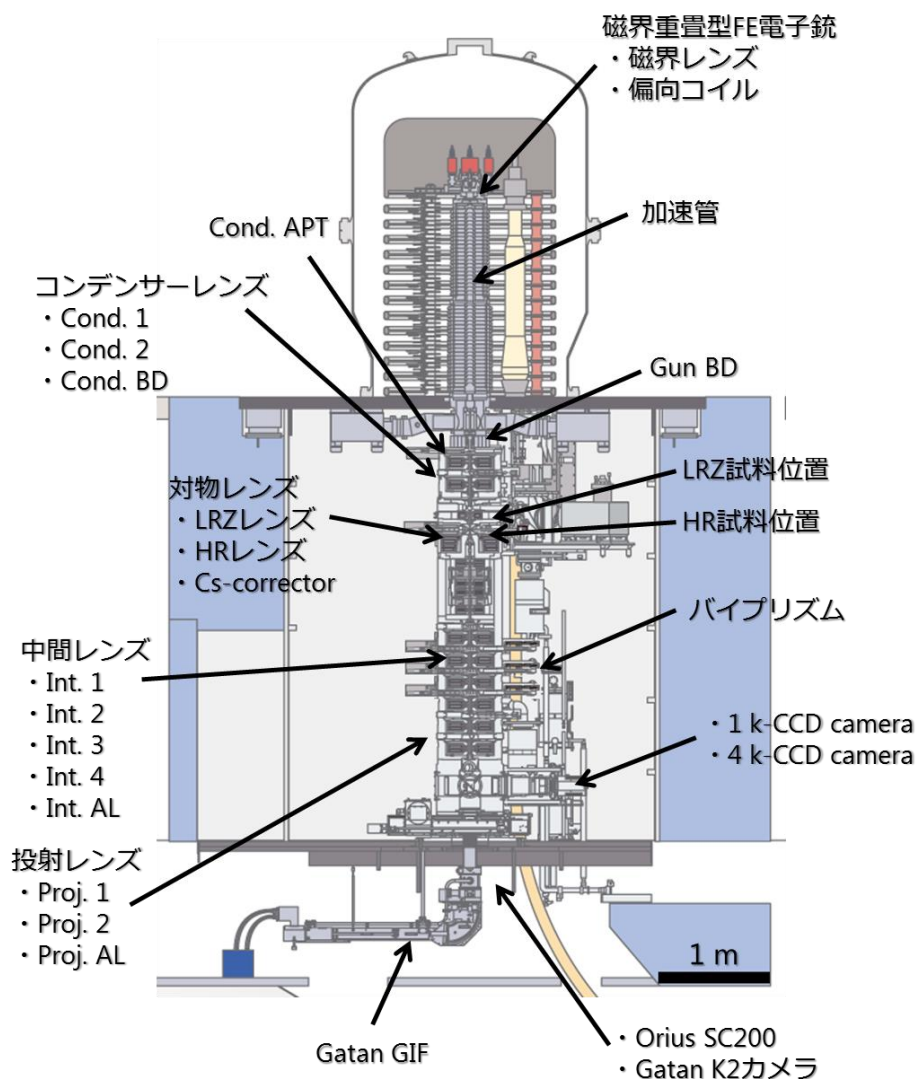


図 5-1 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体構成

2.2 照射電子ビームの偏向ノイズ評価の検討

2.2.1 Lissajous 図形を用いた偏向ノイズ評価手法

Lissajous 図形 (Lissajous figure : リサージュ図形) とは、オシロスコープの XY モードで得られる図形で、基本となる周波数を横軸 (X) に、被測定周波数を縦軸 (Y) に入力すると、基準周波数と被測定波周波数との周波数比に応じた波形を観察することができる。この点に注目して、電子顕微鏡の結像系に発振器を接続して、

Lissajous 図形を形成することで[11]、電子ビームに含まれる偏向ノイズの把握と対策の効果を確認した。図 5-2 に Lissajous 図形の形成方法を示す。結像系レンズに設置されたアライメントコイル (Proj. AL) の X 方向コイルおよび Y 方向コイルのそれぞれに発振器を接続し、位相差 90 度の正弦波 A と B を入力する。これにより、照射系レンズによって試料面上に形成された電子ビームのスポットはスクリーン上に円形の Lissajous 図形を描く。電子ビームに含まれる偏向ノイズの周波数が、アライメントコイルに入力する正弦波の周期の n (整数) 倍と一致すると、 n 回のうねり (波) が Lissajous 図形に現れることになる。例えば、ノイズ周波数が 50 Hz の場合、発信器周波数を 10 Hz にすることによって、ノイズ起因のうねり (波) が 5 回現れることになる。このように、発振器の周波数を変化させて Lissajous 図形に重畳する偏向ノイズによって生じる波の数を調査することで、偏向ノイズ周波数を確認することができる。また、Lissajous 図形に重畳している偏向ノイズ起因の波高値は偏向ノイズの振幅を示す。よって、その波高値と方向性を確認することによって、偏向ノイズの大きさと混入方向を把握することが可能である。従って、Lissajous 図形を解析することで、電子ビームに含まれるノイズの周波数、方向および振幅を把握することが可能である。

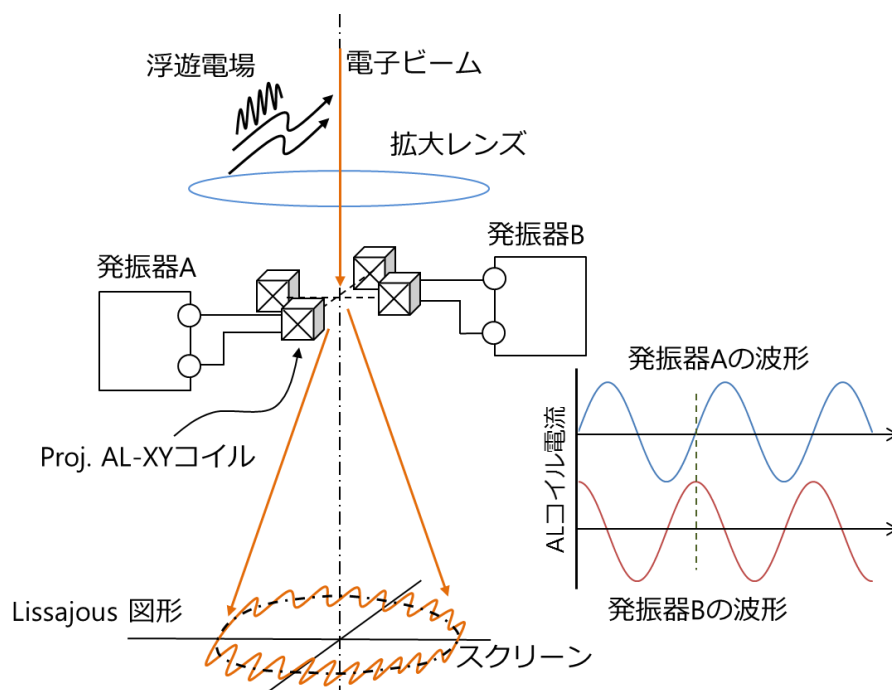


図 5-2 Lissajous 図形の形成方法

2.2.2 偏向ノイズの評価条件

偏向ノイズの評価条件を以下に示す。ノイズによる偏向感度を高めるため加速電圧を 400 kV に設定し、LRZ 試料位置を基準に Cs-corrector を Off (0 A に設定) にして、光学系を調整している。Cond. APT は、直径 60 μm のものを使用した。表 5-1 に偏向ノイズ評価時の観察レンズ条件を示す。

表 5-1 ノイズ調査時の設定レンズ電流 (400 kV)

レンズ	レンズ電流 (A)	レンズ	レンズ電流 (A)
Cond. 1	5.00	Int. 2	1.95019
Cond. 2	2.83 (Brightness lens)	Int. 3	0.00000
Lrz	2.092	Int. 4	3.02866
HR	0.000	Proj. 1	4.500
Int. 1	0.00000	Proj. 2	9.476

2.2.3 偏向ノイズの評価結果

本研究では照射光学系に設置されている Gun BD および Cond. BD の偏向ノイズ評価を実施した。本稿では、最も偏向ノイズの影響が大きかった Cond. BD に関する評価結果について報告する。

図 5-3 に、Cond. BD に着目して取得した Lissajous 図形を示す。発振器周波数は、1 kHz である。(a)は、Cond. BD を BD 電源と接続したものの、BD コイルに電流を流していない状態 (0 A 設定時) で観察された Lissajous 図形である。図中の矢印で示した 1 時-7 時方向に、電子ビームに含まれている偏向ノイズ起因の波形が重畳されている。このノイズ周波数は、約 70 kHz 周期で発生する高周波数ノイズであった。また、上記した 1 時-7 時方向の波形によって、ノイズの方向は Cond. BD の X 方向と一致することがわかった。(b)は、Cond. BD を電子顕微鏡の鏡体側コネクタを抜いた状態で観察された Lissajous 図形である。この状態では、(a)で見られた高周波

数ノイズが確認できなくなった。以上の実験・解析により、(a)のノイズは、Cond. BDを介して混入しており、特に X 方向の影響が顕著であることが確証された。

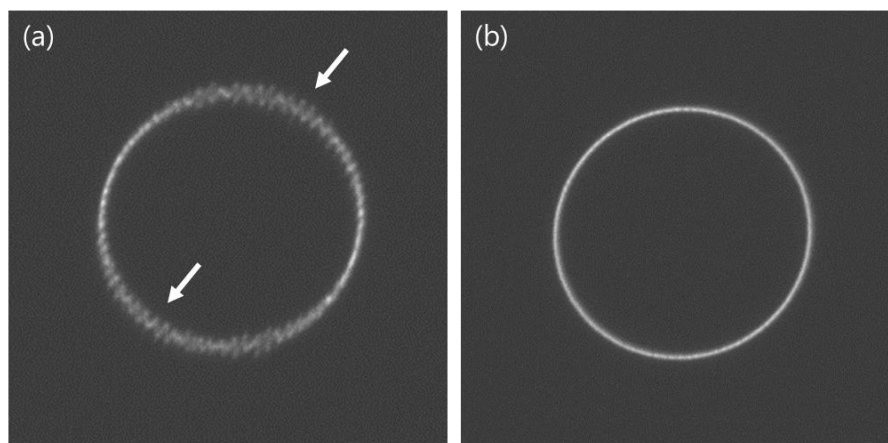


図 5-3 ノイズが含まれた Lissajous 図形

(a) Cond. BD を接続、(b) 鏡体側コネクタを抜いた状態。

このノイズの発生源を調査したところ、実験室内に設置されていた蛍光灯が発生する浮遊電場が BD ケーブルを介して混入していることが明らかとなった。そこで、BD コイル回路やケーブルのインピーダンスやケーブル電位の接地方法の見直しを行い、浮遊電場の低減方法を検討した。

図 5-4 に BD ケーブルに施した偏向ノイズ対策法を示す。鏡体内に設置されている BD コイルは、直流的には鏡体と電気絶縁されているが、交流的にはコイルと鏡体の間に複数のコンデンサとみなせる浮遊容量(C_c)が接続されていると考えることができる。よって、浮遊電場によって BD ケーブルの電位変化が発生すると、BD コイルと鏡体間に交流電流が流れることになる。浮遊電場によって発生する電流ノイズは、BD 電源のフィルターコンデンサ (C)では低減することができない。そのため、BD コイル回路の交流インピーダンスを低下させるため、BD コイル回路とアース間にコンデンサ (C_G)を接続した。鏡体と BD コイル間のインピーダンスよりも BD コイル回路のインピーダンスを小さくするようなコンデンサ容量を接続することで、BD コイルと鏡体間に流れる電流ノイズを低減させることができる。

更に、BD ケーブルの電位シールドの接地について検討した。通常、BD コイルのケーブルには、電位シールド付ケーブルが使用され、一点接地にてシールド電位を安定化する。ケーブル周辺の電位を接地した電位シールドの電位で安定させることにより、並列に配線されるケーブルなどから発生する電場変動によるノイズ混入を防止するためである。ところが、超高圧電子顕微鏡のような大型電子顕微鏡では、BD ケーブルが 10 m に達することがあり、電位シールド自体の抵抗が無視できなくなる。そのため、ケーブル周辺に存在する浮遊電場によって、電位シールドの電位が変動すると考えられる。そこで、電位シールドの接地箇所を複数にするなど、電位シールドのインピーダンスを低下させることによって電位変動を低減した。具体的には、電位シールドの両端をアース電位に接地して、電位シールドのインピーダンスを低く保った。しかしながら、電位シールドとアースラインによる閉回路が形成される結果、浮遊磁場等の外乱の影響が増大する可能性がある。そこで、接地方法の良否判定は Lissajous 図形を確認しながら行った。なお、本稿にて説明する偏向ノイズの対策は Gun BD にも行っている。更には、本実験によって、イオンポンプやフルレンジマキシゲージなど電極と鏡体間の放電を伴う真空機器から生じる偏向ノイズを確認した。これらにおいても、Lissajous 図形を確認しながら周波数と振幅を計測し、電源の接地などの対策を行った。このような複数の対策を施した結果、偏向ノイズを対策前の状態と比較し 30%程度に低減することができた。

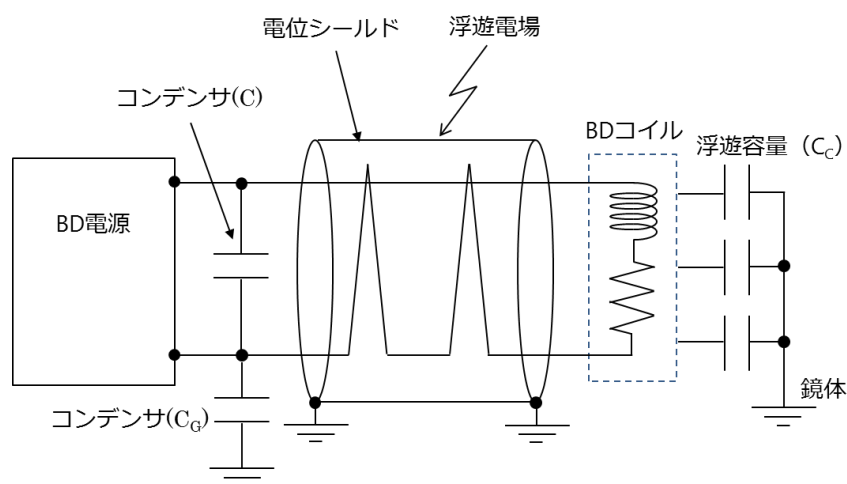


図 5-4 浮遊電場起因のノイズ対策法

3. 円形孔を用いた開き角評価手法の開発

3.1 フレネル縞観察による開き角評価手法の確認

前節で述べた偏向ノイズの抑制を施した状態で、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開き角がどの程度の値であるかを実測することとした。そのためには、同電子顕微鏡の開き角を正確に評価するための技術を整備する必要がある。本研究ではフレネル縞観察に基づく開き角の評価技術の整備について述べる。

フレネル縞は、透過型電子顕微鏡の焦点合わせ等にも利用されている干渉縞で、フォーカスがずれているときに試料のエッジ付近にて観察される。図 5-5(a)に、マイクログリッドのエッジに生じているフレネル縞を示す。図 5-5(b)に試料のエッジで発生するフレネル縞の模式図を示す。同図では開き角 2β の入射電子ビームで試料を照射した際に、試料のエッジから散乱波が生じる様子が示されている。このとき、対物レンズの倍率を M とすると、像面から $M\varepsilon$ だけ離れた観察面（デフォーカス面）では、散乱波と透過波が干渉して、フレネル縞が観察される。ここで ε はデフォーカス量を表す。このとき、試料のエッジから最も遠いフレネル縞までの距離を ML とする。

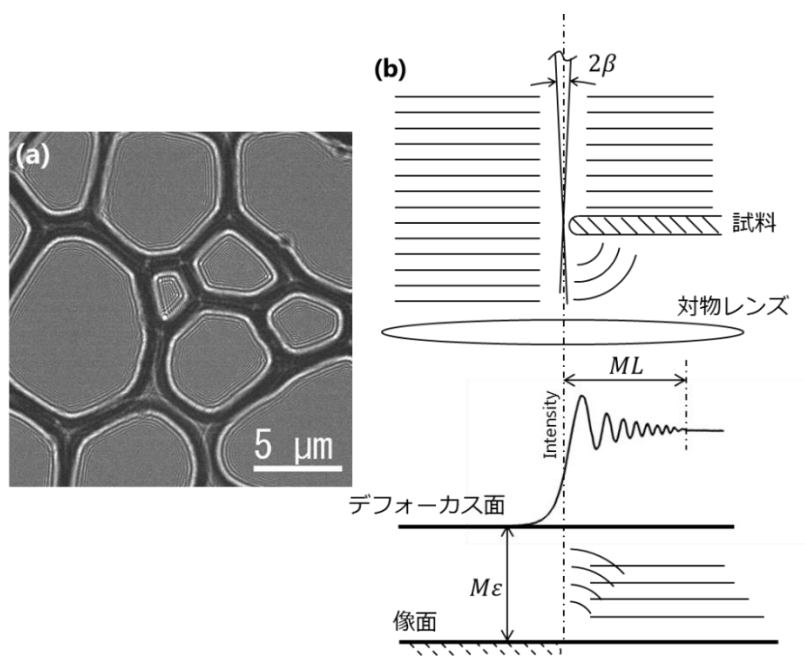


図 5-5(a) マイクログリッドのエッジから発生するフレネル縞、

(b) 試料のエッジから発生するフレネル縞の概念図。

以下に、フレネル縞の観察限界距離から開き角を決定する手順を示す。電子に対して不透明な試料のエッジと、試料外部で観察される n 番目のフレネル縞の距離 X_n は、

$$X_n = \sqrt{\varepsilon\lambda\left(n - \frac{1}{4}\right)} \quad (5.1)$$

で示される[12, 13]。ここで、 λ は電子ビームの波長である。このとき、 n が奇数のときが明線、偶数のときが暗線として観察される。ここで、明線暗線の一对をフレネル縞 1 本と数えることにする。フレネル縞の本数を m とすると、 $n = 2m - 1$ (m は整数)と置き換えることができる。よって、 m 本目のフレネル縞が現れる試料エッジからの距離 X_m は、

$$X_m = \sqrt{\varepsilon\lambda\left(2m - 1 - \frac{1}{4}\right)} = \sqrt{2\varepsilon\lambda\left(m - \frac{5}{8}\right)} \quad (5.2)$$

となる[14]。

フレネル縞の間隔 s は、 m 本目のフレネル縞の位置と $m + 1$ 本目のフレネル縞の位置の差であるから、

$$\begin{aligned} s &= X_{m+1} - X_m = \sqrt{2\varepsilon\lambda\left(m + \frac{3}{8}\right)} - \sqrt{2\varepsilon\lambda\left(m - \frac{5}{8}\right)} \\ &= \sqrt{2m\varepsilon\lambda\left(1 + \frac{3}{8m}\right)} - \sqrt{2m\varepsilon\lambda\left(1 - \frac{5}{8m}\right)} \quad \dagger \\ &= \sqrt{2m\varepsilon\lambda}\left(1 + \frac{1}{2}\frac{3}{8m}\right) - \sqrt{2m\varepsilon\lambda}\left(1 - \frac{1}{2}\frac{5}{8m}\right) \\ &= \sqrt{2m\varepsilon\lambda}\left\{\left(1 + \frac{3}{16m}\right) - \left(1 - \frac{5}{16m}\right)\right\} \\ &= \sqrt{2m\varepsilon\lambda}\left\{\frac{1}{2m}\right\} = \sqrt{\frac{\varepsilon\lambda}{2m}} \quad (5.3) \end{aligned}$$

† マクローリン展開： $\sqrt{1+x} \approx 1 + \frac{1}{2}x$

となる。よって、 s は m が大きくなるに従い、小さくなる。言い換えると、試料エッジから離れるに従い、フレネル縞の間隔は狭くなることがわかる。

一方、試料を照射する電子ビームの開き角によって、試料の像にボケが生じる。

図 5-6 のように電子ビームが開き角 2β で入射している場合、試料面から ε 離れた面上でのボケ量は $2\beta\varepsilon$ という値になる[15]。この開き角によって生じるボケ量とフレネル縞の間隔が一致したとき、フレネル縞が消失すると考えられるため[16]、

$$s = 2\beta\varepsilon \quad (5.4)$$

の関係が成立する場合、デフォーカス条件であっても、フレネル縞が消失することになる。よって、式(5.3)と式(5.4)より、

$$\sqrt{\frac{\varepsilon\lambda}{2m}} = 2\beta\varepsilon \quad (5.5)$$

を得る。

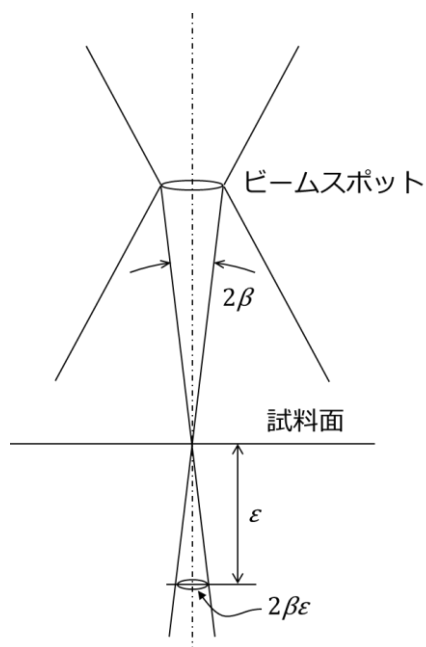


図 5-6 開き角によって発生するボケ量

ここで、試料から最も遠くに観察されるフレネル縞までの距離、すなわち可干渉距離 L を式(5.2)と式(5.5)を用いて表すと、

$$L = \sqrt{\frac{\lambda^2}{4m\beta^2} \left(m - \frac{5}{8}\right)} = \frac{\lambda}{2\beta} \sqrt{1 - \frac{5}{8m}} \quad (5.6)$$

となる。このとき、 m が十分に多ければ、平方根の内部は ~ 1 と考えられるので ($m = 20$ のとき、0.98)、

$$L \approx \frac{\lambda}{2\beta} \quad (5.7)$$

と近似することができる。よって、

$$\beta = \frac{\lambda}{2L} \quad (5.8)$$

という関係が得られる。従って、フレネル縞が 20 本以上観察できるような観察条件 ($m \geq 20$ 本) において、 L を高精度に求めることができれば、式(5.8)を用いて、電子ビームの開き角を評価することが可能である。

広範囲にわたってフレネル縞を観察するためには、低倍率観察光学系を構築する必要がある。しかしながら、このような観察条件では大きな歪像収差が重畳する。更に、試料がない空間を観察することになることから、倍率を校正することが困難となる。そこで本研究では、歪像収差が重畳した電子顕微鏡像においても L を高精度に求めるため、円形孔から発生するフレネル縞を用いた評価手法を開発した。手法の詳細は次節に記す。

3.2 円形孔から発生するフレネル縞を用いた開き角評価手法

円形孔から発生するフレネル縞の観察例としては、干渉性のデモンストレーシ

ョンや、そのコントラストを相対的に比較することによる干渉性評価などが報告されている[17]。本研究では、歪像収差が含まれる電子顕微鏡像においても可干渉距離 L を精度良く計測するため、直径が既知である円形孔を用いた計測手法の開発を試みた。図 5-7 に円形孔から発生するフレネル縞の模式図を示す。図 5-5(a)と同様に、開き角 2β で円形孔に電子ビームを照射すると、円形孔のエッジから散乱波が発生する。事前に計測した直径 $2r_c$ の円形孔の孔中心に至るまでフレネル縞を観察することができれば、可干渉距離 L は、円形孔の半径 r_c と同等以上であると考えることができる。この場合、記録媒体の解像限界よりも広い間隔のフレネル縞が 20 本以上得られるようにデフォーカス量を設定できれば式(5.8)が成り立つので、円形孔の半径と電子ビームの波長から開き角を求めることができる。もし、フレネル縞が孔中心では観察できずに途中で消失していた場合には、歪像収差が含まれている可能性があることから、フレネル縞観察領域距離を測定することは困難である。そのため、円形孔を用いたフレネル縞観察では、孔中心までフレネル縞が観察できるか否かを判断することによって開き角を求めることになる。

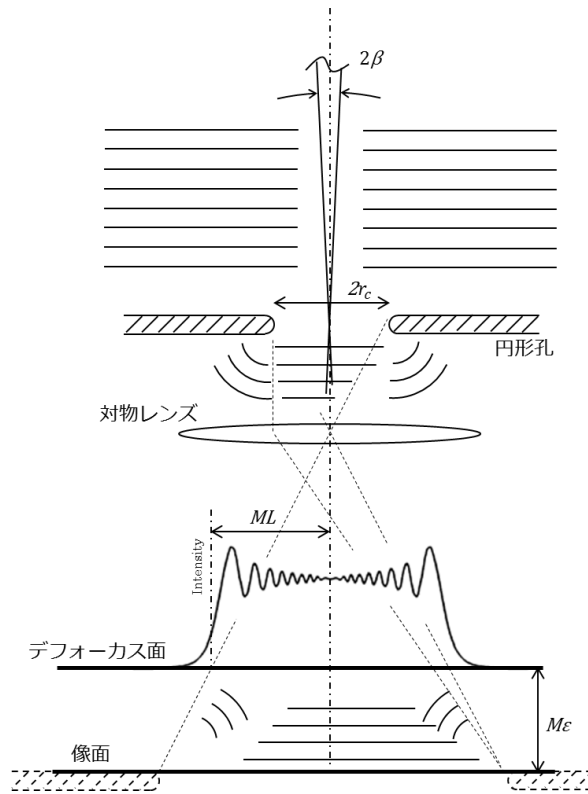


図 5-7 円形孔から発生するフレネル縞の模式図

開発した円形孔から発生するフレネル縞を用いた開き角評価手法の有効性を確認するため、開き角を小さくするための照射光学系を探索すると共に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて開き角を実測・評価した。図 5-8 に、円形孔を照射する光学系を示す。コンデンサレンズ直上に形成された光源の像の直径を $2r_v$ 、コンデンサレンズまでの距離を a とする。コンデンサレンズから試料面までの距離を D 、コンデンサレンズからビームスポットまでの距離を b 、スポットから試料面までの距離を d 、コンデンサレンズで形成されるスポット径を $2r_s$ とする。開き角は $2\beta = 2r_s/d$ であり、また $r_v = (b/a)r_s$ であるから、以下の関係を得る。

$$\beta = \frac{r_v}{a} \left(\frac{D}{d} - 1 \right) \quad (5.9)$$

ただし、開き角は収束角を越えることはないため、 $\beta \leq (a/D)\alpha_v$ (α_v は、光源の像の収束角) が最大値となる[18]。開き角に対する照射光学系の収差や偏向ノイズの寄与は小さいので無視している。式(5.9)より、開き角を小さくする条件は、① a を大きくする、② d を大きくするためコンデンサレンズ電流を増やす、③ $b \ll d \approx D$ とすることで試料位置から遠いレンズを使用する、ということであると考えられる。

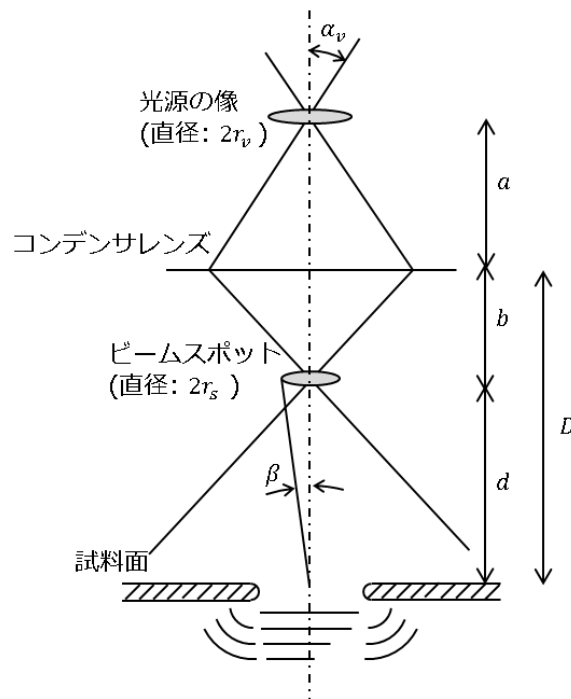


図 5-8 円形孔を照射する光学系

そこで、開き角の調整に、Cond. 1 レンズ、または Cond. 2 レンズを単体で使
用した。図 5-9 にコンデンサレンズの機械的配置を示す。円形孔を配置した LRZ 試料
位置から各レンズまでの距離は、Cond.1 レンズ ; 416 mm、Cond. 2 レンズ ; 206 mm
である。Cond. 2 レンズは、Cond. 1 レンズよりも光源の像から遠くに配置されてい
るため、Cond. 2 レンズを使用することで、式(5.9)の a を大きくすることができる。一
方、光源に近い位置に配置されている Cond. 1 レンズを使用すると、 a は小さくなる

が、 D を大きくすることができるため、試料面から遠くの位置にビームスポットを配置することができる。従って、Cond. 2 レンズ使用時よりも小さな開き角が得られると考えられる。よって、Cond. 1 レンズと Cond. 2 レンズを使用した時の開き角をそれぞれ計測することで、比較評価を行った。

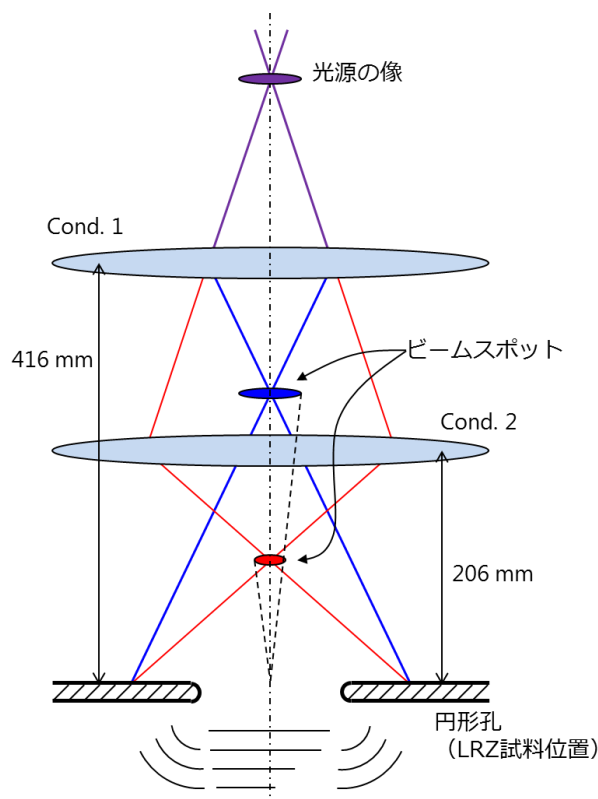


図 5-9 コンデンサレンズの配置図

フレネル縞観察の実験条件を以下に示す。加速電圧は 1,200 kV、トータルエミッションは約 15 μA とした。デフォーカス量の調整には LRZ レンズを使用し、十分なデフォーカス量を確保するためアンダーフォーカスで調整している。記録媒体は Gatan 社製 K2 カメラであり、その Pixel サイズは $5\mu\text{m}\times 5\mu\text{m}$ である。記録時間は 1 秒～10 秒とした。円形孔の中心部およびフレネル縞本数を確認するため、円形孔全体が確認できるような観察倍率（100 倍～1000 倍）に調整した。

実験で使用した円形孔は、銅薄膜（厚さ 30 μm ）に集束イオンビーム加工装置（Focused ion beam system: FIB）を用いて製作した。コンデンサレンズ電流と開き角の関係を得るため、複数の円形孔を用いており、それらの直径は、20.9、32.9、62.9、83.8、104.0、124.5、および 154.5 μm であった。円形孔の直径が大きくなるに従い、大きなデフォーカス量を与えて観察するため、円形孔のエッジ形状が影響して、得られる観察像に歪みが生じる。そこで、最も大きな円形孔については、モリブデン薄膜に作製した直径 191.0 μm の孔にオスミウムコートをした。オスミウムコートは、プラズマ CVD 法を用いて成膜されている。プラズマ CVD 法はスパッタリングよりも小さな粒子が得られることから、近年ではチャージアップ防止のため、対物絞りなどにも施されている[19]。図 5-10 に直径 191.0 μm のモリブデン製円形孔の走査電子顕微鏡像を示す。

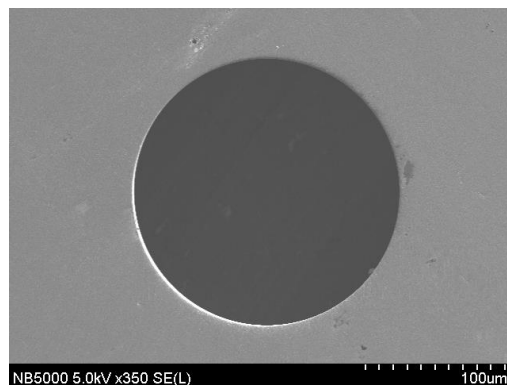


図 5-10 直径 191.0 μm のモリブデン製円形孔の走査電子顕微鏡像

3.3 円形孔を用いた開き角の評価結果

3.3.1 Cond. 2 レンズを用いた開き角評価結果

表 5-2 に、Cond. 2 レンズを使用したときの開き角評価結果を示す。縦項目は、

観察した円形孔直径から算出した開き角を記載している。横項目は、各々の円形孔中心までフレネル縞が観察できたときの最も少ないレンズ電流である。各観察条件において、円形孔中心までフレネル縞が観察できたときを○、できなかったときを×で示している。

Cond. 2 のレンズ電流を大きくするに従い、ビームスポット径が小さくなると共に、そのスポット位置が試料面から離れていく。よって、コンデンサレンズ電流を大きくするに従い、小さな開き角が得られている。この実験条件において得られた最も小さな開き角は、 $9.9 \times 10^{-9} \text{ rad}$ であり、そのときのレンズ電流は 14.00 A であった。コンデンサレンズの最大電流は 15.00 A であることから、本実験で得られた開き角は Cond. 2 レンズを用いたときの限界値に近いと考えられる。最大レンズ電流の変更やレンズ形状の変更などを行うことでビームスポットから試料面までの距離 d を大きくすることが可能であるが、大幅な改造となることから現時点での対応は見送った。

表 5-2 Cond. 2 レンズを使用した開き角評価結果

レンズ電流(A) 開き角	5.20	6.00	6.80	8.00	9.00	10.00	14.00	15.00
$7.3 \times 10^{-8} \text{ rad}$	○	○	—	—	—	—	—	—
$4.6 \times 10^{-8} \text{ rad}$	×	○	○	—	—	—	—	—
$2.4 \times 10^{-8} \text{ rad}$	—	×	○	○	—	—	—	—
$1.8 \times 10^{-8} \text{ rad}$	—	—	×	○	—	—	—	—
$1.5 \times 10^{-8} \text{ rad}$	—	—	—	×	○	—	—	—
$1.2 \times 10^{-8} \text{ rad}$	—	—	—	—	×	○	—	—
$9.9 \times 10^{-9} \text{ rad}$	—	—	—	—	—	×	○	○
$8.0 \times 10^{-9} \text{ rad}$	—	—	—	—	—	—	×	×

3.3.2 Cond. 1 レンズを用いた開き角評価結果

表 5-3 に、Cond. 1 レンズを使用したときの開き角評価結果を示す。表 5-2 と同様に、縦項目は円形孔直径から算出した開き角を記載している。横項目は、各々の円形孔中心までフレネル縞が観察時できたときの最も少ないレンズ電流である。各観察条件において、円形孔中心までフレネル縞が観察できたときを○、できなかったときを×で示している。本研究で準備した最大の円形孔（直径 191.0 μm ）に対応する開き角 8.0×10^{-9} rad は、レンズ電流 9.50 A で達成できることを確認した。

表 5-3 Cond. 1 レンズを使用した開き角評価結果

レンズ電流(A) 開き角	4.25	4.75	5.50	6.40	6.65	6.90	7.75	9.50
7.3×10^{-8} rad	○	○	—	—	—	—	—	—
4.6×10^{-8} rad	×	○	○	—	—	—	—	—
2.4×10^{-8} rad	—	×	○	○	—	—	—	—
1.8×10^{-8} rad	—	—	×	○	—	—	—	—
1.5×10^{-8} rad	—	—	—	×	○	—	—	—
1.2×10^{-8} rad	—	—	—	—	×	○	—	—
9.9×10^{-9} rad	—	—	—	—	—	×	○	○
8.0×10^{-9} rad	—	—	—	—	—	—	×	○

図 5-11 に Cond. 1 レンズを使用したときのフレネル縞観察結果を示す[6]。円形孔の直径は、 $191.0\ \mu\text{m}$ である。Cond. 1 レンズのレンズ電流は $12.00\ \text{A}$ であり、電頭像の記録時間は 5 秒である。(a)は K2 カメラの視野全体を表示しており、鏡体倍率を約 100 倍に調整して、円形孔全体が視野に収まるようにしている。大きなデフォーカスに調整し且つ低倍観察を行っていることから歪像収差が重畳していると考えられる。よって、正確な倍率を決定することができないため、スケールバーは記載していない。しかし、歪像収差が重畳していたとしても予め計測した円形孔の直径は変わらないため、この画像における長さ計測のキャリブレーションは達成できている。円形孔中心部が周辺部よりも明るいのはレンズの収差の影響が現れており、大きなデフォーカス量での観察により回折面と観察面が近くなっているためである。(b)は、(a)のエッジ部から中心付近までを拡大しており、円形孔中心部のラインプロファイルを挿入している。フレネル縞が円形孔中心部まで達していることがわかる。また、30 本以上のフレネル縞が観察できることから、式(5.8)が成り立っている。従って、 $95.5\ \mu\text{m}$ 以上の可干渉距離が得られており、少なくとも $8.0 \times 10^{-9}\ \text{rad}$ の開き角に達していることを示している。

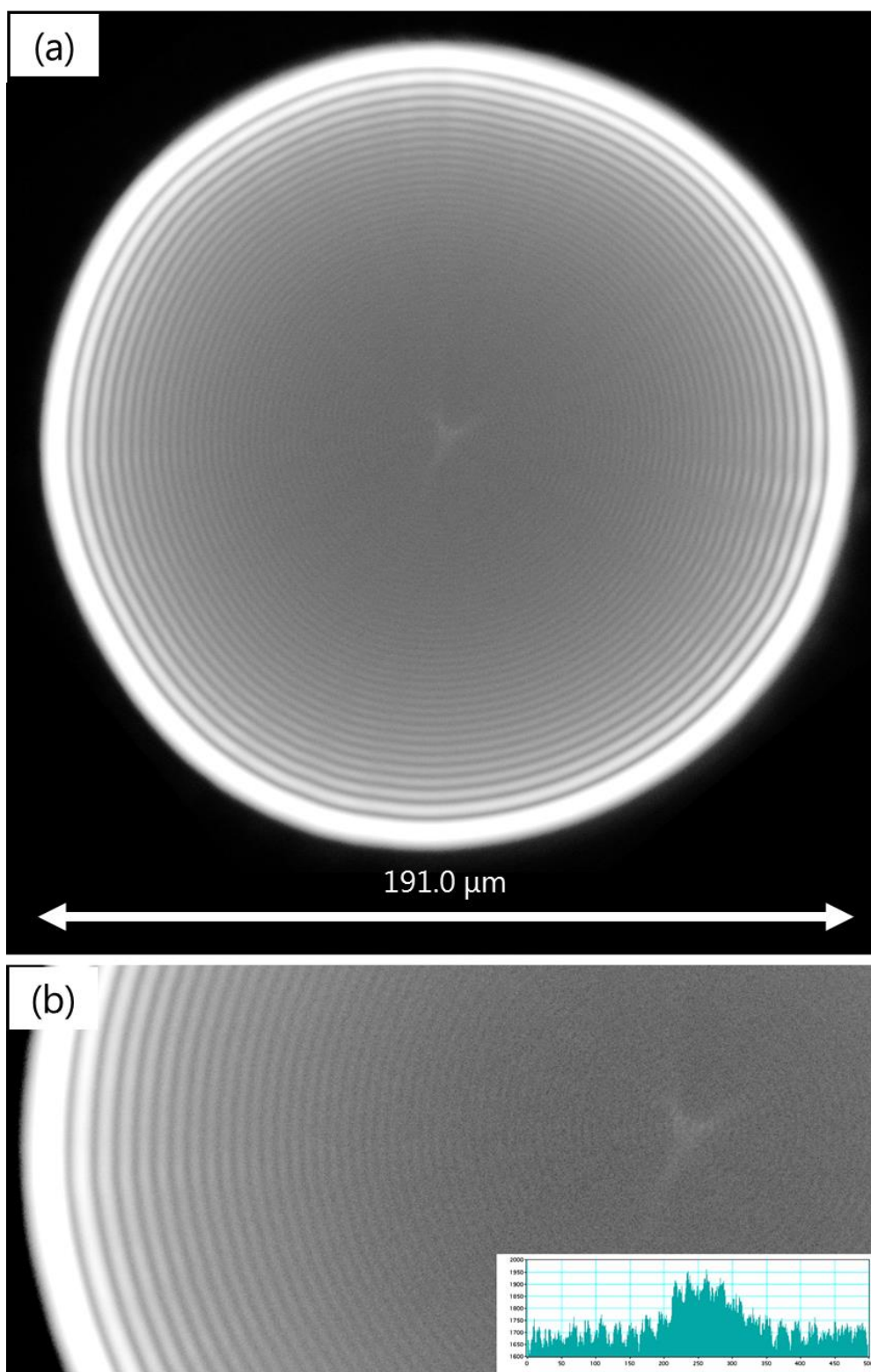


図 5-11 直径 $191.0\ \mu\text{m}$ の円形孔から発生するフレネル縞観察結果。(a) 円形孔全体、(b)は左のエッジから中心部までの拡大図。中心部付近のラインプロファイルを挿入している。

3.4 開き角評価結果の検討

図 5-12 に、各コンデンサレンズ電流に対する開き角を示す。使用した測定データは、表 5-2 および表 5-3 である。横軸は Cond. 1 および Cond. 2 レンズのレンズ電流であり、縦軸は各々に対応する開き角である。同じレンズ電流のときに得られる開き角は、Cond. 1 レンズを用いたときのほうが小さいことがわかる。これは、Cond. 1 レンズのほうが試料位置から遠くに配置されているためであり、少ないレンズ電流でビームスポットを試料から遠くに配置できていることを示している。よって、現状の光学系において小さな開き角を得るためには、試料から遠くに配置された Cond. レンズを用いることが望ましい。

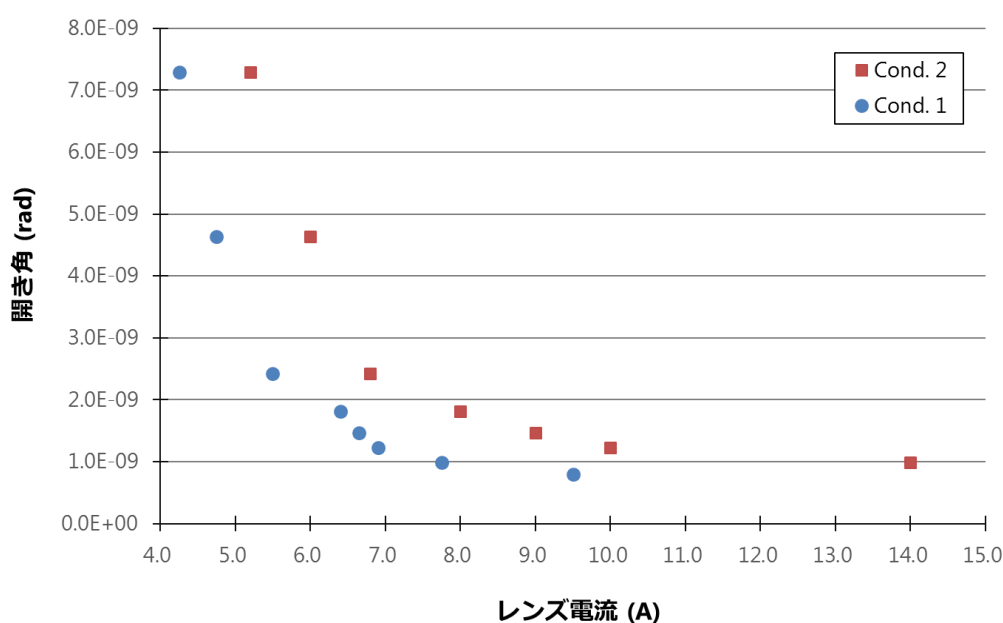


図 5-12 各コンデンサレンズ電流と開き角

以上をまとめると、電子線ホログラフィーの高度化に必須である干渉性を向上すると共にそれを正確に評価するため、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子ビームに含まれる偏向ノイズの低減を図ると共に円形孔から発生するフレネル縞観察に

よる開き角評価手法を開発した。その結果、開き角が 8.0×10^{-9} rad に達したことが確認でき、目標値である 10^{-8} rad オーダーの開き角を達成した。よって、原子レベルの微弱な領域からの位相変調を検出することが可能になることが期待できる。

4. 電子銃輝度評価への適用と結果

電子銃の重要な性能指標のひとつである輝度は、単位面積当たり単位立体角当たりの電流密度の極限である軸上輝度で定義されている。TEM においては、一般的に、光軸に沿った有限な面積 ΔS 、立体角 $\Delta \Omega$ および電流量 ΔI によって定義される平均輝度が用いられている [20]。平均輝度 $\overline{B}_0$ は、

$$\overline{B}_0 = \frac{\Delta I}{\Delta S \Delta \Omega} \quad (5.10)$$

によって示されており、単位は、 $A/m^2 \cdot sr$ が良く用いられている。以後、断らない限り平均輝度 $\overline{B}_0$ を単に輝度と言うことにする。輝度は、光源の見込み角（電子ビームの開き角） 2β 、試料面上の電流密度を i とすると、

$$\overline{B}_0 = \frac{i}{\pi \beta^2} \quad (5.11)$$

と書き換えられる [20]。よって、開き角と試料面上の電流密度を計測することができれば、輝度を算出することができる。そこで、円形孔を用いて計測した開き角を用いて、輝度評価に適用した。

実験は下記の手順で行った。最初に、1/2000 mm グレーティングレプリカを用いて LRZ 試料位置における倍率を評価する。次に、円形孔を用いた開き角評価を行い、開き角とコンデンサレンズの電流を決定する。Cond.1 レンズ電流を固定したまま、先の倍率を確認したレンズ条件（LRZ レンズ電流および結像レンズ電流）を設定

し、その状態のままでファラデーカップを用いて電子ビームの電流密度を測定した。得られた電流密度とファラデーカップ面上の倍率を用いて、試料面上電流密度に換算した。円形孔はローレンツ試料位置に配置し、LRZ レンズでアンダーフォーカスに調整した。輝度計測に使用した円形孔は実測直径 $20.9\ \mu\text{m}$ 、 $32.9\ \mu\text{m}$ 、 $62.9\ \mu\text{m}$ とした。原理的には更に大きな円形孔を用いることも可能であるが、開き角が小さくなるに従いファラデーカップで検出するビーム電流が減少する。そのため、微小電流の検出や低倍率光学系の構築などを検討する必要がある、測定が難しくなるため注意を要する。

図 5-13 に、Cond. 1 レンズ電流と輝度を示す。横軸は Cond. 1 レンズ電流であり、縦軸が算出された輝度である。グラフ中のプロットには、円形孔直径から求めた開き角と試料面上に換算した電子ビームの電流密度を示している。トータルエミッションは、 $13\sim 15\ \mu\text{A}$ であり、ほぼ一定であることから、トータルエミッションの増減による補正は行っていない。これらから算出された輝度は、 $3.0\sim 3.6\times 10^{14}\ \text{A/m}^2\cdot\text{sr}$ であった。電流密度を測定するファラデーカップの直径は、電子ビームの照射領域直径の $1/100\sim 1/200$ となるため、本実験では中心部分の僅かな領域から得られた電流密度を用いて輝度を算出している。従って、得られた輝度計測の結果は、軸上輝度に近い値であると考えている。

加速電圧が $1.2\ \text{MV}$ の超高圧電子顕微鏡に対して輝度を実測したのは本研究が初めてである。一方、類似の輝度計測結果としては、 $1\ \text{MV}$ ホログラフィー電子顕微鏡において、 $1.8\times 10^{14}\ \text{A/m}^2\cdot\text{sr}$ の値が報告されている[21]。本研究で得られた輝度の値はその $1.7\sim 2$ 倍程度であるから、 $1.2\ \text{MV}$ ホログラフィー電子顕微鏡は高い輝度を有していると考えられる。この結果は、 $1.2\ \text{MV}$ ホログラフィー電子顕微鏡が、高輝度・高干渉性を必要とする電子線ホログラフィーの実験に対して極めて有効であることを示している。

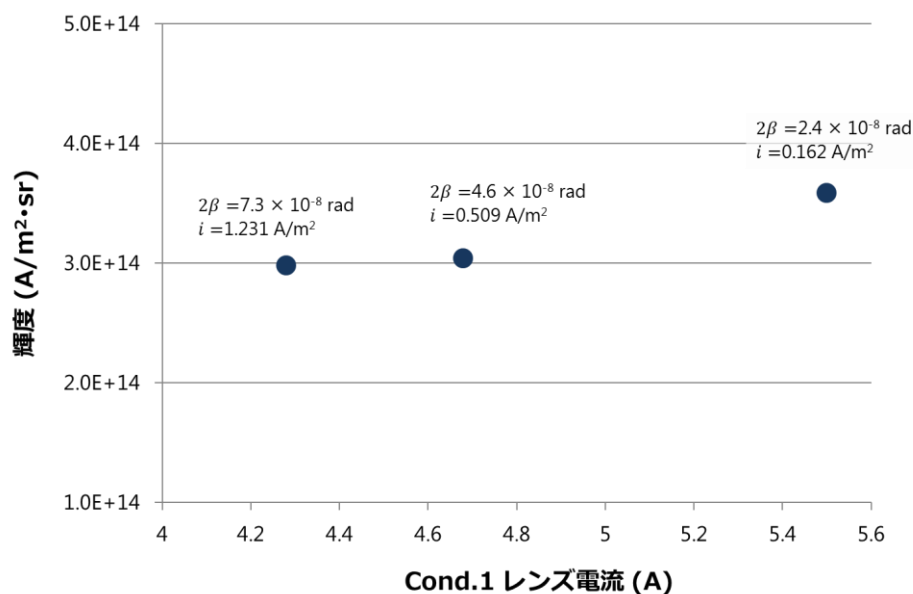


図 5-13 Cond. 1 レンズ電流と輝度

5. まとめ

電子線ホログラフィーを用いた精緻な電磁場観察を実施するためには、電磁場計測の感度等に関係してくる電子ビームの干渉性や輝度を十分に掌握しておくことが重要である。このような装置性能の評価なくして、物質材料の微弱な電磁場を解析することはできない。本研究では、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子ビームの進行方向にばらつきを生じさせる偏向ノイズの評価と最小化を図ると共に、円形孔から発生するフレネル縞観察による開き角評価手法を開発した。

電子ビームを用いて形成した Lissajous 図形を解析することで、電子ビームに含まれる偏向ノイズの周波数と方向および振幅を把握した。実験室内の蛍光灯から発生する浮遊電場が偏向ノイズの原因のひとつであったことから、コンデンサの並列接続と浮遊電場シールドを設置した。また、イオンポンプなどの真空機器から生じた偏向ノイズも確認されたが、同様に調査・対策を施した。その結果、偏向ノイズの影響を対策前の状態と比較し、30%程度に低減できた。

また、開き角を高精度で評価するため、円形孔から発生するフレネル縞を用い

た開き角評価手法を開発し、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡に適用した結果、開き角が 8.0×10^{-9} rad に達していることを確認し、磁性材料を原子レベルの分解能で観察した際の偏向角を想定して設定した 10^{-8} rad オーダーを達成することができた。

更に、円形孔を用いた開き角評価手法を電子銃輝度の評価に応用した結果、電子銃輝度は $3.0 \sim 3.6 \times 10^{14}$ A/m²・sr であることを確認した。過去に行われた類似の輝度計測結果と比較すると、本研究で得られた輝度の値はその 1.7～2 倍程度である。従って、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡が、電子線ホログラフィーにおいて大きなアドバンテージである高い輝度を有していることを示すことができた。

6. 第V章の参考文献・参考資料

- [1] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, H. Todokoro, T. Komoda, “Development of a field emission electron microscope” *J. Electron Microsc.*, **28**(1), 1 - 11, (1979).
- [2] T. Kawasaki, J. Endo, T. Matsuda, A. Tonomura, “Development and application of a 350 kV transmission electron microscope with a magnetic field superimposed field emission gun” *Microbeam Analysis*, **3**, 287 - 291, (1994).
- [3] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Tanigaki, T. Shimakura, T. Kawasaki, T. Furutsu, H. Shinada, H. Müller, M. Haider, N. Osakabe, A. Tonomura, “Aberration corrected 1.2-MV cold field emission transmission electron microscope with a sub-50-pm resolution” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 074101, (2015).
- [4] K. Harada, T. Matsuda, J. Bonevich, M. Igarashi, S. Kondo, G. Pozzi, U. Kawabe, A. Tonomura, “Real-time observation of vortex lattices in a superconductor by electron microscopy” *Nature* **360**, 51-53, (1992).
- [5] 松田強, “超伝導磁束量子の直接観察のための高干渉電子顕微鏡に関する研究” 名城大学博士課程論文, p.60, (2001 年).
- [6] T. Akashi, Y. Takahashi, K. Harada, T. Onai, Y. A. Ono, H. Shinada, Y. Murakami, “Illumination semiangle of 10^{-9} rad achieved in a 1.2-MV atomic resolution holography transmission electron microscope” *Microscopy* **67**(5), 286-290, (2018).
- [7] 川崎猛, 高橋由夫, 明石哲也, 谷垣俊明, 小内俊男, 糟谷圭吾, 古津忠夫, 品田博之, 長我部信行, 「1.2 MV 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発」顕微鏡 **51**(2), 122-126, (2016).
- [8] K. Kasuya, T. Kawasaki, N. Moriya, M. Arai, T. Furutsu, “Magnetic field superimposed cold field emission gun under extreme-high vacuum” *J. Vac. Sci. Technol.* **B 32**, 031801, (2014).
- [9] Y. Takahashi, T. Akashi, T. Shimakura, T. Tanigaki, T. Kawasaki, H. Shinada, N. Osakabe, “Resolution assessment of an aberration corrected 1.2-MV field emission transmission electron microscope” *Microsc. Microanal.* **21** (Suppl 3),

- 1865, (2015).
- [10] K. Harada, A. Tonomura, Y. Togawa, T. Akashi, T. Matsuda, “Double-biprism electron interferometry” *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3229-3231, (2004).
- [11] A. Tonomura, “The Quantum World Unveiled by Electron Waves” p.42, (*World Scientific*, Singapore), (1998).
- [12] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.83, 共立出版, (1988).
- [13] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*”, p.67, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [14] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*”, p.69, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [15] 上田良二編, 「電子顕微鏡」 実験物理学講座 23, p.43, 共立出版, (1982).
- [16] 堀内繁雄, 「高分解能電子顕微鏡－原理と利用法－」, p.88, 共立出版, (1988).
- [17] F. Houdellier, A. Masseboeuf, M. Monthieux, M. J. Hytch, “New carbon cone nanotip for use in a highly coherent cold field emission electron microscope” *Carbon* **50**(5), 2037-2044, (2012).
- [18] P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley, M. J. Whelan, “*Electron Microscopy of Thin Crystals*”, p.15, (*Butterworths*, London), (1965).
- [19] 例えば、株式会社大和テクノシステムズ「オスミウム成膜技術」
(<https://www.daiwatechno.co.jp/technology/deposition>).
- [20] L. Reimer, “*Transmission Electron Microscopy*”, p.90, (*Springer Verlag*, Berlin), (1984).
- [21] T. Kawasaki, I. Matsui, T. Yoshida, T. Katsuta, S. Hayashi, T. Onai, T. Furutsu, K. Myochin, M. Numata, H. Mogaki, M. Gorai, T. Akashi, O. Kamimura, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, K. Kitazawa, “Development of 1 MV field emission transmission electron microscope” *J. Electron Microsc.* **49** (6), 711-718, (2000).

第Ⅵ章 超高压電子顕微鏡用の高安定電子線バイプリズム機構の開発

1. はじめに

電子線ホログラフィー[1]は、電子レンズの球面収差を補正し透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) の分解能を向上させる方法として、Gabor によって提案された。干渉性の良い電子ビームを試料に照射することで、試料内外の電場・磁場との相互作用によって位相変調が生じた物体波とその周辺を通過した参照波を重ね合わせることによって、物体波と参照波との位相差を干渉縞として観察する。1956 年には、Möllenstedt と Düker によって開発された電子線バイプリズムを用いて物体波と参照波を重ね合わせる二光束電子線ホログラフィーが行われるようになった[2]。

電子線バイプリズムは、光学におけるフレネルの複プリズムに相当し、二枚の並行平板電極と太さ 1 μm 程度のフィラメント電極で構成される。電子線バイプリズムの微動機構や回転機構などの位置調整機構が組み込まれていることも多く、フィラメント電極に数ボルト～数十ボルト程度の電圧を印加することにより、干渉縞の間隔や干渉領域幅を変化させることができる。しかしながら、過去に報告された電子線バイプリズム機構は、制限視野絞りの技術を転用している場合が多く、原子分解能での電子線ホログラフィー計測においては十分な微動精度を有しているとは言い難い[3]。更に、電子線バイプリズムの交換には鏡体の大気開放が伴うなど、特に超高压電子顕微鏡のように大型装置においては交換に要する時間が長くなることや操作性にも難があるのが現状である。そのため、原子レベルの分解能を追求する超高压電子顕微鏡用の電子線バイプリズムにおいては、高い安定性と操作性を備えた機構を開発する必要がある。

そこで本研究では、超高压電子顕微鏡用に高い安定性と操作性を有する電子線バイプリズム機構を新規開発すると共に、電子線ホログラフィー機能の利便性の向上（干渉縞の本数とピッチの独立制御等）と高感度化のために開発された複数の電子線バイプリズムの利用、いわゆる「ダブル電子線バイプリズム干渉計」[4,5]を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に構築し、その有効性を確認した結果について述べる。更に、開発した電子線バイプリズム機構を 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡にも搭載する。

究極の性能を目指して開発された 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡では、前述の 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を上回る 40 pm レベルの空間分解能[6]と $8.0 \times 10^{-9} \text{rad}$ の開き角[7]が得られていることから、原子レベルの微小領域からの位相変調を検出できることが期待される。そこで、ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いた高分解能電子線ホログラフィーの観察光学系[8]を立ち上げると共に、原子レベルでの電子線ホログラフィー観察の実証を試みた。この点についても言及する。

2. 超高圧電子顕微鏡用電子線バイプリズムの開発

2.1 電子線バイプリズム

電子線バイプリズムは電子ビームに対してプリズムを二つあわせたような働きをする光学機器であり、フレネルの複プリズムに相当する。図 6-1 に電子線バイプリズムの構成を示す。電子線バイプリズムは、フィラメント電極と二つの平行平板電極で構成されている。一般的に、フィラメント電極には直径 1 μm 程度のガラス線が用いられ、チャージアップ防止のため金属コートが施されている。図のように、電子がフィラメント電極と平行平板電極の間を通過するとき、フィラメント電極と平行平板電極間の電位差によって、横方向に力が与えられ偏向する。このとき、電子の偏向量 α は、フィラメント電極の直径を d_f 、フィラメント電極に印加されている電圧を V_f 、フィラメント電極と平行平板電極との距離を r とすると、

$$\alpha = \frac{\pi e}{2E \cdot \ln \left[\frac{d_f}{2} \cdot \frac{1}{r} \right]} \cdot V_f \quad (6.1)$$

によって与えられる。なお式(6.1)の導出については、参考文献[9]に詳しく記されている。ここで、 e は素電荷、 E は加速電圧である。従って、電子の偏向角は、 V_f によって決定することができる。

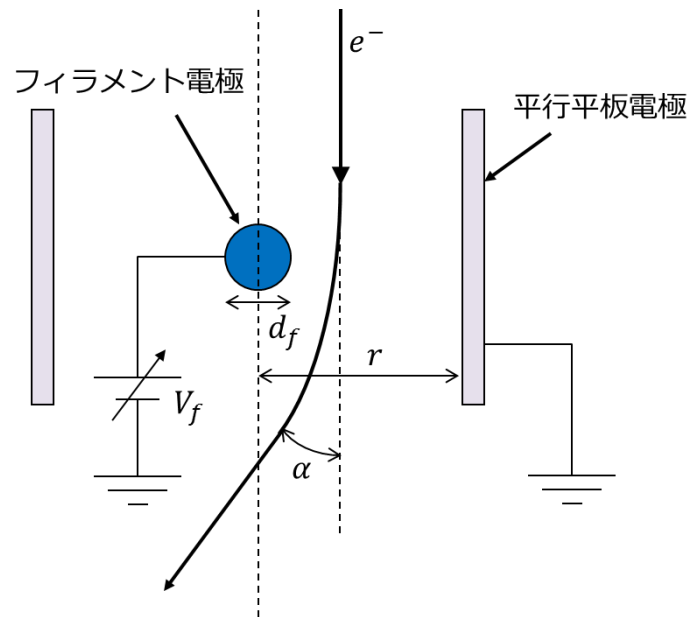


図 6-1 電子線パイプリズムの構成

2.2 超高压電子顕微鏡用電子線パイプリズムの設計仕様

超高压電子顕微鏡に導入する電子線パイプリズム機構の仕様を検討する。原子レベルの高分解能・高感度で電子線ホログラフィーを行うためには、電子線パイプリズム機構においても機械的振動やドリフトが数十ナノメートル以下であることなど、高い安定性が要求される。そこで、電子線パイプリズム機構の基本仕様となる微動機構には試料微動機構を設計ベースにすると共に、外部からの浮遊磁場を遮蔽するためのシールドを配置することで安定性阻害要因の最小化を図った。また、フィラメント電極の交換の際に鏡体の大気開放が伴うと、マイルドベーキングを実施する必要があり装置の復帰までに時間を要する。特に超高压電子顕微鏡では大掛かりな作業になることから、それによる時間のロスが大きい。そこで、鏡体は大気開放すること無くフィラメントの交換が可能な交換機構を導入し、電子線パイプリズム機構の操作性を高めることにした。更に、制限視野絞り等と同時に使用できる構造にすることで、高分解能顕微鏡法や電子線回折法などを用いた観察に支障が無いようにした。

2.3 超高圧電子顕微鏡用電子線バイプリズムの構成

図 6-2(a)に 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に導入した電子線バイプリズム機構の模式図を示す。バイプリズムステージは、XY 微動と回転機構および高電圧印加機構を装備している。最大印加電圧は 1,000 V である。フィラメント電極と平行平板電極は、バイプリズムステージから着脱可能なバイプリズムホルダー（図 6-2(b)）に組み込まれている。電子線バイプリズム機構には一般的な試料交換機構と同様な予備排気機構を有していることから、バイプリズムホルダーの交換時に鏡体を大気開放する必要が無いため、フィラメント電極を容易に交換することができる。また、トップエントリー形試料ステージを参考にして、耐振動性能などの機械的安定性の向上を図った。ステージ周辺には、耐浮遊磁場性能を向上させるため、パーマロイ製の磁場シールドを配置している。なお、制限視野絞りとの機械的干渉を回避しており、これらの同時使用が可能である。

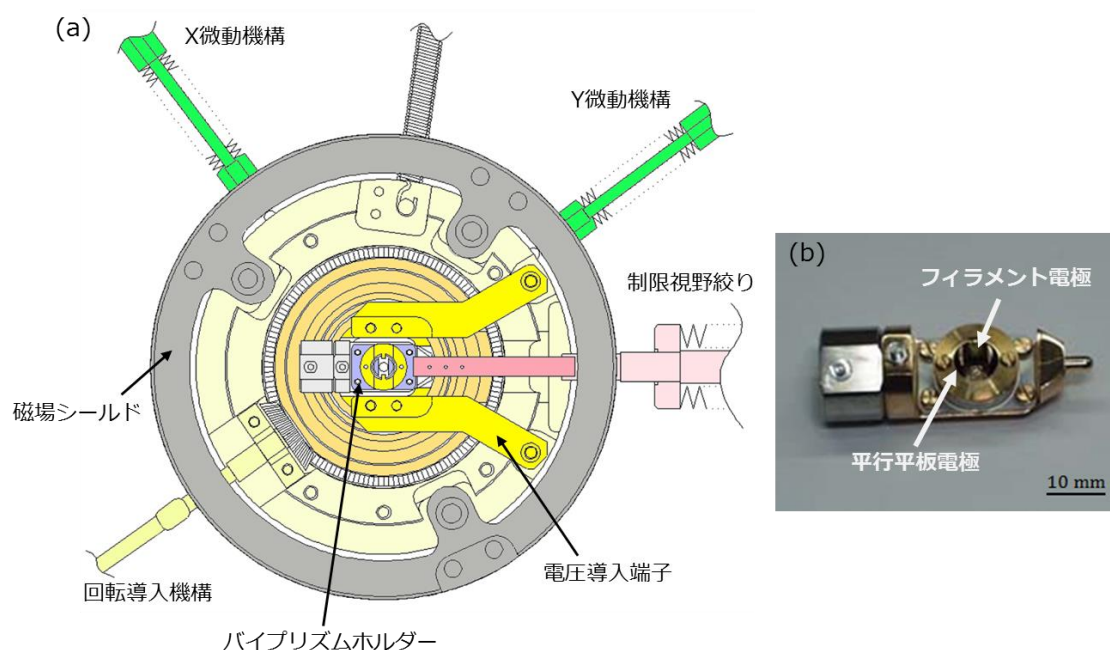


図 6-2(a)バイプリズムステージの模式図、(b)バイプリズムホルダー

図 6-3 に、電子線バイプリズムを搭載した 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の鏡体断面図を示す[10,11]。電子線バイプリズムは、対物レンズと第 1 中間レンズの間、第 1 中間レンズと第 2 中間レンズの間、および第 2 中間レンズと第 3 中間レンズの間の 3 か所に設置されている。それぞれ独立に微動操作、回転操作および電圧印加操作が可能である。バイプリズム交換機構も各々に設置されており、個別に交換することができる。

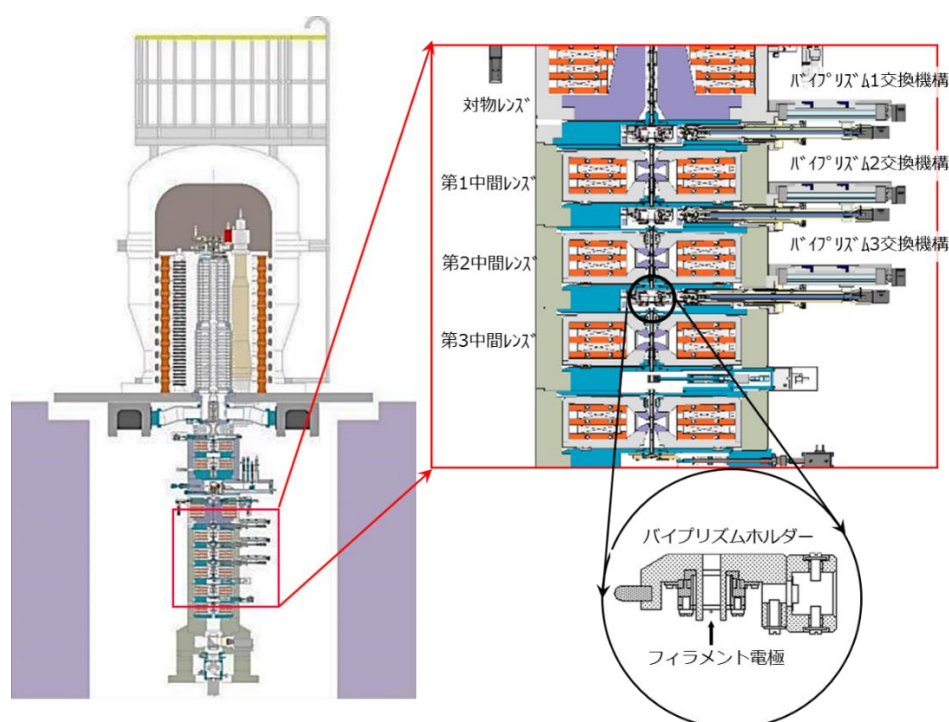


図 6-3 電子線バイプリズムを搭載した 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の断面図

ここで、結像系に設置された 3 台の電子線バイプリズムに関連して、電子線ホログラフィー光学系の自由度を検討する。図 6-4(a)に低倍率広視野観察時、(b)に高倍率高分解能観察時の光学系を示す。どちらの光学系もレンズ位置などの機械的配置は同じである。(a)の広視野観察の光学系は、第 1 中間レンズをフォーカス調整用レンズとして使用しており、バイプリズム 1 を用いている。なお、対物レンズは **OFF** とし

ている。この光学系では、試料の倍率が第 1 中間レンズによって決定される。そのため、低倍率で観察することになり、スクリーン上の第 1 像面では広い視野を観察することになる。一方、(b)の高分解能観察時の光学系では、対物レンズをフォーカス調整用レンズとして使用し、更に第 1 中間レンズで拡大し、バイプリズム 2 を使用する。対物レンズおよび第 1 中間レンズで試料を拡大するため、(a)の光学系よりも観察倍率が高く、試料を高分解能で観察することができる。

このように、スクリーン上の像面において干涉領域幅や干涉縞間隔が同じになるように光学系を調整しても、レンズの使い方と使用するバイプリズムによって、低倍率広視野観察と高倍率高分解能ホログラフィー観察のモードを必要に応じて選定することができる。

しかしながら、実際の電子線ホログラフィーでは、干涉縞間隔や干涉領域幅のパラメータは、クロスオーバーの位置や電子ビームの干渉性などの、その他の因子にも影響を受ける。従って、試料に応じた観察領域や空間分解能を最適化する光学系を構築することが重要である。

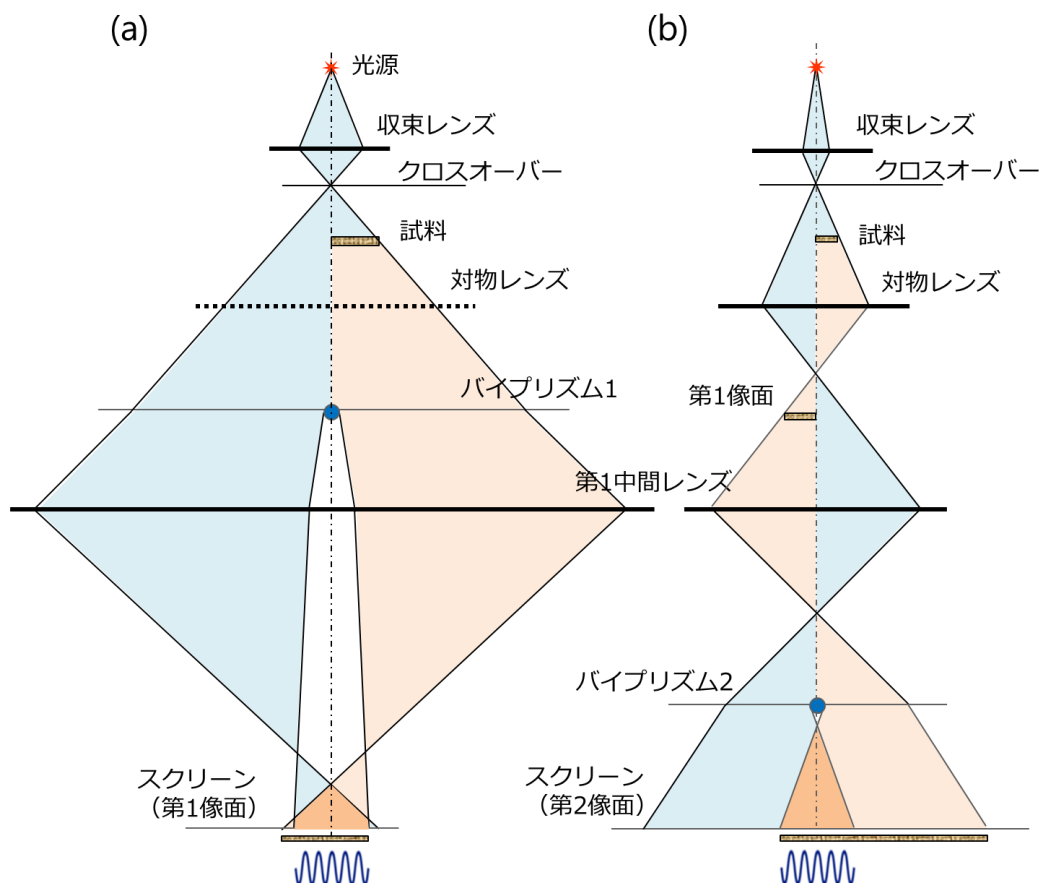


図 6-4(a) 低倍率広視野観察時、(b) 高倍率高分解能観察時の光学系

3. 複数の電子線バイプリズムを用いた電子線ホログラフィー

3.1 ダブル電子線バイプリズム干渉計

電子線ホログラフィーにおいて、干渉縞間隔と干渉領域幅は、空間分解能や観察領域を決定する重要なパラメータである。一般的な電子線ホログラフィーでは、電子線バイプリズムは対物レンズと第 1 中間レンズの間に設置されていることから、干渉縞間隔と干渉領域幅が同時に変化する。言い換えれば、干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御することができない。この問題に対して原田らは、2 台の電子線バイプリズムを用いることによって、干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御できる干渉計を提案した[12]。更に、干渉縞間隔と干渉領域幅だけでなく干渉縞の角度も制御できる干渉計[13]や 3 台の電子線バイプリズムを用いる光学系などを考案し[14]、複数の電子

線バイプリズムを用いた電子線ホログラフィー干渉計を確立した。

図 6-5 に 2 台の電子線バイプリズムを用いて干渉縞間隔と干渉領域幅を独立にコントロールできるダブル電子線バイプリズム干渉計の光学系を示す。Upper バイプリズムを第 1 像面に導入し、Lower バイプリズムを拡大レンズ下部のクロスオーバー面に設置する。ここで、拡大レンズ下部のクロスオーバー面から第 2 像面までの距離を D_l 、Lower バイプリズムから第 2 像面までの距離を L_l とすると、試料面に換算した干渉縞間隔 s_{obj} と干渉領域幅 W_{obj} は、

$$s_{obj} = \frac{1}{M_l} \frac{1}{M_u} \frac{a_2 D_l \lambda}{2[\alpha_l a_2 (D_l - L_l) + \alpha_u b_2 D_u]} \quad (6.2)$$

$$W_{obj} = \frac{1}{M_l} \frac{1}{M_u} 2\alpha_l L_l - \frac{1}{M_u} d_u \quad (6.3)$$

で与えられる。ここで、 $M_u = b_u/a_u$ 、 $M_l = b_l/a_l$ である。式(6.2)において、 D_l と L_l とが一致するとき ($D_l - L_l = 0$)、すなわち図 6-5 の光学系配置で示した拡大レンズ直下のクロスオーバー面に Lower バイプリズムが設置されるとき、干渉縞間隔を Upper バイプリズムの電圧のみによって可変できることになる。このように、Upper バイプリズムと Lower バイプリズムを適切な位置に挿入することによって、電子線ホログラフィーにおける重要なパラメータである干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御できる干渉光学系を得ることができる。

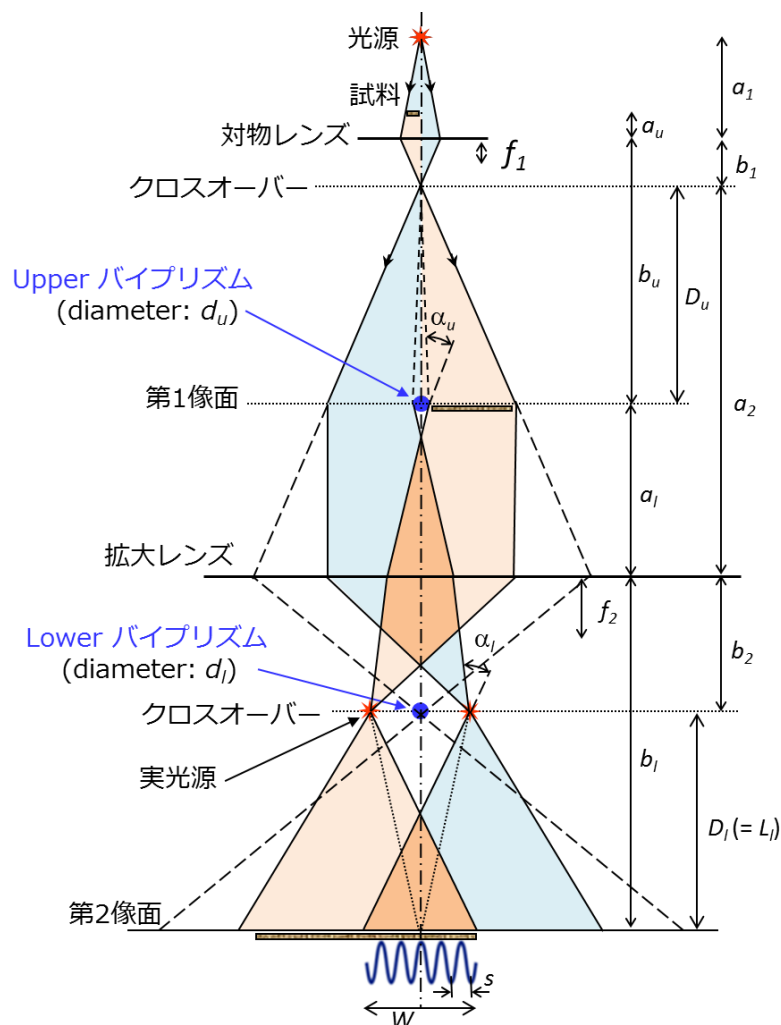


図 6-5 ダブル電子線バイプリズム干渉計の光学系

更に、ダブル電子線バイプリズム干渉計では、フレネル縞が発生しないというメリットがある。図 6-6(a)に通常のコホログラムを示す。試料は酸化マグネシウム微結晶である。干渉領域内にフレネル縞のコントラストを確認できる。(b)に、ダブル電子線バイプリズム干渉計で得たコホログラムを示す。観察場所は(a)(b)共に同じである。干渉領域内にフレネル縞が観察されていないことがわかる。1 台のバイプリズムを使用する通常のシングル電子線バイプリズム光学系では、フィラメント電極が像面とは異なる位置に配置されるため、フレネル縞が観察される。ところが、ダブル電子線バイプリズム干渉計では Upper バイプリズムが対物レンズの像面に導入されるため、バイプリズムから発生したフレネル縞はバイプリズムの像に帰結する。Lower バイプリズム

ムは、拡大レンズのクロスオーバー面に配置され、且つ Upper バイプリズムの影内に収まる。そのため、電子ビームに触れることが無いことから、フレネル縞を発生しない。よって、ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いることで、干渉領域にフレネル縞が重畳しないホログラムを得ることができる。

このように、ダブル電子線バイプリズム干渉計は電子線ホログラフィーにおける重要なパラメータである干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御でき、且つフレネル縞が重畳しないホログラムを得ることができる。従って、電子線ホログラフィーの利便性を高めると共に、高感度化にも貢献できる光学系であるといえる。

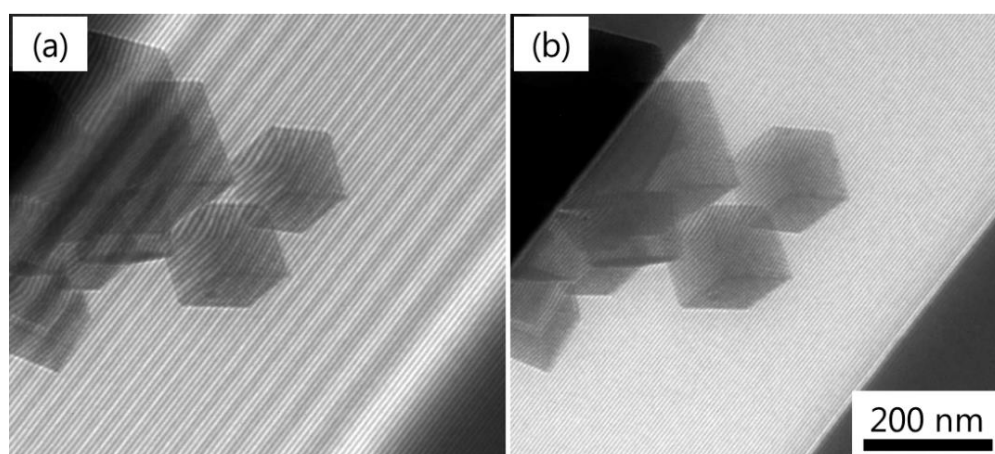


図 6-6(a)通常ホログラム、(b)ダブル電子線バイプリズム干渉計ホログラム。試料は、酸化マグネシウム微結晶である。

3.2 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたダブル電子線バイプリズム干渉計

電子線ホログラフィーにおいて重要なパラメータである干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御できるダブル電子線バイプリズム干渉計を、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡にて構築すると共に、その有効性を確認した。Upper バイプリズムには第 1 中間レンズと第 2 中間レンズの間のバイプリズム 2 を用いており、Lower バイプリズムにはバイプリズム 3 を用いた。

図 6-7 にダブル電子線バイプリズム干渉計にて干渉領域幅をコントロールした

結果を示す。Upper バイプリズムの電圧は固定値(-90 V)であり、Lower バイプリズムの電圧にそれぞれ-60 V、-70 V、-80 V を印加している。Lower バイプリズム電圧が高くなるに従い干渉領域幅が広がっているが、干渉縞間隔は変化していないことがわかる。

図 6-8 に Upper バイプリズム印加電圧を変化させることにより制御した干渉縞間隔の変化を示す。Lower バイプリズム電圧は固定値(-80 V)であり、Upper バイプリズム電圧はそれぞれ-70 V、-110 V、-150 V である。Upper バイプリズム電圧が高くなるに従い干渉縞間隔が細かくなっているが、干渉領域幅は変化していないことがわかる。

このように、従来のシングル電子線バイプリズム光学系では実現が不可能であった干渉縞間隔と干渉領域幅を、ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いることによって、超高圧電子顕微鏡でも独立に制御することが可能であることが確認できた。

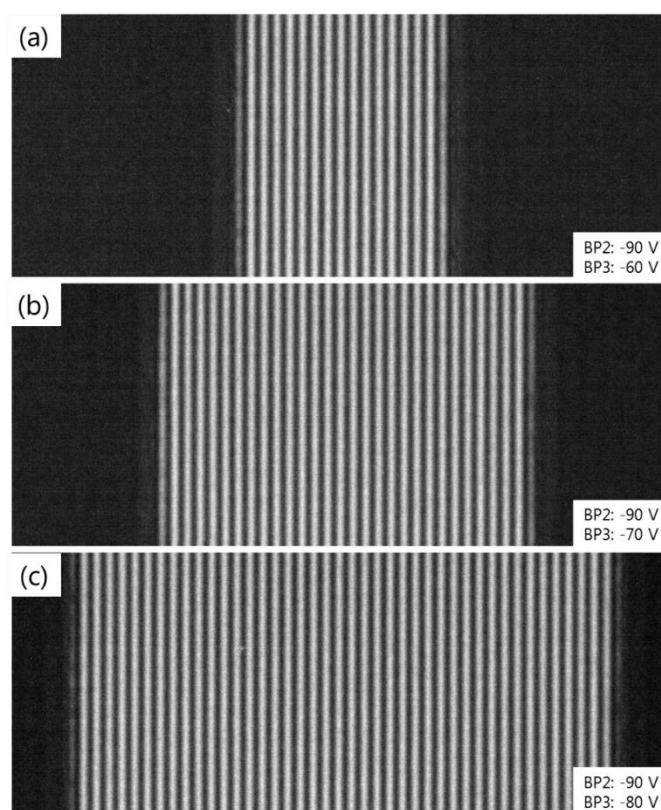


図 6-7 ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いた干渉領域幅のコントロール。

Upper BP は、-90 V である。(a) Lower BP 電圧 -60 V、(b) -70 V、(c) -80 V。

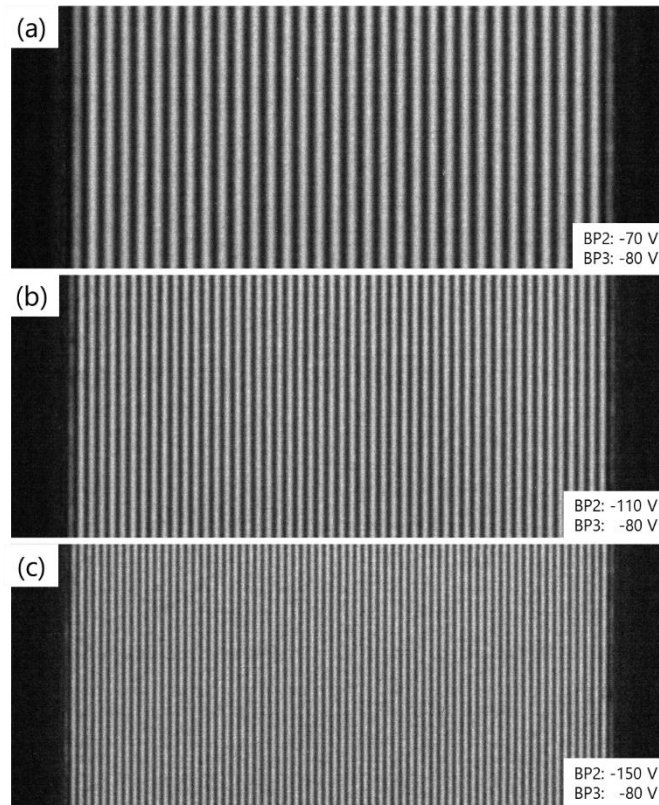


図 6-8 ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いた干渉縞間隔のコントロール
Lower BP は、-80 V である。(a) Upper BP 電圧 -70 V、(b) -110 V、(c) -150 V。

しかしながら、ダブル電子線バイプリズム干渉計において、図 6-5 で示した Lower バイプリズムが結像レンズの回折面と一致する光学系は、対物レンズを含む 6 段の結像レンズを有している 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡で実現させることが難しい。そこで、拡大レンズ直下のクロスオーバー面から光軸方向に十数ミリメートルの範囲内の自由な位置に Lower バイプリズムを配置することで、ホログラムの作成に関わる光学系の改良を試みた。図 6-9 に、Lower バイプリズムの位置を $D_l - L_l > 0$ 、および $D_l - L_l < 0$ の条件で調整したときの光学系を示す。これらの光学系では、Lower バイプリズム電圧を変化させると干渉縞間隔と干渉領域幅が同時に変化することになる。しかしながら、Upper バイプリズムによる干渉縞間隔の独立制御は維持されている。図中では、Lower バイプリズムの位置を変えて記載しているが、拡大レンズの強さを変えたときでも同様に考えることができる。実際に、この改良された光

光学系を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に適用し、ダブル電子線バイプリズム干渉計としての機能を評価したところ、干渉縞間隔と干渉領域幅の独立な制御性が維持できしており、光学的自由度が改善していることを確認した。

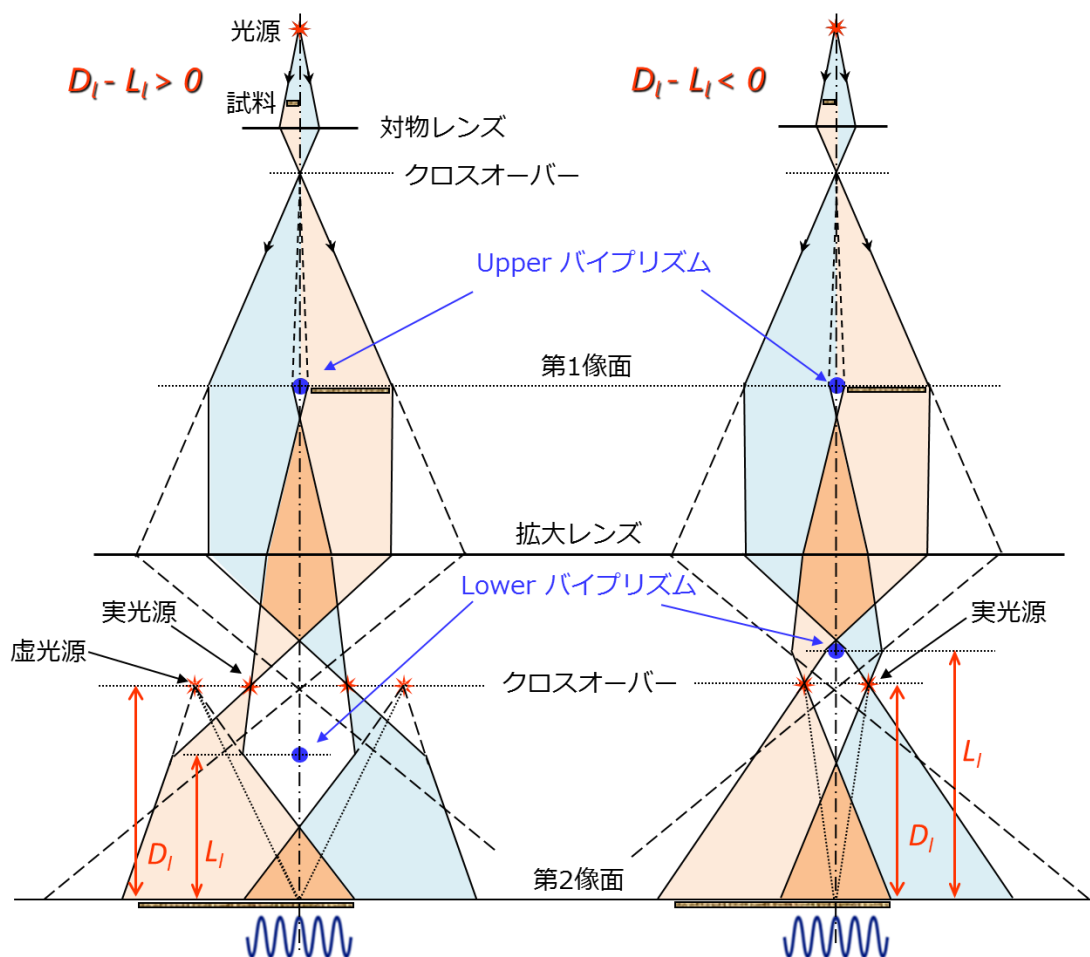


図 6-9 $D_l - L_l > 0$ および $D_l - L_l < 0$ のダブル電子線バイプリズム光学系

4. 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いた原子分解能ホログラフィー

4.1 原子分解能ホログラフィーの評価方法

物質の電磁場を原子スケールで観察することを目標として、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡が 2014 年に完成した。超高压電子顕微鏡としては世界初となる多極子形球面収差補正器を搭載した 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡では、42.9 pm

の空間分解能と、 8.0×10^{-9} rad の開き角という、際だった装置性能が達成された。そこで前述の通り、同じく超高压電子顕微鏡（1 MV ホログラフィー電子顕微鏡）に対して基盤技術を構築したダブル電子線バイプリズム干渉計を、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡に対しても導入し、同機構を用いた原子分解能ホログラフィーの実現を試みた。

図 6-10 に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子線バイプリズム搭載位置を示す。対物レンズを除く 6 段の結像レンズの間に 3 台の電子線バイプリズムを搭載している。搭載箇所は、第 1 中間レンズと第 2 中間レンズの間、第 2 中間レンズと第 3 中間レンズの間および第 3 中間レンズと第 4 中間レンズの間の 3 か所である。

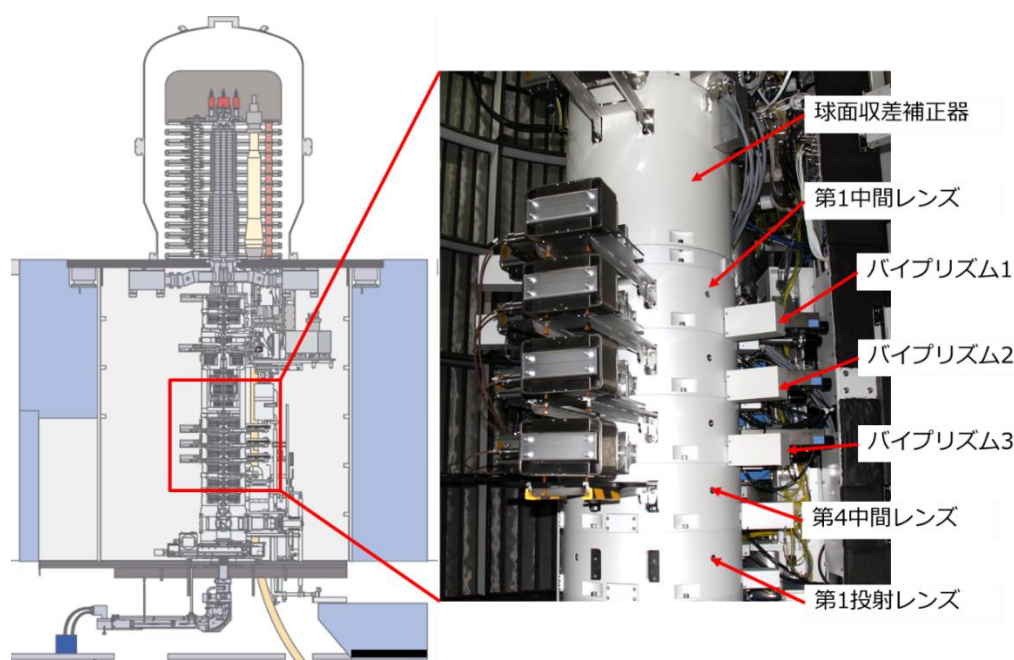


図 6-10 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の電子線バイプリズム

原子レベルでの微小領域における電子線ホログラフィーを行うためには十分な観察倍率を確保する必要がある。そこで、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡のダブル電子線バイプリズム干渉計では、試料と Upper バイプリズムとの間に複数のレンズを配置する設置する光学系を構築した[8,15]。1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡では、球面収差が補正される対物レンズは、ほぼ固定したレンズ電流で使用する。そこで、

観察倍率の調整は主に第 1 中間レンズと第 2 中間レンズの組み合わせによって調整し、バイプリズム 2 とバイプリズム 3 を用いてダブル電子線バイプリズム干渉計を実現した。図 6-11 に高分解能観察用に構築したダブル電子線バイプリズム干渉計を示す。対物レンズが固定なので、第 1 像面も固定される。そこで、第 1 中間レンズと第 2 中間レンズを組み合わせレンズとして使用し、十分な観察倍率を得ると共にバイプリズム 2 と第 3 像面が一致するように各々のレンズを調整する。更に、第 3 中間レンズを用いて第 4 像面を形成し、記録媒体までの結像レンズを用いて、観察するカメラの視野サイズや解像度を考慮した最終倍率を得る。1.2MV ホログラフィー電子顕微鏡には、第 4 像面以下に、第 4 中間レンズ、第 1 投射レンズおよび第 2 投射レンズを設置していることから、十分な倍率でホログラムを記録することが可能である。

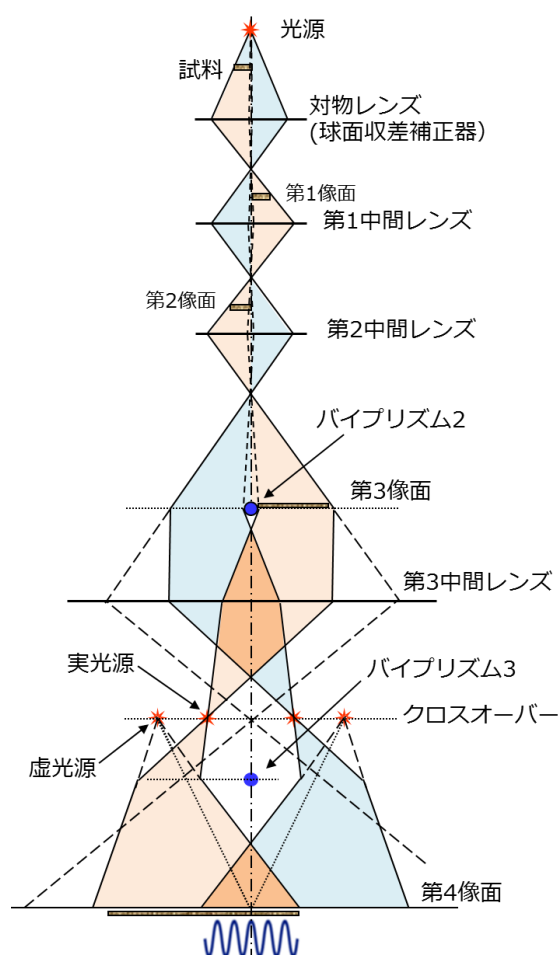


図 6-11 1.2MV ホログラフィー電子顕微鏡で構築した
高分解能観察用のダブル電子線バイプリズム干渉計

4.2 原子分解能ホログラフィーの評価結果

図 6-12 にバイプリズム 2 とバイプリズム 3 による高分解能観察用のダブル電子線バイプリズム干渉計を用いて観察したホログラム観察結果を示す。記録媒体は Direct detection CMOS カメラ (K2[®] Summit Camera, Gatan, Inc.) であり、記録時間は 1 秒である。試料は、マイクログリッドの幹に付着している金微粒子である。(a) はホログラムであり、試料形状が認識しやすいように、オーバーフォーカスで観察している。通常の電子顕微鏡では球面収差係数がプラスであり且つアンダーフォーカスで観察するため原子位置は黒くなる。ところが、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡では球面収差係数がわずかにマイナスになるように調整しておりオーバーフォーカスで観察することで、原子位置が白くなっている。干渉領域幅の調整は、バイプリズム 3 の印加電圧で金蒸着粒子の大きさに合わせた後、バイプリズム 2 の印加電圧で原子分解能となる干渉縞間隔に再調整した。試料面に換算した干渉縞の間隔は、約 43 pm である。(b) に位相再生像を示す。フーリエ変換法による再生処理を行い、位相増幅は $\times 1$ である。位相像において、電子の波面が試料を通過する際に原子のポテンシャルによって波面が上に凸となる位相変調が生じることから、原子位置は白く示される。金の{111}面間隔の 235 pm に対応するコントラストをはっきりと解像できており、原子レベルの空間分解能を有していることがわかる。

ダブル電子線バイプリズム干渉計を用いているため、(a) のホログラムにおいてはフレネル縞が発生しておらず、(b) の位相再生像においてもフレネル縞による位相変化を確認できない。従って、原子分解能での電子線ホログラフィーにおいてもダブル電子線バイプリズム干渉計のメリットが確保されていることがわかる。この結果は、超高压電子顕微鏡用に開発した電子線バイプリズム機構が高い安定性を有していることを示していると共に、超高压電子顕微鏡による電子線ホログラフィーが原子レベルの観察において十分な実用性を有していることを表している。

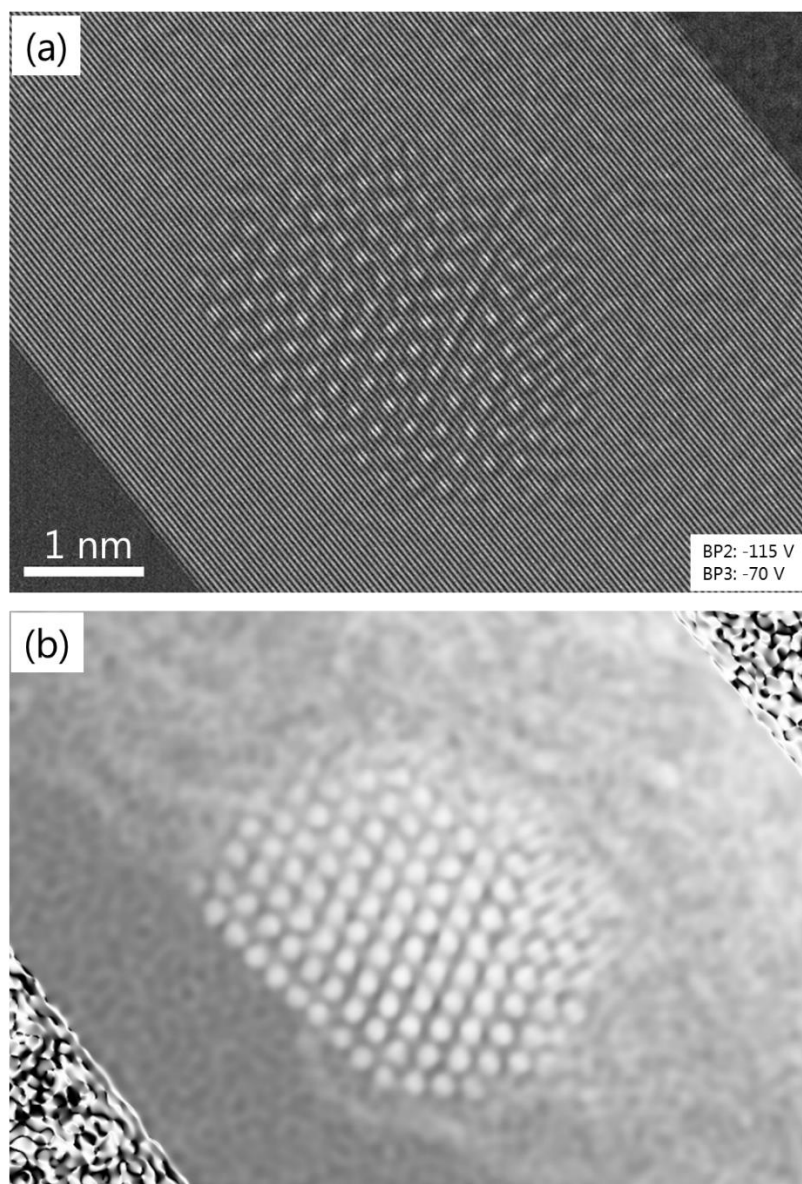


図 6-12 原子分解能ホログラフィーの確認結果。

(a) ホログラム、(b) 位相再生像（位相増幅 $\times 1$ ）

5. まとめ

超高圧電子顕微鏡に電子線ホログラフィー機能を導入するため、超高圧電子顕微鏡用の高安定電子線バイプリズム機構を開発し、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に導入した。試料ステージをベースとした基本設計によって、安定性阻害要因となる

機械的安定性を高めると共に浮遊磁場のシールドを配置した。また、鏡体を排気開放することなく電子線バイプリズムを交換する機構を導入することで操作性を高めた。更に、複数の電子線バイプリズムを用いた「ダブル電子線バイプリズム干渉計」を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に構築した。その結果、干渉縞間隔と干渉領域幅を独立に制御できること及びフレネル縞が重畳しないホログラムが得られることを確認した。しかしながら、複数の結像レンズを有している超高压電子顕微鏡においても電子線バイプリズムと結像レンズの光学的配置による制約のため、光学系における自由度が失われる。そこで、これらの配置による制約を緩めるために光学系を改良することで、電子線ホログラフィーの利便性を高めると共に、高感度化にも貢献できる光学系を構築することができた。

更に、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡においても、「ダブル電子線バイプリズム干渉計」を構築し、実用性を評価したところ、位相再生像にて金単結晶の{111}面に相当する 235 pm 間隔のコントラストをはっきりと解像することができた。この結果は、超高压電子顕微鏡用に開発した電子線バイプリズム機構が高い安定性を有していることを示していると共に、超高压電子顕微鏡による電子線ホログラフィーが原子レベルの観察において十分な実用性を有していることを表している。今後、再生位相像においても高分解能化を進めると共に、原子レベルでの微小領域における電磁場解析を通じて、各種のデバイスや新物質などの開発に貢献できると考えている。

6. 第VI章の参考文献・参考資料

- [1] A. Tonomura, “*Electron Holography*, 2nd ed.” p.15, (*Springer Verlag*, Berlin), (1999).
- [2] G. Möllenstedt, H. Düker, “Beobachtungen und messungen an Biprisma-Interferenzen mit Elektronenwellen” *Z. Phys.* **145**, 377-397, (1956).
- [3] 葛西裕人, 明石哲也, 太田慶新, 原田研, “電子線ホログラフィーにおける位相シフト法” 日本結晶学会誌 **60**, 168-176, (2018).
- [4] K. Harada, A. Tonomura, Y. Togawa, T. Akashi, T. Matsuda, “Double-biprism electron interferometry” *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3229-3231, (2004).
- [5] 明石哲也, 原田研, 戸川欣彦, 松田強, 外村彰, 「ダブル電子線バイプリズム干渉法の開発 I —光学系と基本性能—」 第 65 回応用物理学会学術講演会 講演予稿集 No. 2, p.606. (2004).
- [6] T. Akashi, Y. Takahashi, T. Tanigaki, T. Shimakura, T. Kawasaki, T. Furutsu, H. Shinada, H. Müller, M. Haider, N. Osakabe, A. Tonomura, “Aberration corrected 1.2-MV cold field emission transmission electron microscope with a sub-50-pm resolution” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 074101, (2015).
- [7] T. Akashi, Y. Takahashi, K. Harada, T. Onai, Y. A. Ono, H. Shinada, Y. Murakami, “Illumination semiangle of 10^{-9} rad achieved in a 1.2-MV atomic resolution holography transmission electron microscope” *Microscopy* **67**(5), 286-290, (2018).
- [8] K. Harada, A. Tonomura, T. Matsuda, T. Akashi, Y. Togawa, “High-resolution observation by double-biprism electron holography” *J. Appl. Phys.* **96**(11), 6097, (2004).
- [9] 原田研, “電子線ホログラフィー顕微鏡法の開発” 大阪大学博士課程論文, p.77, (1990).
- [10] T. Kawasaki, T. Yoshida, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, “Fine crystal lattice fringes observed using a transmission electron microscope with 1 MeV coherent electron waves” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1342–1344, (2000).

- [11] T. Kawasaki, I. Matsui, T. Yoshida, T. Katsuta, S. Hayashi, T. Onai, T. Furutsu, K. Myochin, M. Numata, H. Mogaki, M. Gorai, T. Akashi, O. Kamimura, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, K. Kitazawa, “Development of 1 MV field emission transmission electron microscope” *J. Electron Microsc.* **49** (6), 711-718, (2000).
- [12] K. Harada, T. Akashi, Y. Togawa, T. Matsuda, A. Tonomura, “Optical system for double-biprism electron holography” *J. Electron Microsc.* **54**(1), 19, (2004).
- [13] K. Harada, T. Akashi, Y. Togawa, T. Matsuda, A. Tonomura, “Variable interference azimuth angle in double-biprism electron interferometry” *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**(20), L636-L639, (2005).
- [14] K. Harada, T. Matsuda, A. Tonomura, T. Akashi, Y. Togawa, “Triple-biprism electron interferometry” *J. Appl. Phys.* **99**, 113502, (2006).
- [15] 原田研, 戸川欣彦, 松田強, 明石哲也, 外村彰, 「ダブル電子線バイプリズム干渉法の開発Ⅱ ―高分解能ホログラフイー―」 第 65 回応用物理学会学術講演会 講演予稿集 No. 2, p.606, (2004).

第Ⅶ章 おわりに

各種デバイスや実用材料あるいは新物質において、原子オーダーでの構造解析や局所領域の電磁場解析が行える透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope : TEM) は、強力な観察ツールのひとつである。近年では、レンズの収差を補正する技術が市販されるようになり、TEM の性能は飛躍的に向上している。

TEM において重要な性能である分解能は、加速電圧や対物レンズなどの設計仕様によって決定される。しかしながら、設計分解能を実現するためには、機械的振動や電気ノイズの最小化を図り、TEM 本体の安定性を十分に高めなければならない。とりわけ、高分解能電子顕微鏡法や電子線ホログラフィーなど、原子レベルでの構造解析や電磁場観察を行う手法においては、TEM 本体の振動や電子ビームの進行方向にばらつきを与えるノイズなどを最小化する必要がある。従って、TEM の性能を十分に発揮するためには、性能決定要因を正確に評価することが重要である。

実例として、日立製作所の外村を中心とした研究チームは、原子レベルの電磁場を高分解能かつ高感度で可視化できる究極のホログラフィー電子顕微鏡の実現を目指し、2010 年から 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発を開始した。この開発に参画した著者は、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の空間分解能の達成に向けた要素技術の開発と電子線ホログラフィーによる高感度位相計測のために必要な技術開発を担当した。この電子顕微鏡の目標性能は 40 pm レベルの分解能と電子線ホログラフィーにおいて原子レベルの微小領域における微弱な位相差を検出することである。そのため、高安定磁界重畳型電界放出電子銃が搭載された加速電圧 1.2 MV の超高压電子顕微鏡に、超高压電子顕微鏡としては世界初となる球面収差補正器が導入された。このような高分解能・高感度仕様のホログラフィー電子顕微鏡の開発は世界初の試みであり、究極的な目標性能を達成するためには分解能等の性能決定要因を正確に評価するためのプロセスを確立するところから研究を行い、装置の設計そのものにフィードバックする必要がある。本研究を実施した背景には、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡という未踏の研究設備の稼働・活用に関わる技術的な案件があり、その克服はまさに喫緊の課題であった。

以上のような経緯と背景を踏まえて、本研究では 1.2 MV ホログラフィー電子

顕微鏡に対する目標分解能（世界最高水準の 40 pm 級の空間分解能）の達成に向けた要素技術の開発と、電子線ホログラフィーによる高感度位相計測のために必要な要素技術の開発を行った。

電子線ホログラフィーの高分解能化・高感度化のためには、実験に用いる TEM の分解能と干渉性の向上が必須である。そのためには、ホログラフィー電子顕微鏡の基本性能を精緻に評価する必要がある。しかしながら、究極的な性能の獲得を目指す TEM では設計上の性能が真に達成されているかどうかを評価すること自体が難しい場合が多い。更には、原子レベルの電子線ホログラフィーを行うためには、電子線バイプリズムの性能も評価する必要がある。そこで、電子線ホログラフィーの高分解能化・高感度化に関する技術課題を解決するため、以下の研究を実施した。

1. 結晶格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発
2. 超高压電子顕微鏡の加速電圧安定性向上に関する技術開発
3. 情報伝達性能の評価手法の開発
4. 円形孔を用いた電子ビームの干渉性評価手法の開発
5. 超高压電子顕微鏡用の高安定電子線バイプリズム機構の開発

以下に、個々の課題に対して得た結果を要約する。

第Ⅱ章 結晶格子像を用いた機械的安定性評価手法の開発

TEM の最も重要な性能である分解能は、原理的には電子ビームの波長や対物レンズの収差などの電子光学的因子によって決定される。実際の装置設計では、理論的性能を踏まえたうえで、TEM 本体や設置環境に関わる機械的振動等の安定性阻害要因も考慮し、各部位で実現すべき仕様が決定される。具体的には、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の 40 pm レベルの分解能という目標性能を達成するためには、安定性阻害要因による分解能の劣化は 30 pm 以下に抑制する必要がある。そこで、安定性阻害要因からの影響を評価するために、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて要素技術を開発した。分解能劣化への影響が最も大きいと考えられる機械的振動に着目

し、鏡体振動の最小化を図ると共に、高精度に機械的安定性を評価するために結晶性試料を用いた格子像観察による評価手法を検討・適用し、その有効性を確認した。

具体的には、鏡体に加速度センサを設置して鏡体振動を計測することで、機械的振動の発生源を特定すると共に対策を施した。更に、TEM の機械的安定性を高感度で評価するため、「暗視野結像法を用いた色消し格子縞観察」という手法を考案した。これによって、電子ビームの波長ゆらぎなどの電子光学的要因を抑制し、TEM の機械的安定性をこれまでにない精緻に計測することができた。本手法の有効性を確認した結果、完成時の 40%に相当する 19.6 pm の色消し格子縞観察に成功し、本研究で施した低振動化が効果的であったことを示すと共に、本研究で開発された要素技術が安定性阻害要因からの影響を 20 pm レベルで評価できることが示された。なお、本研究で示した「暗視野結像法を用いた色消し格子縞観察」は、一般的に市販されている TEM においても適用可能である。今後の TEM の分解能性能向上において、本手法の貢献が期待される。

第Ⅲ章 超高压電子顕微鏡の加速電圧安定性向上に関する技術開発

従来、TEM の分解能には対物レンズの球面収差が大きな影響を与えていた。しかし、過去 20 年の研究によって球面収差を補正する技術が開発され、同技術は世界的に普及している。球面収差が補正された状況では、分解能は電子ビームのエネルギーばらつき、すなわち色収差に強く依存する。色収差の低減は、色収差係数の低減と電子ビームのエネルギーばらつきの低減により実現できる。しかしながら、電子のエネルギーばらつきの直接の原因となる加速電圧の安定性に関しては、電界放出電子銃を搭載した超高压電子顕微鏡の稼働台数が少ないため、電子銃の性能を発揮することを目指した電圧安定性を得るための技術開発例は多くない。そこで、本研究では、1 MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いて安定性阻害要因を探索し、その対策技術を開発することで加速電圧安定性向上に対する指針を得ることを目的とした。具体的には、加速電圧に含まれる数 Hz のドリフト、商用周波数ならびに kHz オーダーの電圧変動（リップル）を分離して検出・評価し、各々の安定度阻害要因からの影響を最小化すると共に、これらの対策が加速電圧の安定性に及ぼす効果を確認した。

加速電圧に含まれる数 Hz のドリフトにおいては、加速電圧電源の構成部品周辺の温度変化を抑制した結果、対策前の 56% 程度である $0.28 \times 10^{-6}/\text{min}$ 以下の安定性を達成した。加速電圧に含まれる商用周波数成分のリップルについては、逆位相電圧源による補正技術を導入した。また、加速電圧駆動周波数の kHz オーダーのリップルに対しては、フィルター回路内のフィルター抵抗器の抵抗値の最適化ならびに、電源内に存在する交流成分の浮遊電場・磁場からの干渉を防止するため、電磁場シールドを設置した。その結果、商用周波数および駆動周波数に起因するリップル電圧の振幅が対策前の 19.8% 程度となる 84.7 mV に改善したことを確認し、色収差が低減したことが示された。

1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の性能目的である 40 pm 級の分解能を達成するためには、 $0.5 \times 10^{-6}/\text{min}$ 以下の加速電圧安定性が求められる。このような加速電圧の安定性を精緻に評価するためには、本研究で開発された要素技術の利用が不可欠である。

第IV章 色収差格子縞を用いた空間周波数情報伝達性能に対する評価手法の開発

高分解能電子顕微鏡像に含まれる微細構造の情報を評価するうえで、「情報伝達性能」という指標がある。情報伝達性能の一般的な評価手法では、非晶質試料の高分解能電子顕微鏡像を用いた解析が行われる。具体的には、高分解能電子顕微鏡像の二次元フーリエ変換図形（ディフラクトグラム）における強度分布、すなわち周波数成分の強度分布解析を行う。この手法では、非晶質試料による電子ビームの散乱が、評価すべき空間周波数領域において十分な強度を有していることを前提としている。しかしながら、高い分解能を有する装置の評価において重要となる高周波数の領域では、非晶質試料に由来する散乱強度が相対的に低下するため、十分な S/N 比を確保することが難しく、情報伝達性能の詳細な解析が難しくなる。

この問題を解決するために、本研究では非晶質試料ではなく、高周波数領域まで明瞭な Bragg 反射を示す結晶性試料を利用した。結晶性試料から生じる Bragg 反射は同じ空間周波数で比較すると非晶質試料の散乱強度よりも強い強度を得ることができることから、高周波数領域における S/N 比が改善し情報伝達性能を広範囲の空間

周波数にわたって解析できるようになることが期待できる。具体的には、光軸上透過波と回折波によって形成される格子縞を用いることで、色収差が影響している光学条件で形成された干涉縞を観察・解析する情報伝達性能評価手法を開発した。この手法を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に適用したところ、39.2 pm 間隔の格子縞を観察することに成功した。この結果は、実空間上の 39.2 pm に相当する 25.5 nm^{-1} の空間周波数情報を正確に伝達する性能を有していることを示している。

本研究では開発した上記技術を 1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡にも適用し、情報伝達性能を評価した。1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡では対物レンズの収差が補正されていることから、情報伝達性能を計測することで装置分解能そのものを決定することができる。色収差が影響している光学条件で形成された干涉縞を評価した結果、42.9 pm の格子縞を観察することに成功したことから、装置の分解能は 23.3 nm^{-1} ($=1/42.9 \text{ pm}$)であることを示した。この結果によって、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能である 40 pm レベルの分解能を達成したことを示した。

なお、本研究で提唱した情報伝達性能評価技術は、収差補正器の有無によらず、一般的に市販されている TEM に適用可能である。今後、電子顕微鏡の分解能ならびに情報伝達性能の評価に利用されることを期待する。

第V章 円形孔を用いた電子ビームの干涉性評価手法の開発

電子線ホログラフィーにおいて、試料内外の電磁場によって生じる微弱な位相変調を高感度に検出するためには、電子ビームの干涉性が十分に高いことが必須である。試料に照射する電子ビームの干涉性は、その進行方向の角度ばらつきを示す開き角によって示すことができる。すなわち、開き角が小さいほど干涉性が良い。しかしながら、電子ビームの進行方向にばらつきを与えるようなノイズ（偏向ノイズ）が混入していると、開き角が増大する。従って、微弱な位相変調を高感度に検出できる干涉性を得るためには、電子ビームに含まれる偏向ノイズを低減することが必須であると共に、開き角を正確に計測することが重要である。

電子ビームに含まれる偏向ノイズを低減するため、本研究では TEM をオシロスコープと見做して Lissajous 図形を描画させ、電子ビームに含まれる偏向ノイズの

周波数と方向および振幅を把握した。その結果、偏向ノイズの原因のひとつとして、実験室内の蛍光灯から生じる浮遊電場が Beam deflector (BD) コイルを介して、電子ビームに混入していることを明らかにした。この結果を踏まえて、BD コイル回路にフィルターコンデンサを接続すると共に BD コイルケーブルに電位シールドを設置した。その他、イオンポンプなどの真空機器から生じる偏向ノイズが確認されたが、同様に調査・対策を施すことにより、電子ビームに含まれる偏向ノイズを対策前の値に対して 30%程度に低減することができた。

開き角は、フレネル縞が観察できる限界の距離、すなわち可干渉距離を計測することによって求めることができる。しかしながら、試料エッジから離れるに従い縞間隔が細くなることから、十分な解像度で記録するためには大きなデフォーカス量に調整することが必要である。また、可干渉距離全体を記録するためには、数百倍～数十倍程度の、通常は利用することのない低倍率条件に対する光学系を構築する必要がある。このような観察条件では歪像収差が重畳していることが多いことから、試料の無い空間に生じているフレネル縞を観察するときには電子顕微鏡像の倍率校正が困難であり、正確な可干渉距離を計測することができない。本研究では、歪像収差が重畳している電子顕微鏡像においても可干渉距離を正確に計測するため、直径が既知の円形孔を用いた可干渉距離計測手法を構築した。歪像収差が重畳している電子顕微鏡像においても円形孔の半径は変わらないから、円形孔をフレネル縞で完全に埋めきることができれば、可干渉距離は円形孔の半径以上であるといえる。結果的に、円形孔の中心部においてフレネル縞の観察可否を判定することで、開き角を正確に評価することが可能となる。

本手法を用いて、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡で観察されるフレネル縞の解析と、それに基づく開き角の評価を行った。その結果、開き角が 8×10^{-9} rad に達し、高い干渉性を有していることが確認できた。この値は、例えば原子レベルで磁性材料の磁場を観察することを想定した目標値である 10^{-8} rad オーダーを満足している。更に、本手法の応用として、電子銃輝度の計測を行った。開き角と同時に試料面上の電流密度を計測した結果、電子銃輝度として $3.0 \sim 3.6 \times 10^{14}$ A/m²・sr という値を得た。本計測手法では、電子ビームの照射領域中心部の僅かな領域の電流密度を用いて電子

銃輝度を算出していることから、軸上輝度を反映した数値が得られていると考えている。従来の輝度測定方法とは異なるために直接的な比較は難しいが、類似の輝度計測結果と比較すると、本研究で得られた輝度の値は、その 1.7~2 倍程度である。従って、世界最高レベルの輝度値が得られていると考えている。これらの結果により、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡において原子レベルの電磁場を高分解能かつ高感度で可視化できる見通しを得た。更には、本研究で提唱した解析技術は、一般的に市販されている TEM においても適用可能である。今後、電子顕微鏡の性能評価（開き角と電子銃輝度の評価）に利用されることを期待する。

第VI章 超高压電子顕微鏡用の高安定電子線バイプリズム機構の開発

原子分解能での電子線ホログラフィーにおいて、電子線バイプリズムには高い安定性と操作性が要求される。しかしながら、過去に開発された電子線バイプリズム機構には、原子分解能でホログラフィーを実施するのに十分な微動精度・安定性が備わっていない。また、バイプリズムの交換等において鏡体の大気開放が伴うため、超高压電子顕微鏡にとっては操作性にも難がある。そこで、本研究では、超高压電子顕微鏡用に高い安定性と操作性を有する電子線バイプリズム機構を新規に開発した。原子レベルの高分解能・高感度で電子線ホログラフィーを行うためには電子線バイプリズム機構においても機械的振動やドリフトが数十ナノメートル以下であることなどの高い安定性が必須である。そこで、試料微動機構を設計ベースにすると共に外部からの浮遊磁場などの安定性阻害要因を遮蔽するシールドを配置した。また、鏡体を大気開放することなくバイプリズムの交換が可能な交換機構を初めて導入することで、操作性を向上させた。

更に、開発した電子線バイプリズム機構を 1 MV ホログラフィー電子顕微鏡に導入すると共に、複数の電子線バイプリズムを用いた「ダブル電子線バイプリズム干渉計」を構築した。その結果、従来のシングル電子線バイプリズム光学系では実現が難しかった「干渉縞間隔と干渉領域幅の独立制御」のほか、バイプリズムワイヤに起因するフレネル縞が干渉縞に重畳しないホログラムを得ることが可能となり、位相検出の高感度化に対して極めて有効であることが確認できた。

本研究では、1.2 MV ホログラフィー電子顕微鏡に対しても、ダブル電子線バイプリズム干渉計を備えた電子線バイプリズム機構を導入した。原子分解能電子線ホログラフィーの実用性を評価するため、金微粒子を観察した結果において位相再生像にて 235 pm の静電ポテンシャル分布を解像することができた。本研究を通して、超高圧電子顕微鏡を用いた電子線ホログラフィーが原子レベルの観察において十分な実用性を有していることが実証された。

謝辞

本学位論文の作成に当たり、私を工学府博士後期課程社会人特別選抜に快く受け入れてくださり、多くのご指導やご鞭撻を賜りました九州大学 大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門の村上恭和教授に深く感謝を申し上げます。九州大学 大学院 総合理工学研究院の波多聰教授、九州大学 大学院 工学研究院 安田和弘准教授には、学位審査の副査をお引き受けいただき、論文取りまとめにつき貴重なご意見を頂きました。厚く御礼申し上げます。

私の学位取得に対して貴重なご助言を頂くと共に、学位論文の作成に必要な学術誌への投稿論文の執筆に対しても懇切丁寧なるご指導、ご助言を頂きました理化学研究所の原田研博士、小野義正博士、畠田恵子氏に心から感謝を申し上げます。

本研究は株式会社日立製作所基礎研究センタ、株式会社日立ハイテクノロジーズならびに株式会社日立ハイテクフィールドディングでの業務を通して行っていました。現在、私が所属する日立製作所基礎研究センタの品田博之博士には、社会人博士課程による学位取得にあたり、深いご理解、ご配慮、ご支援を頂きました。心から感謝を申し上げます。日立製作所基礎研究センタの高橋由夫博士、小内俊男氏には、学位論文に必要な学術誌への投稿論文の執筆において、懇切丁寧なるご指導、ご助言を頂きました。深く御礼を申し上げます。研究や実験に遂行において、懇切丁寧なるご指導、ご助言を賜りました日立製作所基礎研究センタの守谷騰氏、川崎猛博士、吉田高穂氏、菅原昭博士、葛西裕人氏、谷垣俊明博士に感謝申し上げます。研究や実験の遂行において、多大なご協力を頂きました日立ハイテクノロジーズの茂垣宏明氏、古津忠夫氏、増田秀樹氏に深く感謝申し上げます。電子顕微鏡に関する設計、製作、組み立て調整等において、ご協力を頂きました 元日立製作所の勝田禎治氏、五来正広氏、海老澤信利氏、小林信也氏、並びに日立ハイテクノロジーズの諸氏、日立ハイテクフィールドディングの諸氏に心から感謝申し上げます。

最後に、本研究を進めるにあたり、電子線ホログラフィーならびに電子顕微鏡全般において、懇切丁寧なるご指導、ご助言を賜りました、日立製作所の故外村彰博士、松田強博士、長我部信行博士、日立ハイテクノロジーズの故松井功氏に深く感謝申し上げます。