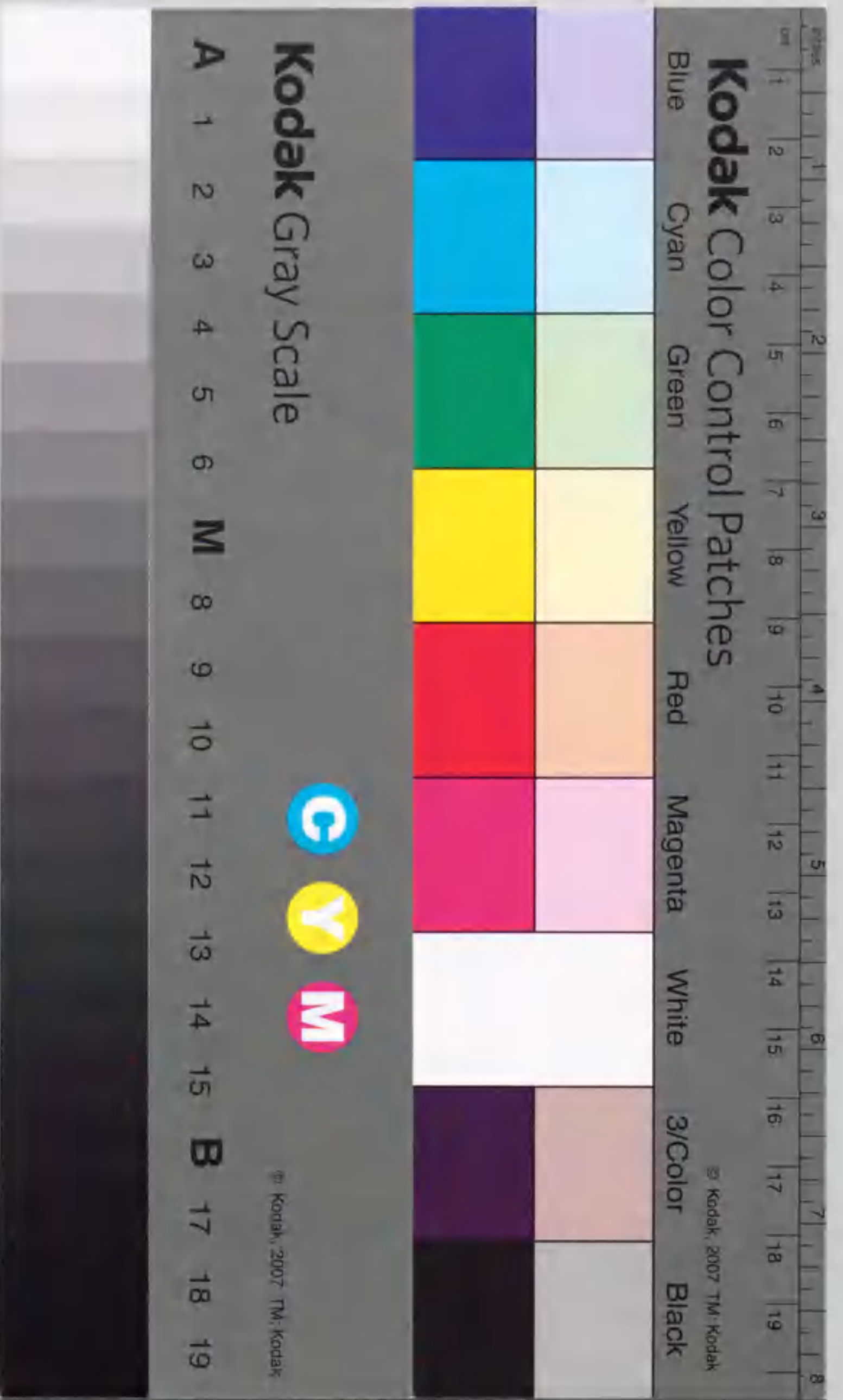


極微小領域の電場・磁場観察のための
電子波干渉法に関する研究



①

報告番号 乙第 5343 号

極微小領域の電場・磁場観察のための
電子波干渉法に関する研究

平山 司

目 次

第1章 序論

- 1.1 研究の背景とねらい
- 1.2 本論文の構成

第2章 電子線ホログラフィの原理と手法

- 2.1 緒 言
- 2.2 ポテンシャル場中の電子の位相
- 2.3 電子波の干渉性
 - 2.3.1 波面分割と振幅分割
 - 2.3.2 波の干渉性
 - 2.3.3 空間干渉性と輝度
- 2.4 ホログラフィの結像原理
- 2.5 二光束電子線ホログラフィの原理と手法
 - 2.5.1 ホログラムの形成
 - 2.5.2 波面再生と干渉顕微鏡像形成
- 2.6 結 言

第3章 強磁性体微粒子の磁区構造観察

- 3.1 緒 言
- 3.2 磁性体を透過電子顕微鏡で観察する時の問題
 - 3.2.1 磁界レンズの構造と問題
 - 3.2.2 レンズ OFF 法
 - 3.2.3 磁気シールドポールピースを使用する方法
- 3.3 バリウムフェライト単磁区粒子
 - 3.3.1 単磁区粒子の観察
 - 3.3.2 単磁区粒子の干渉顕微鏡像の理論計算
- 3.4 連鎖状鉄超微粒子
- 3.5 結 言

第4章 オンラインリアルタイム電子線ホログラフィ

- 4.1 緒言
- 4.2 液晶パネルの性質とシステムの開発
 - 4.2.1 液晶パネルの構造と位相変調特性
 - 4.2.2 オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステム
- 4.3 パーマロイ磁壁移動の観察
- 4.4 加熱によるバリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移の直接観察
- 4.5 結言

第5章 電場・磁場の3次元再構成(電子線ホログラフィCT)

- 5.1 緒言
- 5.2 CTの手法と電磁場再構成への応用
- 5.3 電場の3次元再構成
 - 5.3.1 電場再構成の理論
 - 5.3.2 微粒子形状再構成の実験方法
 - 5.3.3 微粒子形状再構成の実験結果
- 5.4 磁場の3次元再構成
 - 5.4.1 磁場再構成の理論
 - 5.4.2 磁場再構成の実験方法
 - 5.4.3 磁場再構成の実験結果
- 5.5 結言

第6章 3波干渉法

- 6.1 緒言
- 6.2 3波干渉法の原理と理論
- 6.3 3波干渉法の実験方法
- 6.4 3波干渉法の実験結果と考察
 - 6.4.1 ラテックス粒子周辺の電場観察
 - 6.4.2 ラテックス粒子の帯電量の計算
 - 6.4.3 電場の動的観察
 - 6.4.4 磁力線観察
- 6.5 結言

第7章 結論

- 7.1 本研究の成果
- 7.2 将来展望

第1章 序論

1.1 研究の背景とねらい

粒子性と波動性は電子が持つ2つの顔である。電子がこの相補的性質を持つことを利用して幾多の計測観察手法が発明され、そして極限的にまで高められて来た。電子顕微鏡法はその代表例である。電子顕微鏡の歴史を振り返ると、電子線物理は電子の粒子性と波動性を巧みに利用して成長した分野であることがよくわかる。

1897年 J. J. Thomson よって「陰極線」は負の電荷を持つ荷電粒子「電子」の流れであることが明らかにされた。電子が粒子であるという認識の始まりである。一方電子を含むあらゆる物質の波動性は1924年 de Broglie によって予言された。電子の波動性は1927年 C. J. Davisson と L. H. Germer¹⁾ のニッケル単結晶を用いた電子線回折実験で証明され、現代物理学における一つの重要な柱である電子線回折結晶学が始まり、電子線を波動として扱う計測技術が現実のものとなった。

1931年、Ruska²⁾ はコイルに電流を流した時にできる軸対称な磁場が電子線に対してレンズ作用を持つことに注目し、倍率約20倍の電子顕微鏡を作った。この発明自体は電子を粒子的にとらえた古典電磁気学的なものとも解釈できるが、電子波の波長は原子の大きさより2桁小さいことから電子顕微鏡の分解能はすぐに光学顕微鏡のそれを超え、原子を直視できるようになると期待された。しかし、まもなく電子レンズの本質的欠陥が指摘された。球面収差が非常に大きく、とても波長レベルの分解能は得られないことが明らかになった。光学レンズにも当然球面収差はあるが、凸レンズと凹レンズを適当に組み合わせることにより相殺することができる。しかし、電子レンズには原理的に凸レンズしか存在しないためにこのような方法が使えなかった。この問題を打開するためにいくつかの方法が提案された。その代表例である「焦点距離の短い強磁場レンズを使って球面収差を極力小さくし、近軸光線のみで結像させる」方法により、今日では200

kV 電子顕微鏡で球面収差係数 0.4 nm、点分解能 0.18 nm という機種もできている。また、電子線加速のための高電圧や対物レンズ電流の安定性はいずれも $2 \times 10^{-6} / \text{min}$ 以下に制御され、試料ドリフト速度は 1 nm/min 以下におさえられている。このような、堅実で継続的な技術開発によって、1 個の原子までもとらえられる今日の超高分解能電子顕微鏡まで発展してきている。

一方、上に述べた電子レンズの収差の補正法としてきわめて独創的な方法が 1948 年 D. Gabor^{3, 4)} によって提案された。この方法は電子の波動性を利用して電子の波面をフィルムに記録し、光を使ってその波面を再生するものであった。この結像方法は「全体を記述する」という意味のギリシア語から「ホログラフィ」と名付けられた。当時は干渉性のよい電子源がなかったために電子線ではなく光を用いて原理的実験がなされた。そのころ Gabor はイギリスの British Thomson Houston (BTH) 社に勤めていたが、親会社の Associated Electrical Industries (AEI) の新しい研究所で Gabor との共同研究チームが電子線ホログラフィの研究を進めることになった。このとき、この企業研究に国から研究費が与えられたことは注目に値する。しかし、本質的に干渉性の良い光を使っても困難なホログラフィを当時の干渉性の悪い電子線で行うのはさらに至難の技であり、ついに彼らはその実現をあきらめざるを得ないという結論を下した。ちょうどそのころ Gabor は BTH 社を離れて Imperial College に移り、研究者達も電子線ホログラフィのことを忘れてしまったかのように見えた。

日本では日比ら⁵⁾ のグループが電子線ホログラフィの価値を早期から認識し、干渉性の良い電子線源を得るために 1956 年ポイントフィラメントを発明した。この発明は画期的に輝度を向上させ、干渉実験の技術の進歩に大きく貢献したが、それでもなお電子線ホログラフィに十分な干渉性には至らなかった。

1960 年のレーザーの出現によってホログラフィは再び注目されることになる。1963 年 Leith と Upatnieks^{6, 7)} は干渉性の良いレーザー光を使い、かつ共役像を別の場所に結像させる「2 光束法」を導入して再生像を得た。この後、ホログラフィは光の分野で急速に

発展した。今日では「ホログラフィ」と言えば光のホログラフィを連想する人の方が多い。

電子線の分野では 1968 年外村ら⁸⁾ が Fraunhofer ホログラフィで電子線ホログラフィが可能なることを実証し、ドイツの Möllenstedt ら⁹⁾ が 2 光束電子線ホログラフィを実現している。しかし、この段階では電子線ホログラフィによって得られる情報は通常の透過電子顕微鏡によって得られる情報を越えておらず、あえて 2 段階結像という複雑なプロセスを踏むメリットは人々にまだ十分認識されていなかった。

このころ理論物理の分野では量子力学における「場」の重要性について歴史的な議論がなされていた。1959 年 Aharonov と Bohm¹⁰⁾ によって「量子力学における電磁気ポテンシャルの重要性」と題する論文が「フィジカルレビュー」に発表された。この中で示されたある思考実験が後に AB 効果とよばれるようになった。AB 効果にはもともとは電場に関するものと磁場に関するものがあるが、今日では後者を指すことが多く、本研究に関係するものも磁場に関するものである。この論文によれば、量子力学において電子と相互作用するのは磁場ではなくベクトルポテンシャルである。彼らは長いソレノイドコイルの外側では磁場が存在しないのにベクトルポテンシャルは存在することに注目し、ソレノイドコイルを含む空間で電子波の干渉を起こし、干渉縞の位置の変化によってベクトルポテンシャルが物理的実在であることを示す実験を提案したのである。この論文は賞賛されるよりもむしろ世界中の物理学者を動揺させ、直ちに多くの実験物理学者が検証を試みた。しかし、この実験のためには高度な実験技術が必要であり、容易ではなかった。1961 年 Bristol 大学の Chambers¹¹⁾ は磁場によって電子波の位相が変化することを初めて示した。1962 年ドイツの Möllenstedt¹²⁾ は Aharonov と Bohm が提案した実験そのものを行った。結果は理論で予想されたとおりであった。電子は磁場に触れることなくベクトルポテンシャルによってその位相が変化したのである。これらの実験によって、電子波干渉実験が量子力学の基礎実験として非常に重要な意味を持つことが認識され始めた。さらに 1967 年電子線ホログラフィで電磁場が観察できることが Cohen¹³⁾ によって提案され、1972 年には外村ら¹⁴⁾ が、1973 年にはイタリアの Pozzi ら¹⁵⁾ が磁性体観

察の実験結果を発表した。通常の電子顕微鏡法では、磁場は純粋な位相物体であるために正焦点でコントラストをつけて観察をすることはできない。この研究を通して電子線ホログラフィの本来の目的とは異なる利用法とそのメリットが次第に明らかになってきた。

しかし、電子線ホログラフィの真価を発揮するには電子波の干渉性がまだまだ不足しており、電子線ホログラフィの発達に障害となった。さらに干渉性のよい電子線を得るためには電界放射型電子銃の開発が必要不可欠であった。1968年 A. V. Crewe¹⁶⁾ は電界放射型電子銃を走査型電子顕微鏡に用いて原子レベルの分解能を達成したが、電界放射型電子銃の安定した動作を実現するにはなお長い年月が必要であった。

1970年代末に外村ら¹⁷⁾が開発した電界放射型電子銃を搭載した電子顕微鏡の出現によって、電子線ホログラフィはようやく実用域に入り、電子レンズの収差補正¹⁸⁾、電磁場の観察¹⁹⁻²²⁾、AB効果の実験的検証²³⁻²⁶⁾など次々と成果が発表された。しかし、電子線ホログラフィの実験ができるのは自力で開発した電界放射型電子銃搭載の電子顕微鏡を持つわずかな人々に限られていた。

1981年、新技術事業団は創造科学技術推進事業をスタートさせ、林・超微粒子プロジェクトなど合計4つの研究プロジェクトがライフタイム5年という枠の中で研究活動を開始した。そして、1989年、日立製作所基礎研究所の外村 彰をリーダーとする「外村位相情報プロジェクト」が発足し、電子線ホログラフィの国家的研究プロジェクトが研究を開始した。このころ、電界放射型電子顕微鏡の市販機（日立 HF-2000）が現れ、電子線ホログラフィの研究人口増加に大きく寄与するきっかけとなった。

現在、電子線ホログラフィの研究には2つの方向性がある²⁷⁾。一つは Gabor 以来の目的である電子レンズの収差補正を行い電子顕微鏡の分解能を越えることである。もう一つは電磁場やベクトルポテンシャルのような場の状態を計測観察することである。筆者は後者に注目し、微小領域の電磁場を観察する手法の研究を行ってきた。微小領域の電場・磁場に関する情報を実空間の映像として得ることは磁性体や超伝導体の基礎的研究として重要なばかりでなく、種々の材料や素子を開発する上でも非常に役立つと考え

られるからである。しかしながら、材料研究や素子開発など実用的用途を考えると、電子線ホログラフィは大変有用でありながら制約も多く、広く普及するには至っていない。その制約とは、(1) 位相計測の感度が十分でないため磁力線観察の実質的空間分解能が電子顕微鏡の分解能より2桁悪いこと、(2) ホログラフィが2段階の結像方法であるため本質的に実時間観察が困難であること、(3) 試料による電子線の散乱角が非常に小さくホログラムに立体情報を記録できないために、光のホログラフィのような立体観察ができないことなどである。もしこれらの問題が解決されると、実用的分野への応用には計り知れないものがある。

そこで、次に挙げる事項を本研究の目的とした。

- (1) 磁場（磁力線）観察の分解能と計測感度を一層向上させ、微粒子などの微小領域に特別に発現する物理現象を探るとともに、それらの結果を材料科学やデバイス開発などの実用的分野に役立てる。
- (2) 実時間電子線ホログラフィを実現し、動的観察のデモンストレーションをおこなう。
- (3) 物質や場の3次元再構成を行う手法（アルゴリズム）を開発し、その有効性を示す。
- (4) ホログラフィ電子顕微鏡だけで直接電場・磁場などの純位相物体を可視化する手法を開発する。

1.2 本論文の構成

本論文は電子線ホログラフィの位相計測感度の向上に関する技術開発、微小領域のみに特別に発現する磁気現象の研究、実時間電子線ホログラフィの実現とその磁性体研究への応用、物質や場の3次元再構成法、そして電磁場を直接観察する新しい電子波干渉法などの研究をまとめたものである。以下、各章ごとにその概要を述べる。

第1章では本研究の背景とねらいについて述べ、本論文の概要と構成を述べた。

第2章では電子線ホログラフィの原理と手法についてまとめ、高感度位相計測を実現する上での問題点と解決策について論じる。

第3章では実際に実験を行ったバリウムフェライト、連鎖状鉄超微粒子などの強磁性体微粒子の磁区構造の観察、特に単磁区粒子の観察について記述する。

第4章では不可能と思われていたオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムの開発とそれを利用したパーマロイ薄膜の磁壁移動やバリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移の観察について述べる。

第5章では物質や場の3次元再構成を行う電子線ホログラフィCTを実現したアルゴリズムの開発について述べ、その応用であるラテックス粒子形状の3次元再構成やバリウムフェライト単磁区粒子から空間に湧き出る磁力線の3次元再構成について記述する。

第6章では著者が新規に考案した微小領域の電磁場を直接観察する電子波干渉法「3波干渉法」について述べる。

第7章では本研究で得られた研究成果をまとめ、今後この分野で目指すべき研究課題と将来への展望について論じる。

参考文献

- 1) C. Davisson and L. H. Germer, Phys. Rev. 30 (1927) 705.
- 2) M. Knoll and E. Ruska, Z. Physik, 78 (1932) 318.
- 3) D. Gabor, Nature 161 (1948) 777.
- 4) D. Gabor, Proc. Roy. Soc. London A, 197 (1949) 454.
- 5) T. Hibi, J. Electron Microsc. 4 (1956) 10.
- 6) E. N. Leith and J. Upatnieks, J. Opt. Soc. Am. 52 (1962) 1123.
- 7) E. N. Leith and J. Upatnieks, J. Opt. Soc. Am. 53 (1963) 1377.
- 8) A. Tonomura, A. Fukuhara, H. Watanabe and T. Komoda, Jpn. J. Appl. Phys. 7 (1968) 295.
- 9) G. Möllenstedt and H. Wahl, Naturwiss. 55 (1968) 340.
- 10) Y. Aharonov and D. Bohm, Phys. Rev. 115 (1959) 485.
- 11) R. G. Chambers, Phys. Rev. Lett. 5 (1960) 3.
- 12) G. Möllenstedt and W. Buhl, Z. Phys. 169 (1962) 492.
- 13) M. S. Cohen, J. Appl. Phys. 38 (1967) 4966.
- 14) A. Tonomura, Jpn. J. Appl. Phys. 11 (1972) 493.
- 15) G. Pozzi and G. F. Missiroli, J. Microscopie, 18 (1973) 103.
- 16) A. V. Crewe, D. N. Eggenberger, J. Wall and L. M. Welter, Rev. Sci. Instrum. 39 (1968) 576.
- 17) A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, H. Todokoro and T. Komoda, J. Electron Microsc. 28 (1979) 1.
- 18) A. Tonomura, T. Matsuda and J. Endo, Jpn. J. Appl. Phys. 18 (1979) 1373.
- 19) A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii and K. Mihama, Phys. Rev. Lett. 441 (1980) 430.
- 20) A. Tonomura, T. Matsuda, H. Tanabe, N. Osakabe, J. Endo, A. Fukuhara, K. Shinagawa

and H. Fujiwara, Phys. Rev. B 25 (1982) 6799.

- 2 1) N. Osakabe, K. Yoshida, Y. Horiuchi, T. Matsuda, H. Tanabe, T. Okuwaki, J. Endo, H. Fujiwara and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 42 (1983) 746.
- 2 2) T. Matsuda, A. Tonomura, R. Suzuki, J. Endo, N. Osakabe, H. Umezaki, H. Tanabe, Y. Sugita and H. Fujiwara, J. Appl. Phys. 53 (1982) 5444.
- 2 3) A. Tonomura, T. Matsuda, R. Suzuki, A. Fukuhara, N. Osakabe, H. Umezaki, J. Endo, K. Shinagawa, Y. Sugita and H. Fujiwara, Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 1443.
- 2 4) A. Tonomura, H. Umezaki, T. Matsuda, N. Osakabe, J. Endo and Y. Sugita, Phys. Rev. Lett. 51 (1983) 331.
- 2 5) A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo S. Yano and H. Yamada, Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 792.
- 2 6) N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, A. Tonomura, S. Yano and H. Yamada, Phys. Rev. A. 34 (1986) 815.
- 2 7) 丹司 敬義、矢田 慶治、応用物理、59 (1990) 18.

第2章 電子線ホログラフィの原理と手法

2.1 緒言

本章では電子線ホログラフィの概要を記述する。量子力学の示唆する「物質の2重性」により、電子は波としての性質を持ち、その振る舞いは位相と振幅の情報を含む波動方程式によって記述される。電子線ホログラフィは位相と振幅の両方の情報、つまり波の複素振幅を再生する技法である。

電子線ホログラフィはすでに第1章で述べたように D. Gabor^{1, 2)} が電子レンズの球面収差を補正して電子顕微鏡の分解能を超えることを目的として1948年に提案した方法である。この方法の最大の特徴は、レンズによる通常の1段階の結像と違い、電子顕微鏡によるホログラムの撮影と光学再生系による像再生の2段階結像である点にある。電子波の干渉現象を最も積極的に活用した結像方法である。

以下に於いては、まず電磁場中での電子の位相について、量子力学の基本であるシュレディンガー方程式に立ち返って考察し、電子線ホログラフィで計測できる物理量が何であるかを明らかにする。そして、電子波干渉実験に不可欠な電子波の干渉性について述べる。その後電子波位相計測の原理と実際の手法を示す。

2.2 ポテンシャル場中の電子の位相

ベクトルポテンシャル $A(\mathbf{r})$ 、スカラーポテンシャル $V(\mathbf{r})$ 中の電子の挙動は次のシュレディンガー方程式に従う。

$$\left[\frac{1}{2m} \{-i\hbar \text{grad} + eA(\mathbf{r})\}^2 - eV(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}) \quad (2 \cdot 1)$$

ここに、 e 、 m 、 Ψ 、 E はそれぞれ電子の電荷、質量、波動関数、及びエネルギーである。また、 $\hbar = h/2\pi$ はプランク定数である。上式を WKB 近似を用いて解くと、図 2-1 に示すような 2 つの電子軌道 I 及び II を通る電子波の位相差 $\Delta\phi$ は次式で表される³⁾。

$$\Delta\phi = \frac{1}{\hbar} \oint_c (\sqrt{2m(E - eV)} - eA_s) ds \quad (2 \cdot 2)$$

ここに、 A_s はベクトルポテンシャルの電子軌道に沿った成分であり、積分は電子軌道 I と II を連結した経路に沿って行う。

本研究のような透過型電子顕微鏡を用いた場合の電子線のエネルギーは 200 keV 程度であり計測の対象となる試料の内部電位などは高々数十ボルトであるので、 $E \gg eV$ が成立する。これを用いて (2・2) 式を近似的に展開すれば次式が得られる。

$$\Delta\phi = \oint_c \left(k - \frac{eV}{2E} k - \frac{e}{\hbar} A \right) \cdot ds \quad (2 \cdot 3)$$

ここに、 k は波数ベクトルである。上式第 1 項は、光路差による位相変化を表している。本研究の中心となるバイプリズムを使用した電子波干渉に於いては物体波と参照波の光路差は等しく、この項は無視できる。第 2 項はスカラーポテンシャルによる位相変化を示しており、電場分布を観察する時に関係する項である。この位相差 $\Delta\phi$ は次式で表される。

$$\Delta\phi = -\frac{ek}{2E} \oint_c V(x, y, z) ds \quad (2 \cdot 4)$$

ただし、 $V(x, y, z)$ は電位分布を表す。第 3 項はベクトルポテンシャルによる位相変化

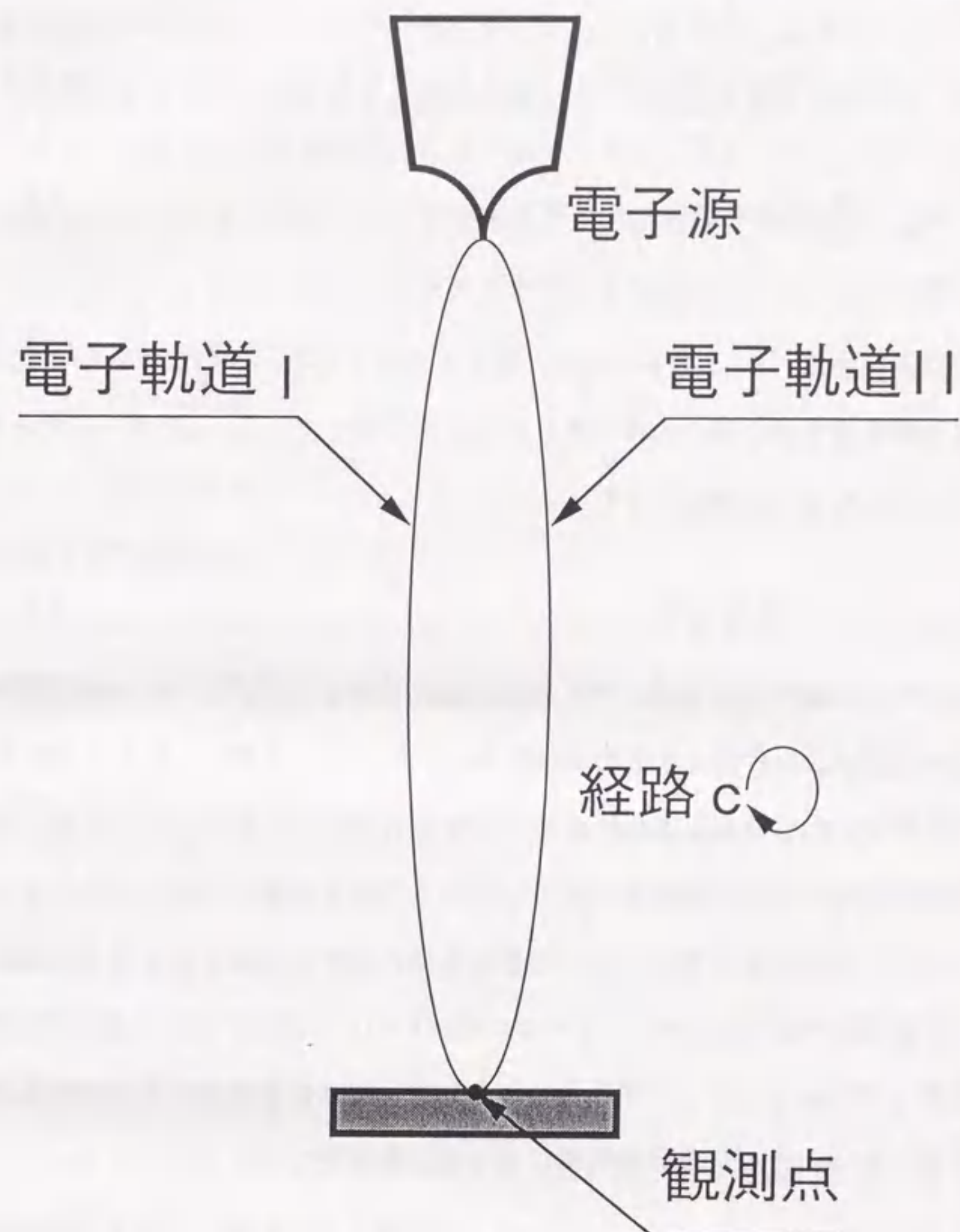


図 2-1 電子波の位相計測

であり、位相変化は電子線の進行経路に沿ったベクトルポテンシャルの周回線積分で表されることを示している。この項はストークスの定理によって次式のように書き換えることができ、閉回路Cを貫く磁束によって位相が変化する形にすることができる。

$$\Delta\phi = -\frac{e}{\hbar} \oint_C A(x, y, z) \cdot ds = -\frac{e}{\hbar} \int_S B(x, y, z) \cdot dS \quad (2 \cdot 5)$$

ここに、 B は磁束密度、 S は電子線軌道に囲まれた面である。この式は位相変化が磁束密度と電子線軌道を囲む面の内積で表されることを示している。 B が一定であれば上式はさらに次式のように簡略化される。

$$\Delta\phi = -\frac{e}{\hbar} \Phi \quad (2 \cdot 6)$$

Φ は電子線の軌道が囲む面を垂直に貫く磁束の量である。この式から、 h/e の磁束に対して電子波の位相は 2π 変化することがわかる。すなわち、磁束をとおりぬけた電子波の等位相線は磁束 h/e につき1本現れることになる。

電場を観察する時も磁場を観察する時も、それらの場を透過した電子波の等位相線を見ることになる。電場観察の場合は等位相線は電場の向きに垂直な線となり、磁場観察の場合には等位相線は磁束に沿った線となる。磁束に沿った線はいわゆる磁束線であり、直感的に理解しやすい。また、いずれの場合も3次元の場を2次元平面に投影した像を見ることになるため、得られた像の解釈には十分注意を要する。

2.3 電子波の干渉性

2.3.1 波面分割と振幅分割

干渉を起こすには、普通1つの光源から出た光を適当な光学装置によって2つの光束に分割し、再び重ね合わせる。この2つの光束を取り出す方法には、光の波面上の同一の点から振幅を二分して2つの光束を取り出す「振幅分割」と波面を分割して位置の異

なる2つの場所から光束を取り出す「波面分割」がある⁴⁾。電子顕微鏡法に於ける格子像の形成は、試料のある場所を透過した波とその場所で回折した波がレンズによって再びもとの場所にもどることにより形成される。これは振幅分割型干渉であり、干渉縞のコントラストは電子波の干渉性にほとんど依存しない。これに対し、バイプリズムによる干渉縞形成はもともと位置の異なる物体波と参照波を電子線の偏向によって重ね合わせる干渉である。これは波面分割型干渉であり、干渉縞のコントラストは電子波の横方向の干渉性に強く支配される。

2.3.2 波の干渉性

(波のゆらぎと相関性)

波の振幅と位相は不確定性原理に基づく不規則なゆらぎを持っている。先述のように1つの光源から出た光を適当な光学装置によって2つの波動に分割し、再び重ね合わせて干渉を起こす時、一般にこの2つの波の振幅や位相のゆらぎには相関性がある⁴⁾。この相関の強さによって2つの波動は完全に可干渉 (completely coherent) になったり、部分的に可干渉 (partially coherent) になったりする。完全に相関がなければ非可干渉 (incoherent) となり干渉縞は形成されない。

(空間干渉性と時間干渉性)

ここで、波の干渉性をできるだけ単純にして考察するために、図2-2に示すようなYoungのダブルスリットによる干渉実験を考える。電子源から放出された電子は経路1または経路2を通して観察面上の観測点 r に達する。スリット1及びスリット2から観測点 r までの距離をそれぞれ r_1, r_2 とする。電子が経路1あるいは経路2のどちらを通ったか決定できる実験条件下では、点 r 上の波の強度は経路1を通った波と経路2を通った波のそれぞれの強度の単なる和となり、干渉縞は形成されない。しかし、電子がどちらの経路を通ったか決定出来ない条件下においては、観測位置での電子の存在確率は経路1を通った波と経路2を通った波の重ね合わせによって決まり、干渉縞が現れる。

電子がどちらの経路を通ったか決定できないという実験条件について考える。図2-

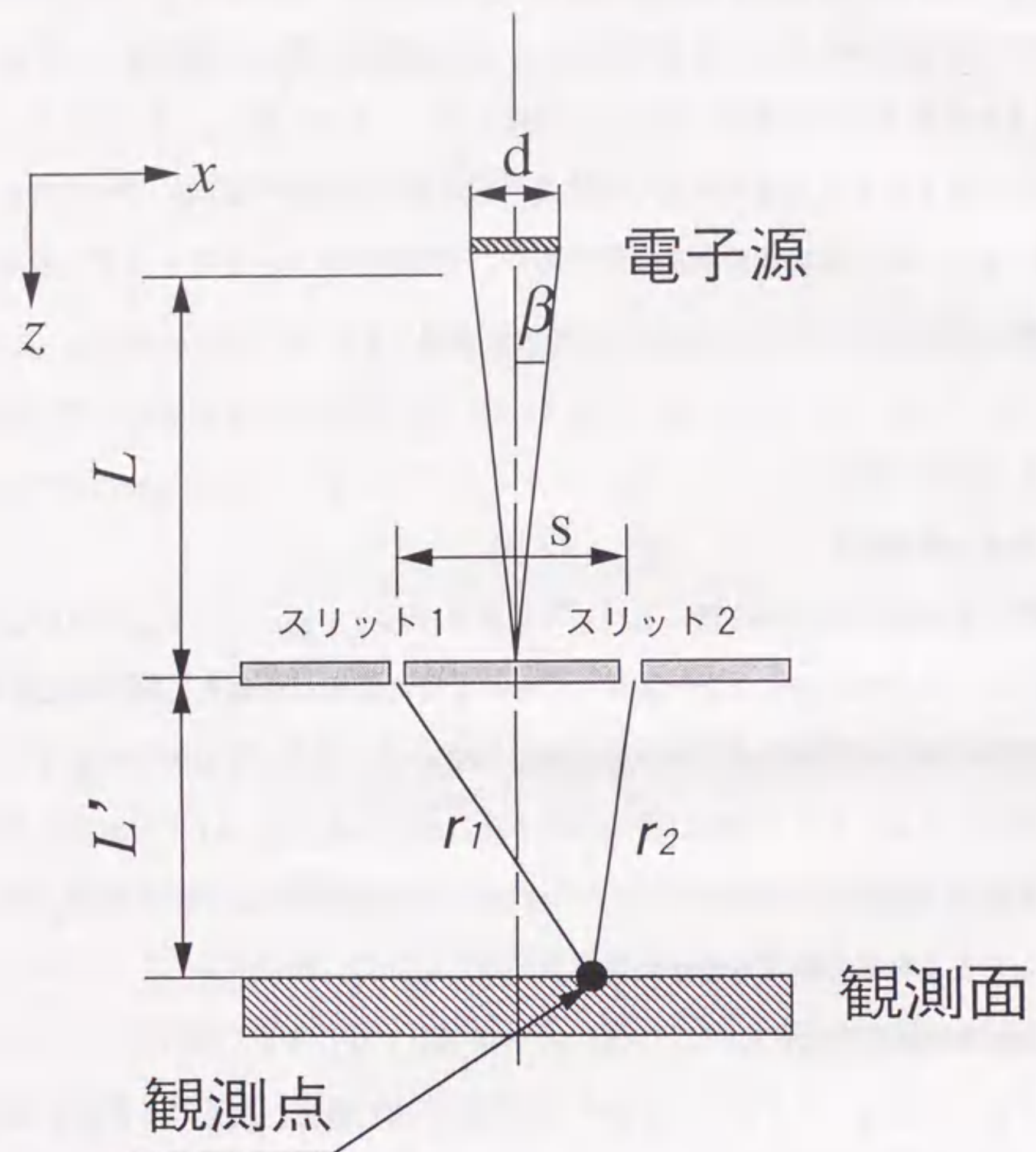


図 2-2 Young のダブルスリット干渉

2に示すように直径 d の光源から出た電子線が鉛直下向きに少しだけ離れたスリット面上を照らしているとする。集束レンズなどは簡単のため省略してある。スリット面での電子の運動量を p 、 p の電子の運動と垂直な方向成分（横方向成分）の不確定性を Δp_x とすれば Δp_x は次式で表される。

$$\Delta p_x = p \frac{d}{L} \quad (2 \cdot 7)$$

また、不確定性原理より $\Delta p_x \cdot \Delta x \approx \hbar$ であるから、電子の横方向の位置の不確定さ Δx は

$$\Delta x = \frac{\hbar L}{pd} \quad (2 \cdot 8)$$

となる。この Δx は空間的に電子が干渉する範囲を与えるため、空間的可干渉距離とよばれる。 Δx がスリット間の距離 s より大きければ電子はどちらのスリットを通ったか決定できなくなり、干渉が起こる。すなわち、干渉が起こる条件は次式で表される。

$$s \leq \frac{\hbar L}{pd} \quad (2 \cdot 9)$$

電子顕微鏡を用いた電子波の干渉実験では、後述（2.3.3節）のように実質的に Δx を大きくする必要があり、輝度の高い電界放射型電子銃が必要となる。

電子の運動方向（縦方向）の位置の不確定性と光路差に関しても、同様の議論が成立する。縦方向の電子の位置の不確定さ Δz は次式で与えられる。

$$\Delta z = v \cdot \Delta t = v \frac{\hbar}{\Delta E} \quad (2 \cdot 10)$$

ここに、 v は電子の平均速度、 Δt はエネルギーの不確定さ ΔE との相補性により決まる時間の不確定さであり可干渉時間と呼ばれる。この式は、電子の運動方向の位置の不確定さは単色でないことに起因することを示している。 Δz が光路差 $r_1 - r_2$ より大きければ干渉が起きるから、干渉が起きる条件は次式で表される。

$$r_1 - r_2 \leq v \frac{\hbar}{\Delta E} \quad (2 \cdot 11)$$

式(2・10)に加速電圧200 kVの電子顕微鏡の標準的な値、 $v=2 \times 10^8$ m/s、 $\Delta E=0.3$ eVを代入すると Δz は約0.5 μ m程度となり、ここで用いる電子顕微鏡のバイプリズム光学系にほとんど光路差がないことを考えると十分長いことがわかる。

(相関関数と干渉縞の鮮鋭度)

今スリット1とスリット2を新しい2つの光源と考え、そこから発生する波をそれぞれ波1 (ψ_1) 及び波2 (ψ_2) とする。観測面におけるこれら2つの波の強度をそれぞれ I_1 と I_2 とすると、2つの波の干渉による合成波の強度 $I(r)$ は一般に次式で表される⁴⁾。

$$I(r) = I_1(r) + I_2(r) + 2\sqrt{I_1(r)I_2(r)}\text{Re}\{\gamma_{12}(\tau)\} \quad (2 \cdot 12)$$

ここに、 τ は次の式で示すように経路1と経路2の光路差を波の伝播速度 v で割ったものである。

$$\tau = (r_1 - r_2)/v \quad (2 \cdot 13)$$

また、 $\gamma_{12}(\tau)$ は波1と波2の複素可干渉度 (complex degree of coherence) であり、次式に示すように相互可干渉度関数 (mutual coherence function) $\Gamma_{12}(\tau)$ を規格化したものである。

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{I_1} \sqrt{I_2}} \quad (2 \cdot 14)$$

$|\gamma_{12}(\tau)|$ は2つの波の相関の強さを表す。相関関数には先述のように時間的な要素と空間的な要素の両方が含まれる。もし、観測点が2つのスリットの中心の直下であれば2つの経路に光路差は無く、時間的な要素はなくなる。この時、 $\gamma_{12}(\tau)$ はスリット面での波の自己可干渉度 $\gamma_{11}(0)$ に等しくなる。

実際の干渉実験では、干渉の度合いを次の式で示す干渉縞の鮮鋭度 (visibility) V で表すことが多い。

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (2 \cdot 15)$$

ここに、 I_{max} と I_{min} はそれぞれ波の強度の局所的な最大値と最小値である。もし、波1と波2の強度が等しければ、

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} = \frac{2\sqrt{I_1 \cdot I_2}}{I_1 + I_2} |\gamma_{12}(\tau)| = |\gamma_{12}(\tau)| \quad (2 \cdot 16)$$

となり、鮮鋭度と可干渉度は等しくなる。

ダブルスリットによる電子波干渉実験⁵⁾は1960年代に行われたが、スリットの作製が極めて困難であり干渉領域の調節ができないなど実験条件の制約が大きかったため、干渉の基礎実験に使われただけでその後発展しなかった。Möllenstedt^{6, 7)}の発明した電子線バイプリズムが現在最もよく使われている。ダブルスリットによる干渉とバイプリズムによる二光束干渉は類似した手法である。バイプリズム干渉における干渉領域の幅はダブルスリット干渉におけるスリット間距離に相当し、どちらの手法においても空間干渉性の良い波が必要である。

2.3.3 空間干渉性と輝度

式(2・8)より、光源が小さいほど、また光源が試料面から遠いほど空間干渉性が良いことがわかる。実際の電子顕微鏡では集束レンズによって照射条件をコントロールしており、レンズ条件の調節によって光源を見かけ上いくらでも遠くに持っていくことができる。しかし、そうすると試料面上での電子線の強度は弱くなり、干渉縞の撮影のための露光時間は長くなる。このため、現実的な露光条件で干渉縞を撮影するには光源が小さく輝度の高い電子銃が必要不可欠となる。ここで、バイプリズムを使った波面分割型干渉法で干渉縞を撮影するために必要な輝度について考察する。

図2-2においてスリット面を試料面と考えると、試料面上から距離 L だけ離れた直径 d の電子源から放出される電子の試料面上での空間的可干渉距離は式(2・8)で表されることをすでに示した。試料面上から光源を見込む角度 (半角) を β とし、式(2・8)に $\beta = d/2L$ 、 $p = h/\lambda$ 、 $\hbar = h/2\pi$ 、を代入すると

$$\Delta x = \frac{1}{4\pi} \frac{\lambda}{\beta} \quad (2 \cdot 17)$$

干渉領域の幅を D とすれば、干渉が起きる条件は

$$\Delta x \geq D \quad (2 \cdot 18)$$

であるから β に対する条件として

$$\beta \leq \frac{1}{4\pi} \frac{\lambda}{D} \quad (2 \cdot 19)$$

が得られる。

一般に輝度 B は単位面積単位立体角当たりの電流であり、次の式で定義される。

$$B = \frac{I}{S \cdot \Omega} \quad (2 \cdot 20)$$

ここに、 I は電流、 S は面積、 Ω は立体角である。 Ω が小さい時には近似的に $\Omega = \pi\beta^2$ が成立するので、

$$B = \frac{I}{S \pi\beta^2} \quad (2 \cdot 21)$$

となる。ここでの β は本来フィラメント先端から電子が放出される時の立体角であるが、簡単のために集束レンズを1段とし倍率を1とすれば光学系はこの集束レンズに対して上下対称となり、式(2・19)までの議論で用いてきた試料からの電子源の見込み角 β に置き換えることができる。同様に、試料上の電流密度を I/S とすることができる。

フィルムの電子線露光量を η 、露光時間を t 、撮影倍率を M とすれば、試料上に照射される電流密度 I/S は次式で表される。

$$\frac{I}{S} = \frac{\eta M^2}{t} \quad (2 \cdot 22)$$

式(2・22)を式(2・21)に代入すれば実際の撮影条件、輝度、見込み角とを結ぶ次式が得られる。

$$\beta = \sqrt{\frac{\eta M^2}{t} \cdot \frac{1}{\pi B}} \quad (2 \cdot 23)$$

式(2・23)を式(2・19)に代入すれば、干渉が起こるための β に対する次の条件式が得られる。

$$\beta \geq 16\pi^2 D^2 \frac{1}{\lambda} \frac{\eta M^2}{t} \quad (2 \cdot 24)$$

上式に本研究における典型的なホログラム撮影条件、 $\eta = 2 \times 10^{11} \text{ c/cm}^2$ 、 $M = 2000$ 倍、 $t = 20$ 秒、を代入すると、 $\beta \geq 2.5 \times 10^9 (\text{A/cm}^2 \cdot \text{ster})$ が得られる。このことから、電子線ホログラフィの実験には輝度 $10^5 \sim 10^6 (\text{A/cm}^2 \cdot \text{ster})$ の熱電子源ではほとんど不可能であり、輝度 $10^8 \sim 10^9 (\text{A/cm}^2 \cdot \text{ster})$ 以上の電界放射電子源が必要なことがわかる。

2.4 ホログラフィの結像原理

ホログラフィによる2段階結像を図2-3に模式的に示す⁸⁾。ホログラフィでは、まず試料を透過した波、あるいは試料から散乱された波(これを物体波と呼ぶ)とそれと可干渉な平面波(これを参照波と呼ぶ)を干渉させ、干渉縞をホログラムとして記録する。今観察面 $x-y$ 平面上の物体波を $\Psi_o(x,y)$ 、参照波を $\Psi_r(x,y)$ とすればホログラムに記録される干渉縞は次式で表される。

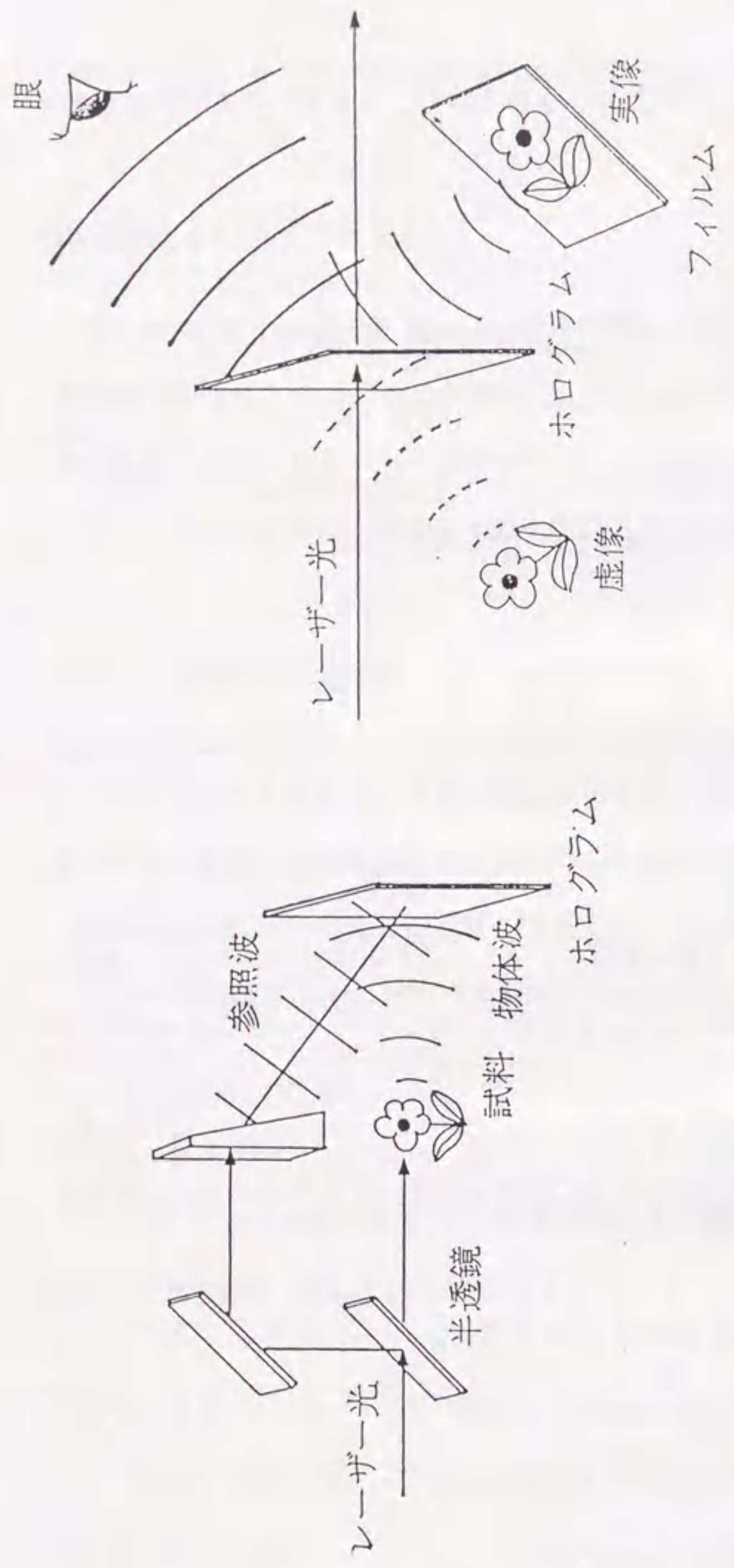
$$I_o(x,y) = |\Psi_o(x,y) + \Psi_r(x,y)|^2 \quad (2 \cdot 25)$$

ホログラムから元の像を再生するには、次式に示すようにホログラムにもう一度平面波の参照波を照射する。

$$\begin{aligned} |\Psi_o + \Psi_r|^2 \Psi_r &= (|\Psi_o|^2 + |\Psi_r|^2 + \Psi_o \Psi_r^* + \Psi_o^* \Psi_r) \Psi_r \\ &= (|\Psi_o|^2 + |\Psi_r|^2) \Psi_r + \Psi_o |\Psi_r|^2 + \Psi_o^* \Psi_r^2 \end{aligned} \quad (2 \cdot 26)$$

簡単のため参照波の強度を1と考え、 $|\Psi_r|^2 = 1$ とおけば、

$$|\Psi_o + \Psi_r|^2 \Psi_r = (|\Psi_o|^2 + 1) \Psi_r + \Psi_o + \Psi_o^* \Psi_r^2 \quad (2 \cdot 27)$$



(a) ホログラムの撮影

(b) 像再生

図2-3 ホログラフの原理 (Tanji and Yada, 1990)

となる。この式の右辺第1項は透過光を表している。第2項は物体波そのものであり、ホログラフで元の波動場が再生されることを端的に示している。第3項は共役像である。この像が第2項による再生像に重なると再生像の質を落とすので、別の場所に結像するように Off-Axis ホログラフが開発された^{9, 10)}。

2.5 二光束電子線ホログラフの原理と手法

2.5.1 ホログラムの形成

(原理)

波の伝播を記述するには波数ベクトルと位置ベクトルを用いるのが一般的であるが、波数には2通りの定義のしかたがある。ひとつは $k=2\pi/\lambda$ であり、もうひとつは $k=1/\lambda$ である。前者の定義によれば、波数ベクトル k を持つ平面波の位置 r における波動関数は $\exp(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})$ と表され、後者によれば $\exp 2\pi i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})$ と表される。慣習としては、光工学や固体物理の分野では前者の定義に従うことが多く、回折物理学の分野では後者に従うことが多い。電子線ホログラフの分野は光工学との関連性が強く、前者の定義に従うことが多いため、本論文でもその慣習に従って記述する。

電子線ホログラフではホログラムを電子顕微鏡で撮影する。ここでは、二光束法によるホログラム形成法を概説する。今、電子線の物理学の慣習に従い、電子波の伝播方向を z 軸にとる。試料に入射する電子波を $\exp ik_0 z$ とすれば、試料の直下の波動場(物体波)は一般に次式で表わされる。

$$\Psi_0(\mathbf{r}) = q(\mathbf{r}) \exp ik_0 z \quad (2 \cdot 28)$$

ここに、 $q(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) \exp i\phi(\mathbf{r})$ は試料の透過関数である。y 軸方向に張ったバイプリズムによって物体波と参照波はそれぞれ $-x$ 方向と x 方向に同じ角度だけ偏向される。この偏向を x 成分のキャリア周波数 $f_0/2$ で表わせば、この2つの波の干渉によって形成される干渉縞 $I(x, y)$ (ホログラム) は次の式で表わされる。

$$I(x, y) = |\Psi_0 + \Psi_r|^2$$

$$= \left| q(r) \exp(i(2\pi \frac{f_0}{2} x + k_0 z)) + \exp(i(-2\pi \frac{f_0}{2} x + k_0 z)) \right|^2$$

$$= 1 + \{A(r)\}^2 + 2A(r) \cos(2\pi f_0 x + \phi(r)) \quad (2 \cdot 29)$$

この式は $\cos 2\pi f_0 x$ の規則的な干渉縞が、試料による位相関数 $\phi(r)$ で位置の変調を受けることを示している。

(実験手法)

図 2-4 に電子線ホログラム形成の模式図を示す¹¹⁾。試料は電界放射型電子銃で発生した電子線で照射される。通常の透過電子顕微鏡であれば試料直下の波動場が対物レンズで拡大され像面に結像する。ホログラフィでは試料の近傍の真空の場所を通った電子波(参照波)を電子線バイプリズムで干渉させ、干渉パターンをホログラムとして記録する。電子線バイプリズムは直径 $0.5 \mu\text{m}$ 以下の石英の糸の表面を金属でコーティングしたものであり、電圧をかけることによって電子線を自由に偏向させることができる。実験的には、清浄な電子線バイプリズムを作製することが精度の高いデータを取るためのキポイントとなる。

2.5.2 波面再生と干渉顕微鏡像形成

(原理)

ホログラムは光学的にあるいは計算機によって再生する。どちらの場合も原理は同じである。式 (2・29) で記述されるホログラムに $\exp i k_0 z$ で表される平面波をホログラムに照射すれば、ホログラムから発生する波動場は次式で記述される。

$$(\exp i k_0 z) [1 + \{A(r)\}^2 + 2A(r) \cos(2\pi f_0 x + \phi(r))]$$

$$= [1 + \{A(r)\}^2] \exp i k_0 z + A(r) \exp i(2\pi f_0 x + k_0 z + \phi(r)) + A(r) \exp i(-2\pi f_0 x + k_0 z - \phi(r))$$

$$= [1 + \{A(r)\}^2] \exp i k_0 z + q(r) \exp i(2\pi f_0 x + k_0 z) + q(r)^* \exp i(-2\pi f_0 x + k_0 z) \quad (2 \cdot 30)$$

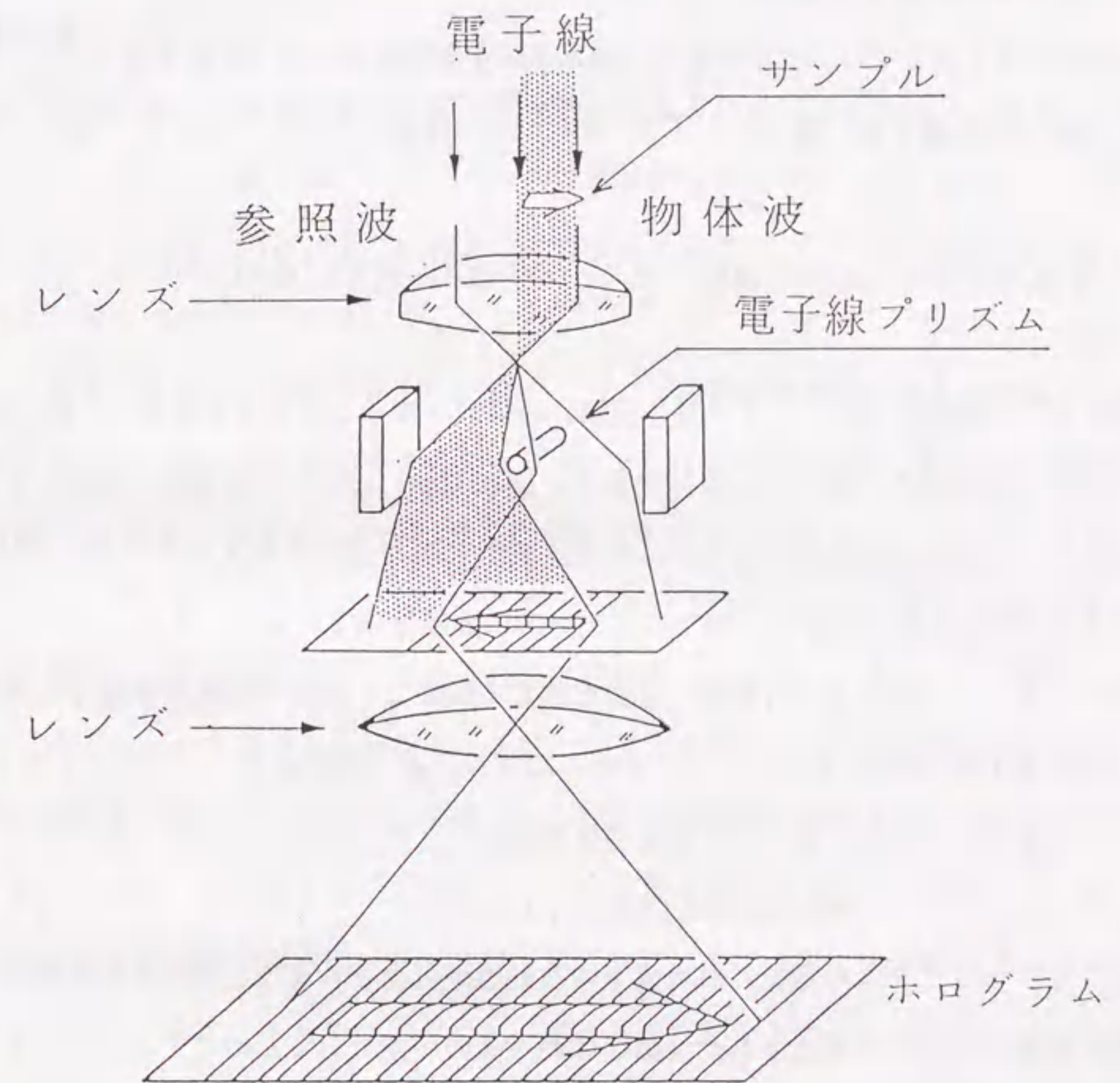


図 2-4 電子線ホログラムの形成
(Tonomura et al., 1980)

上式の第1項は透過波を表す。第2項は透過関数 $q(r)$ で変調された平面波を意味しており、試料直下の波動場が再生されていることを示している。第3項は第2項の波と同様の波であるが、 $y-z$ 平面に対して第2項の波と対称の方向に進む。第2項と第3項は z 成分以外の部分が複素共役になっている。

ホログラム面上ではこれらの互いに複素共役な波が重なり合っているのを、これをフーリエ面上で分離する。式(2・30)をフーリエ変換すれば、次式が得られる。

$$FT\{I(r)\} = \delta(0) + Q(R) \otimes Q(R)^* + \delta(X-f_0) \otimes Q(R) + \delta(X+f_0) \otimes Q(R)^* \quad (2 \cdot 31)$$

ここに、 $FT\{I(r)\}$ は $I(r)$ のフーリエ変換、 \otimes はコンボリューションを表す。 R と X はそれぞれ、逆空間のベクトルと座標である。 $Q(R)$ は $q(r)$ のフーリエ変換である。この式はフーリエ面上ではホログラムからの再生波が $R=0$ 付近に分布するセンターバンドと $R=f_0$ 及び $R=-f_0$ 付近に分布するサイドバンドに分離されていることを示している。式

(2・31)の第2項だけを絞り関数を乗じて抽出し、 $R=0$ の位置に移動させれば、この項は $\delta(X) \otimes Q(R)$ と表すことができる。ただし、絞り関数はサイドバンドより十分大きいとする。これを、逆フーリエ変換すれば、

$$FT^{-1}\{\delta(X) \otimes Q(R)\} = q(r) \exp i k \cdot r \quad (2 \cdot 32)$$

となり、ホログラムの像面に試料直下の波動場が再生されることがわかる。しかし、一般に観察されるのは再生された波動場の絶対値の2乗であるために、次式に示すように位相項が消失し、単純にこれを記録しても物体波の位相情報は現れてこない。

$$\begin{aligned} |q(r) \exp i k \cdot r|^2 &= |A(r) \exp i \phi(r) \cdot \exp i k \cdot r|^2 \\ &= \{A(r)\}^2 \end{aligned} \quad (2 \cdot 33)$$

そこで、再生された波にさらに $\exp i k \cdot r$ で表される平面波を干渉させる。これにより、観察される像は次式のようなになる。

$$|q(r) \exp i k \cdot r + \exp i k \cdot r|^2 = |A(r) \exp i (k \cdot r + \phi(r)) + \exp i k \cdot r|^2$$

$$= 1 + \{A(r)\}^2 + 2A(r) \cos \phi(r) \quad (2 \cdot 34)$$

ここでは、試料の透過関数 $q(r)$ の位相の情報 $\phi(r)$ が強度情報に変換され、等位相線として直接観察できるようになる。このような像を干渉顕微鏡像と呼んでいる。

(実験手法)

実際の波面再生や干渉顕微鏡形成は、光学再生法あるいはコンピューターを用いたデジタル再生法で行う。電子線ホログラフィの発達初期には光学再生法が用いられたが、近年のコンピューターのめざましい発展と計算手法の開発¹²⁻¹⁴⁾により最近ではむしろデジタル再生が再生法の主流となってきた。

まず、光学再生法から記述する。本研究のように干渉顕微鏡像を形成して電場や磁場を観察するには、図2-5に示すようなマッハツェンダー干渉計と呼ばれる光学再生系を用いる¹⁵⁾。ホログラムにレーザー光を照射するとホログラムのフーリエ面上にセンターバンドとサイドバンドが現れる。そこで、この面に絞りを入れ、サイドバンドの1つだけが通過するようにすると、この延長上に像が再生される。この時、半透鏡をもちいてレーザー光がホログラムに照射される前に可干渉なもう1つの平面波をつくり、再生された物体波に重ねる。最終的に形成された像は干渉顕微鏡像となり、物体波の位相分布を等位相線として観察することができる。光学再生系は光コンピューターの一種と考えることができ、その最大のメリットは、原理的には光の速度で像が再生されることにある。本研究においてもその点に着目し、第4章で記述するオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムの開発で光学再生法の価値を再認識している。

代表的なデジタル再生法であるフーリエ変換法では、2.5.2節で述べた計算をコンピューターで行う。その手順を以下に記述する。また、図2-6にその模式図を示す。

- (1) ホログラムをコンピューターに読み込んで情報をデジタル化する(本研究では、ホログラムを最高1024×1024画素、8ビット(256階調)の情報として取り込み処理をした)。
- (2) 2次元フーリエ変換をする。この操作により1つのセンターバンドと2つのサイ

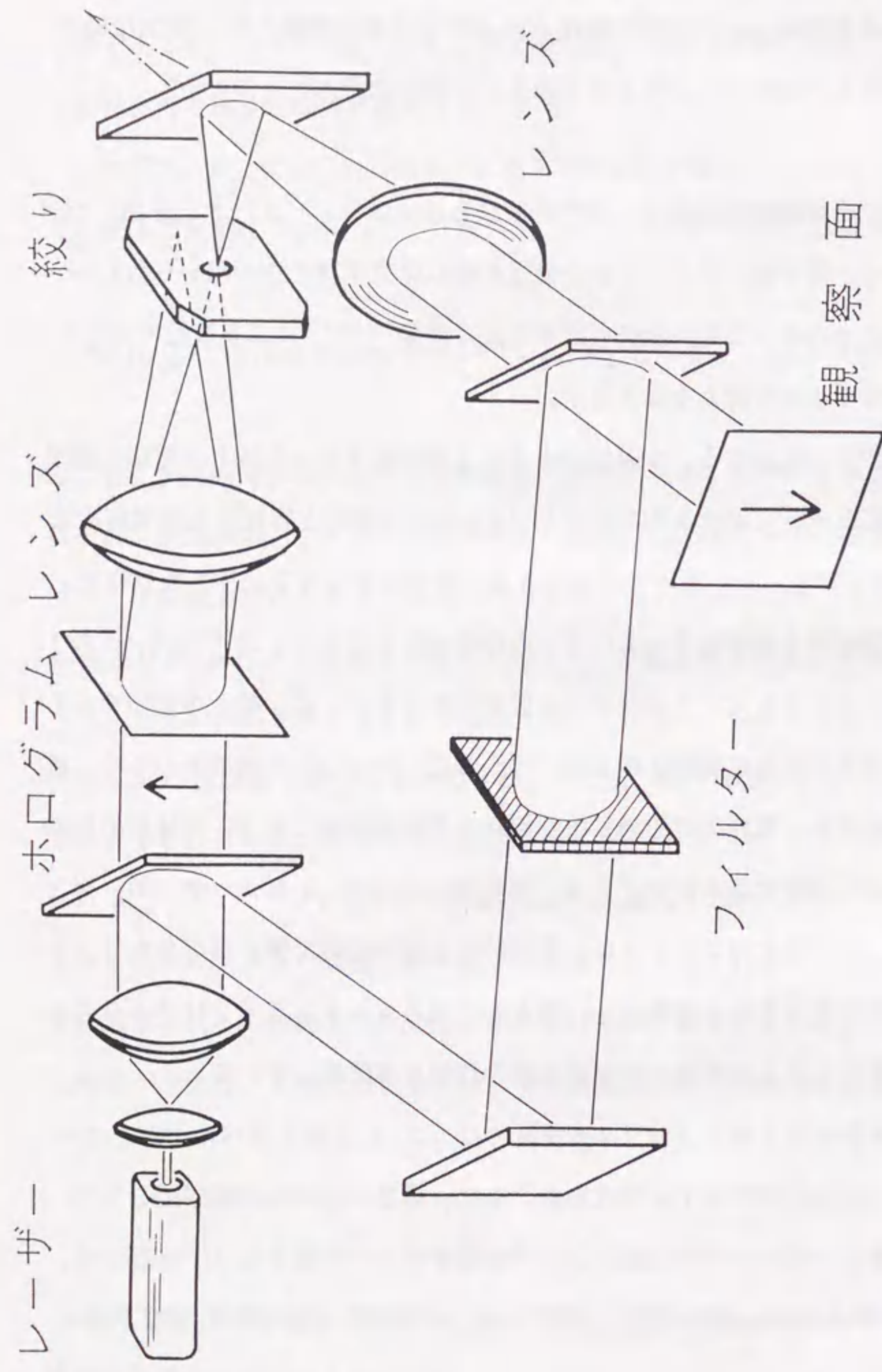


図2-5 マッハツェンダー干渉計 (Tonomura et al., 1986)

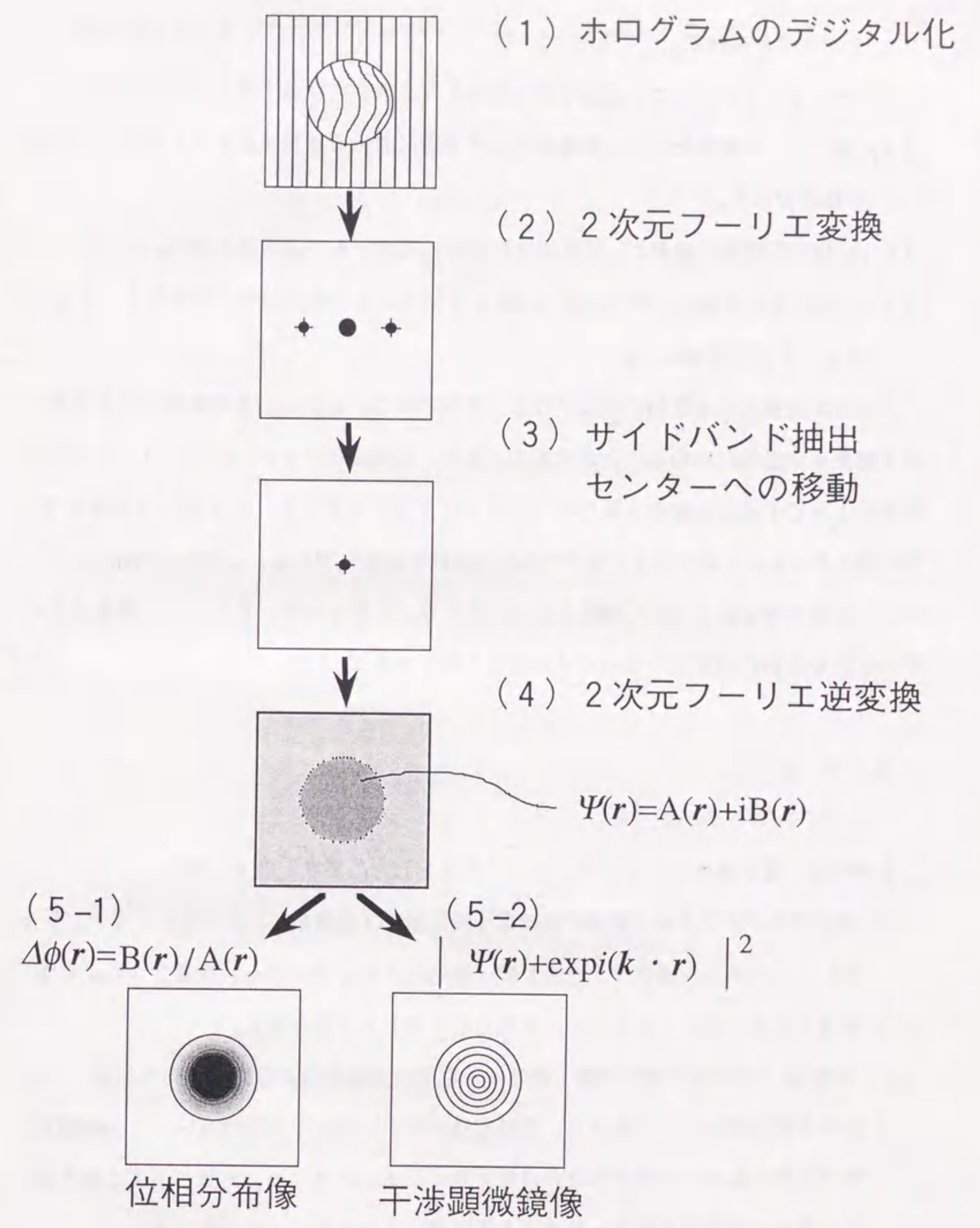


図2-6 フーリエ変換法によるデジタル再生の手順

ドバンドが現れる。

- (3) サイドバンドの1つに適当な絞り関数を掛け原点に移動する。
- (4) 逆フーリエ変換を行い、画像の中の各画素における複素振幅をもとめる。これが物体波である。
- (5-1) 複素振幅値の偏角として位相値を求め、表示する(位相分布像)。
- (5-2) 物体波に平面波を表す関数 $\exp ik \cdot r$ を加え、その絶対値の2乗を算出して表示する(干渉顕微鏡像)。

フーリエ変換法は原理的には光学再生と等価である。しかし、光学実験技術を必要とせず結果を定量的に求めることができる。また、位相変化が小さいホログラムから位相増幅によって干渉顕微鏡像を得たり、参照ホログラム(第3章、3.4節)を利用して像の歪みやノイズを減少させるなどの処理が比較的容易にできる。これらの利点のため、今日では光学再生法より広く利用されるようになってきている。また、より計算速度の早い手法や位相計測感度の高い方法が開発されている^{16, 17)}。

2.6 結 言

本章では、電子線ホログラフィについて概説をした。要点を以下に示す。

- (1) 電子線ホログラフィで観測できる電子の位相は「光路差」、「スカラーポテンシャル」、「ベクトルポテンシャル」の3種類によるものである。後者2つによる情報は3次元の場を2次元平面に投影したものとして得られる。
- (2) 試料面上での電子波の空間干渉性は、電子の運動方向と垂直な方向への電子の位置の不確定性によって決まり、不確定性が大きいほど干渉性は良い。この不確定性は試料から見て光源が小さいほど大きくなる。このため、光源が小さく輝度の高い電界放射型電子銃から発生する電子線は干渉実験に大変有利である。
- (3) ホログラフィはホログラムの撮影と像再生よりなる2段階の結像手法である。電子顕微鏡でホログラムを撮影し、像を光学再生あるいはデジタル再生する。干渉

顕微鏡像では電子波の位相情報が等位相線として現れるので、電場や磁場のような純位相物体を観察するのに適している。

参考文献

- 1) D. Gabor, Nature 161 (1948) 777.
- 2) D. Gabor, Proc. Roy. Soc. London A, 197 (1949) 454.
- 3) W. Ehrenburg and R. E. Siday: Proc. Phys. Soc. London B 62 (1949) 8.
- 4) M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*(Pergamon Press, Oxford, England, 1980), 6th ed., pp. 260, 277.
- 5) C. Jönsson, Z. Phys. 161 (1961) 454.
- 6) G. Möllenstedt and H. Düker, Naturwissenschaften, 42 (1955) 41.
- 7) G. Möllenstedt and H. Düker, Z. Phys. 145 (1956) 377.
- 8) 丹司 敬義、矢田 慶治、応用物理、59 (1990) 18.
- 9) E. N. Leith and J. Upatnieks, J. Opt. Soc. Am. 52 (1962) 1123.
- 10) E. N. Leith and J. Upatnieks, J. Opt. Soc. Am. 53 (1963) 1377.
- 11) A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii and K. Mihama, Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 1430.
- 12) Q. Ru, T. Matsuda, A. Fukuhara and A. Tonomura, J. Opt. Soc. Am. A 8 (1991) 1739.
- 13) T. Matsuda, A. Fukuhara, T. Yoshida, S. Hasegawa, A. Tonomura and Q. Ru, Phys. Rev. Lett. 66 (1991) 457.
- 14) W. D. Rau, H. Lichte, E. Völkl and U. Weierstall, J. Comput. Assist. Microsc. 3 (1991) 51.
- 15) A. Tonomura, J. Electron Microsc. 33 (1986) 101.
- 16) Q. Ru, J. Endo, T. Tanji and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 59 (1991) 2372.
- 17) Q. Ru, T. Hirayama, J. Endo and A. Tonomura, Jpn. J. Appl. Phys. 31 (1992) 1919.

第3章 強磁性体微粒子の磁区構造観察

3.1 緒言

磁性体は永久磁石、磁気記録材料、電気設備等さまざまな分野で広く利用され、実生活に深く浸透している。一般に、磁氣的性質特に磁区構造は材料の化学組成や結晶構造のみならず、結晶欠陥や結晶粒径などと深い関わりを持っている。このため、磁性体の磁区構造の観察は磁性体研究の重要な部分をなしている。また、磁性体のサイズが μm ~ nm オーダー以下になると、いわゆる「メゾスコピック磁性」の領域に入り、バルクの時とは異なる性質が現れることが示されている¹⁻³⁾。この分野は大変興味深く、新しい磁性物理学の可能性を提供する。しかしながら、ミクロンオーダー以下の微小領域の磁区構造を観察することは容易でなく、未知の部分の多い研究領域である。このような観察が可能な手法として、(1) ビッター法^{4, 5)}、(2) 磁気力顕微鏡法^{6, 7)}、(3) スピンSEM法⁸⁻¹⁰⁾、(4) ローレンツ顕微鏡法^{11, 12)}、(5) 電子線ホログラフィ¹³⁾がある。(1)~(3)の方法は透過電子顕微鏡を基本とした(4)~(5)の方法に比べて、一般に試料が薄片でなくてもよいなど試料形状に対する制約が少なく、像解釈も容易であるなど優れた利点がある。しかし、分解能の点ではやはり透過電子顕微鏡法を基本とした技術が有利である。(4)、(5)を比較すると、電子線ホログラフィは複雑な像形成プロセスや特殊な技術を必要とするが、正焦点で試料を観察する手法であるために分解能や計測感度またその定量性などの点で優れていると考えられる。本研究では電子線ホログラフィを用いて磁性体粒子の磁区構造、特に単磁区粒子の観察および解析を行った。本章では、まず磁性体を透過電子顕微鏡で観察するときの問題について述べ、その解決策としてレンズの特殊な使用方法や磁性体観察用レンズについて記述する。その後、バリウムフェライト、鉄、などの微粒子の磁区構造を観察・解析した例を示す。

3.2 磁性体を透過電子顕微鏡で観察する時の問題点

3.2.1 磁界レンズの構造と問題

一般に電子レンズには電界レンズと磁界レンズがあるが、現在ほとんどすべての電子顕微鏡に使われているのは磁界レンズである。この磁界レンズは、コイルによって発生する磁場をポールピースとよばれる磁極に集中させ、試料を鉛直方向に貫く強い軸対象磁場のもつレンズ効果を利用したものである¹⁴⁾。図3-1に典型的な電子顕微鏡の対物レンズ用ポールピースの模式図を示す。試料はレンズの上極と下極の隙間（レンズギャップ）に挿入される。このため、1テスラ以上の強いレンズ磁場によって試料は鉛直方向に磁化され、本来の磁区構造を失ってしまう。このことは電子顕微鏡で磁性体試料を観察する時の大きな問題の1つである。この問題を解決するために、本研究では下記の2つの方法を用いた。

3.2.2 レンズOFF法

対物レンズの電流を切ってしまう、その下の中間レンズの電流を調節して結像する¹⁵⁻¹⁷⁾。この方法は最も容易であるが、倍率がせいぜい数千倍にしかならないことが欠点である。試料位置において対物レンズポールピースのヒステリシスによる残留磁場が数十ガウス残るが、硬磁性材料の観察であれば事実上問題はない。本研究では第2中間レンズ以下のレンズ電流を最大とし、第1中間レンズを使って焦点を合わせた。

3.2.3 磁気シールドポールピースを使用する方法

図3-2に示すような磁気シールドポールピースを使用すればより高い倍率と分解能が得られる¹⁶⁾。試料位置は標準のポールピースと同じ位置にセットされるが、レンズギャップは試料より数mm下になるように設計されている。このタイプのポールピースは1970年代に発明され、ローレンツ顕微鏡に利用された¹⁸⁾。本研究でホログラフィ電子顕微鏡（日立 HF-2000 型）用に日立製作所と共同開発したポールピースでは、試料位

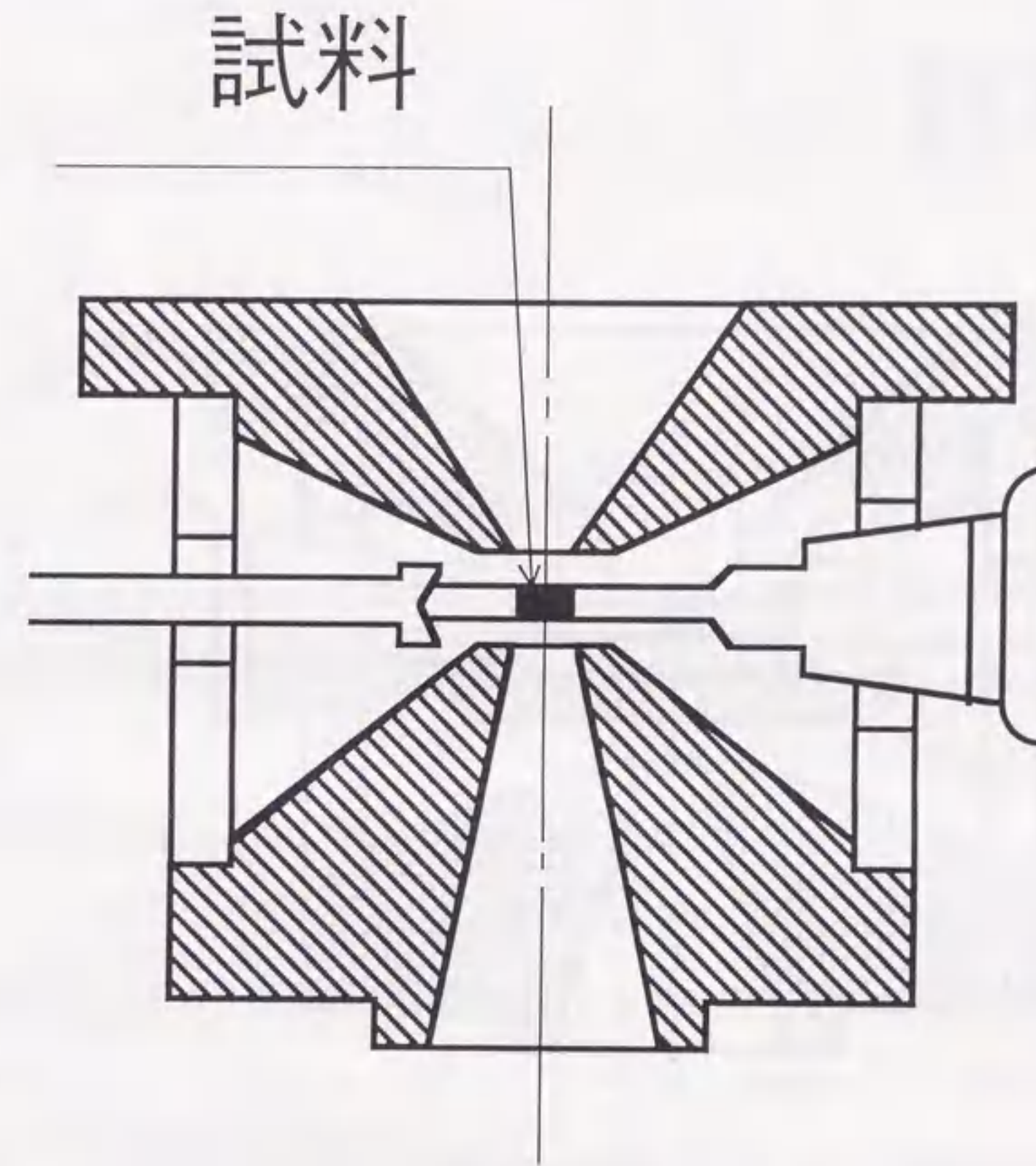


図3-1 標準ポールピース断面図

試料

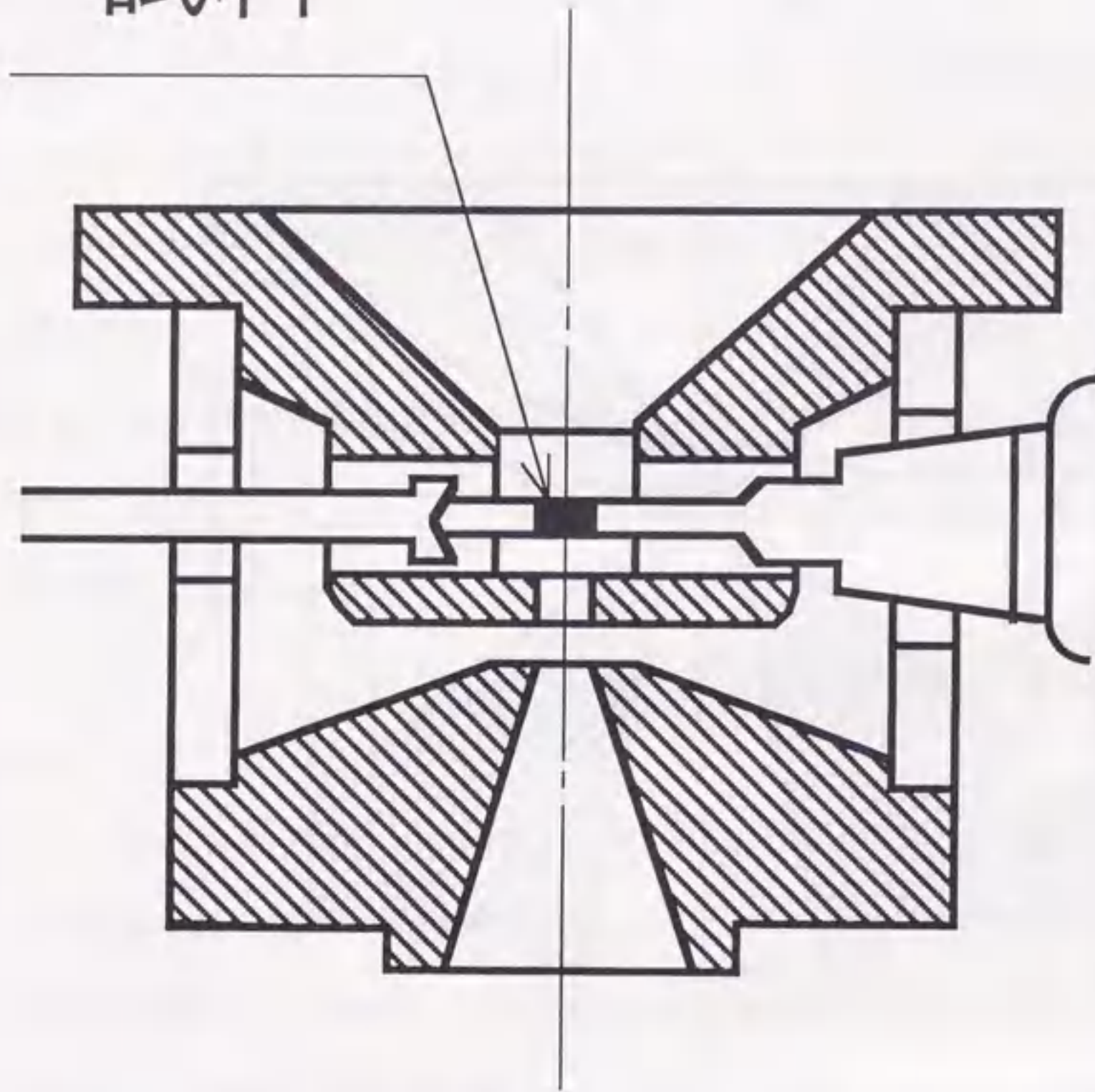


図 3-2 磁気シールドポールピース断面図

置での磁束密度は約 5 ガウスであり、標準ポールピースの1/1000 以下になっている¹⁶⁾。分解能は標準ポールピースより多少劣るが、磁力線観察には十分な性能をもっている。このポールピースを使った時の電子顕微鏡の最大倍率は約 50 万倍であり、これは磁区観察に十分な倍率である。

3.3 バリウムフェライト単磁区粒子

3.3.1 単磁区粒子の観察

(背景)

一般に、強磁性体は磁壁エネルギーと静磁エネルギーの和である磁気エネルギーを最小にするように磁区構造を形成する。磁壁エネルギーは磁壁の面積に比例するので、磁区構造が一定の球形の粒子であれば直径の2乗に比例する。これに対し、静磁エネルギーは磁性体の体積に比例するので、同じく磁区構造が一定の球形の粒子の場合は直径の3乗に比例する。このため、粒径が小さくなると磁気エネルギー全体に対する磁壁エネルギーの相対的寄与が大きくなり、ある臨界径以下ではついに磁壁を持たない「単磁区構造」が安定になる。これは磁性物理学における典型的なサイズ効果であり、微小な粒子に特別に発現する現象である。このことは1930年にFrenkelとDorfmanによって最初に予言され¹⁹⁾、のちにKittel²⁰⁾、Neel²¹⁾、Brown²²⁾らによって臨界径などが定量的に解析された。単磁区粒子の存在を実証することは磁性物理として興味深いだけでなく、産業的にも重要なことである。それは、どんな永久磁石材料でも、その材料の単磁区粒子のみでできている時に最大の保持力を示すことが理論的に示されており、保磁力の理論限界が単磁区粒子の存在を仮定して計算されるからである。しかし、微粒子の磁区構造を観察する実験手法がなく、約50年間単磁区粒子の存在は証明されなかった。

1980年になって後藤ら^{23)、24)}がコロイドSEM法を用いてバリウムフェライトの単磁区粒子を初めて観察した。バリウムフェライトは永久磁石や磁気記録媒体として利用されている工業的にも重要な材料である。また、その後北上ら²⁵⁾も加わり、孤立した

バリウムフェライトの磁区構造や単磁区粒子と2磁区粒子の臨界径などに関する詳しい議論がなされた。図3-3にコロイドSEM法で観察された代表的なバリウムフェライト粒子を示す。きれいな晶癖を持つ粒子の磁区構造が明瞭に観察されている。

本研究では、バリウムフェライト単磁区粒子をより直接的かつ定量的に観察・解析することを目的とし電子線ホログラフィをこの問題に応用した。

(実験方法)

本実験に使用したバリウムフェライトは、後藤らがBaOとFe₂O₃さらに助剤としてのBi₂O₃の混合物を空气中で1100℃-2時間熱処理をして作製したものである。この試料は6方晶のBaO・6Fe₂O₃であることがX線回折で確認された。この試料を乳鉢ですり潰し、数ccのエタノールを加えて懸濁液としてカーボン膜を貼ったグリッドに滴下した。バリウムフェライトは導電性が低いので電子線照射下ではチャージアップする。これを防ぐためにグリッド両側からカーボン蒸着をした。さもないと、チャージアップによってできた電場と磁性体粒子から出る磁場を重ね合わせた場が観察され、解釈が極めて困難であった。

ホログラムは日立製作所製電界放射電子顕微鏡(HF-2000改造型)を用い、加速電圧200kVで電子顕微鏡用フィルムKodak 4489を使用して撮影した。粒径1μm以上の粒子を撮影する時には前節で記述した対物レンズをOFFとする方法を用い、1μm以下の粒子を撮影する時には高倍率を得るために磁気シールドポールピースを使用した。ほとんどの粒子が磁力で集まり、数十μm以上のかたまりになっていたが、注意深く孤立した粒子を探して観察した。

撮影したホログラムはCCDカメラ(VIDEK社製、MEGAPLUS)を使って画素数512×512、256階調(8ビット)にデジタル化した情報としてコンピューターに取り込み、第2章で記述したデジタル再生法で干渉顕微鏡像を得た。

磁力線の方向(磁極の極性)は次の方法で決定した。まず、ホログラムのある特定の部分の干渉縞の間隔が参照ホログラムの干渉縞の間隔に比べて広がっているか狭くなっているかを調べた。それによって、電子線が電子顕微鏡の中でどの方向に偏向されたか

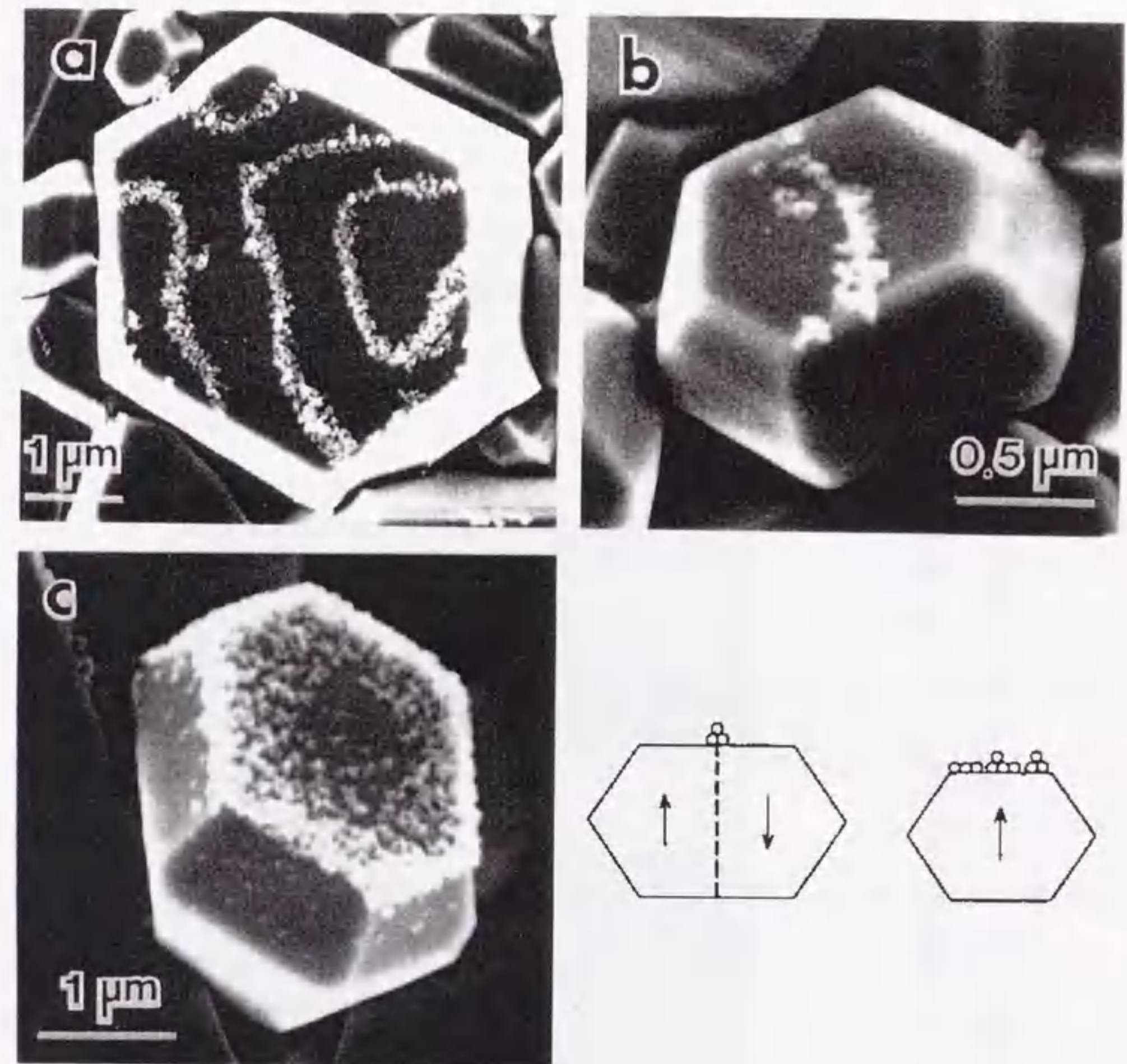


図3-3

コロイドSEM法により観察されたバリウムフェライト粒子の磁区構造

(a) 多磁区粒子、(b) 2磁区粒子、(c) 単磁区粒子
(Goto et al., 1989)

を判断した。偏向方向と電子線の入射方向から、フレミングの法則で磁力線の方向を判定した。

(実験結果と考察)

図3-4(a)及び(b)にそれぞれ観察したバリウムフェライト粒子の電子顕微鏡像と回折図形を示す^{16, 17)}。この粒子は粒径約1 μm で良く発達した晶癖を持っている。粒子は200kVの電子線に対して十分厚く、粒内は完全に黒く写っている。しかし、図3-4(b)では回折斑点が見られる。粒子の端に近い薄い部分を透過した電子線が回折図形を形成したものと考えられる。回折図形によれば、電子線の入射方向は図3-4(c)の模式図で表されるように $[00\bar{1}]$ である。さらに、この粒子は観察中非常に安定にカーボン膜に付着していたので、平坦な(001)面を底面として持っていると考えられる。これらの結果から、この粒子の3次元形状は図3-5に示すような多面体であると推測できる。この形状は後藤らが走査電子顕微鏡でも観察していた形状である。

この観察条件では、干涉顕微鏡像において磁力線は観察されなかった。その理由は以下のように解釈できる。今、バリウムフェライトの磁化容易軸は図3-6に示すように $[00\bar{1}]$ 軸であり、電子線入射方向と平行である。粒子のまわりの磁場は2つの方向成分、すなわち電子線に平行な成分と垂直な成分、に分けられる。電子線は後者の成分のみによって偏向され、位相変化を受ける。ところで、粒子が単磁区であればこの成分(図中の X_1 と X_2)は粒子の上と下で完全に反対称となっており、このような磁場による電子波の位相変化は完全に相殺されてしまう。もし、図3-7に示すように粒子を少し傾斜させれば電子線に垂直な成分は相殺されることはなく、磁力線が観察できることになる。

そこで、粒子を $[210]$ 方向を軸として約14度回転させて観察した。図3-8(a)、(b)、(c)、(d)にそれぞれ回転後の電子顕微鏡像、干涉顕微鏡像、回折図形、電子線と結晶の方位関係を表す模式図を示す。回転方向は図3-8(a)下部に記入してある。図3-8(c)は電子線入射方向が図3-8(d)に表されるように $[01\bar{1}]$ であることを示している。図3-8(a)の電子顕微鏡像では磁力線はもちろん見えない。図3-8(b)の干涉顕微鏡



図3-4 バリウムフェライト単磁区粒子 (入射方向 $[00\bar{1}]$)
(a) 電子顕微鏡像、(b) 回折図形、(c) 電子線と結晶の方位関係を表す模式図

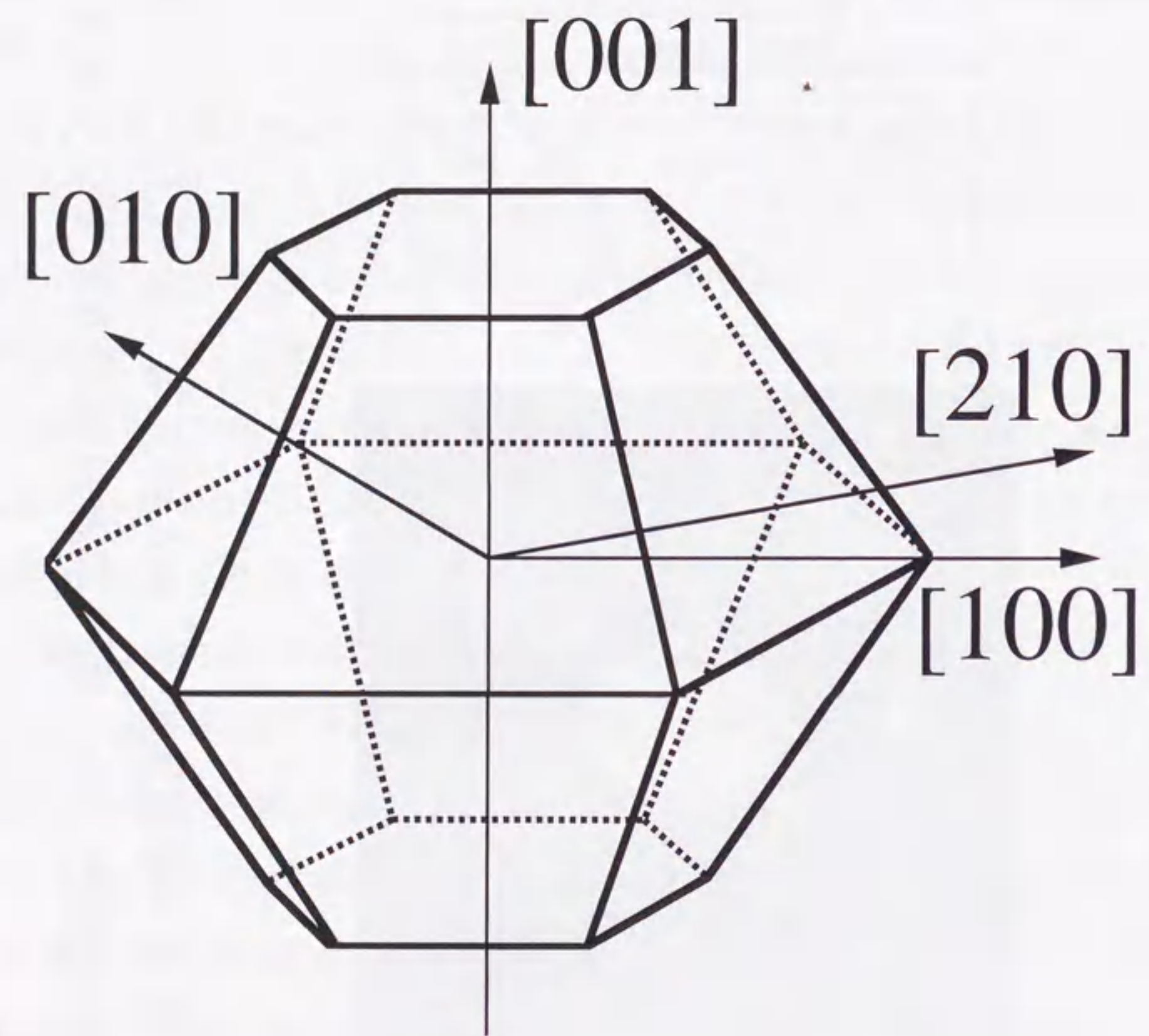


図 3-5
バリウムフェライト粒子の典型的な晶癖

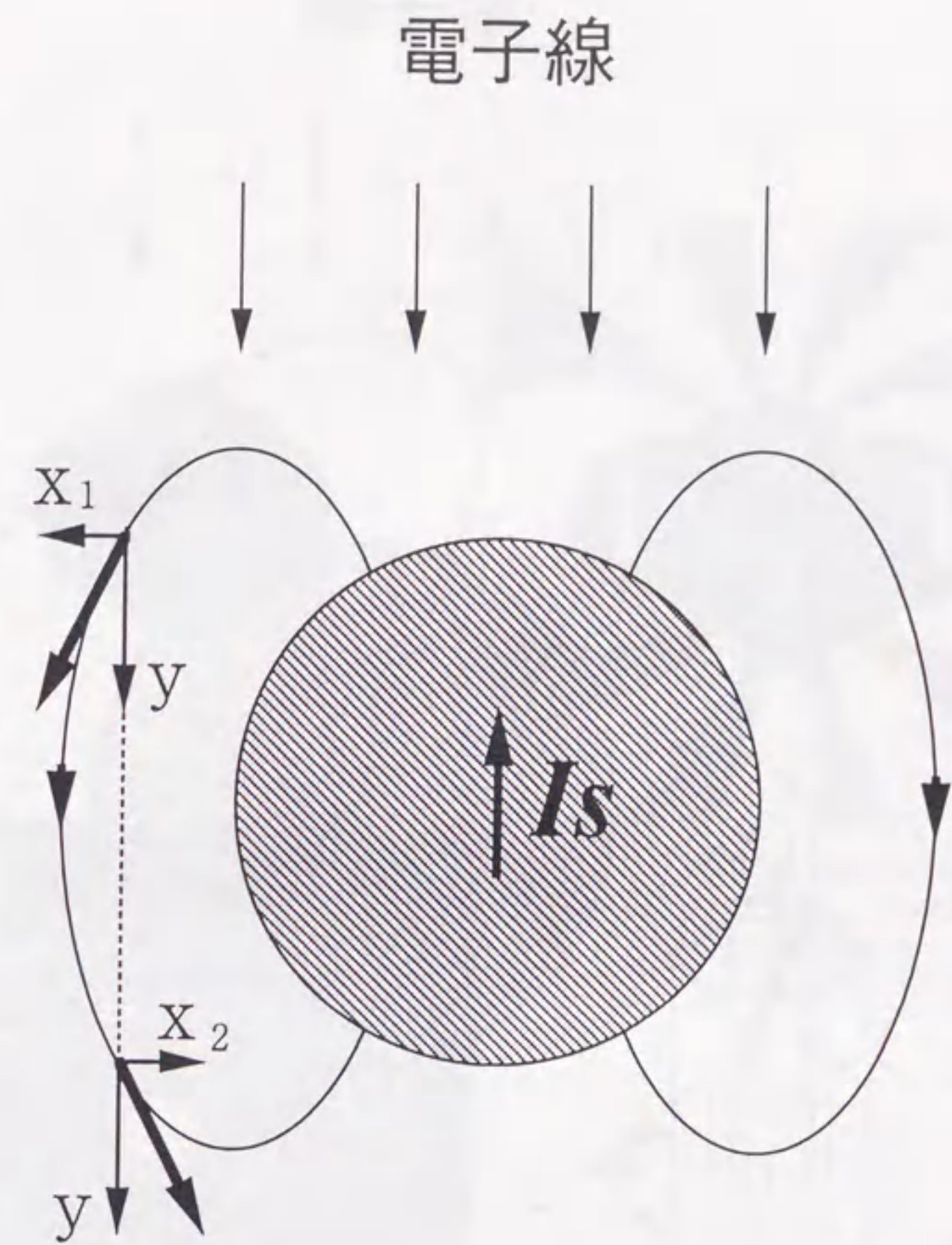


図 3-6 単磁区粒子の観察
(磁力線観察ができない場合)
(磁化と電子線が平行)

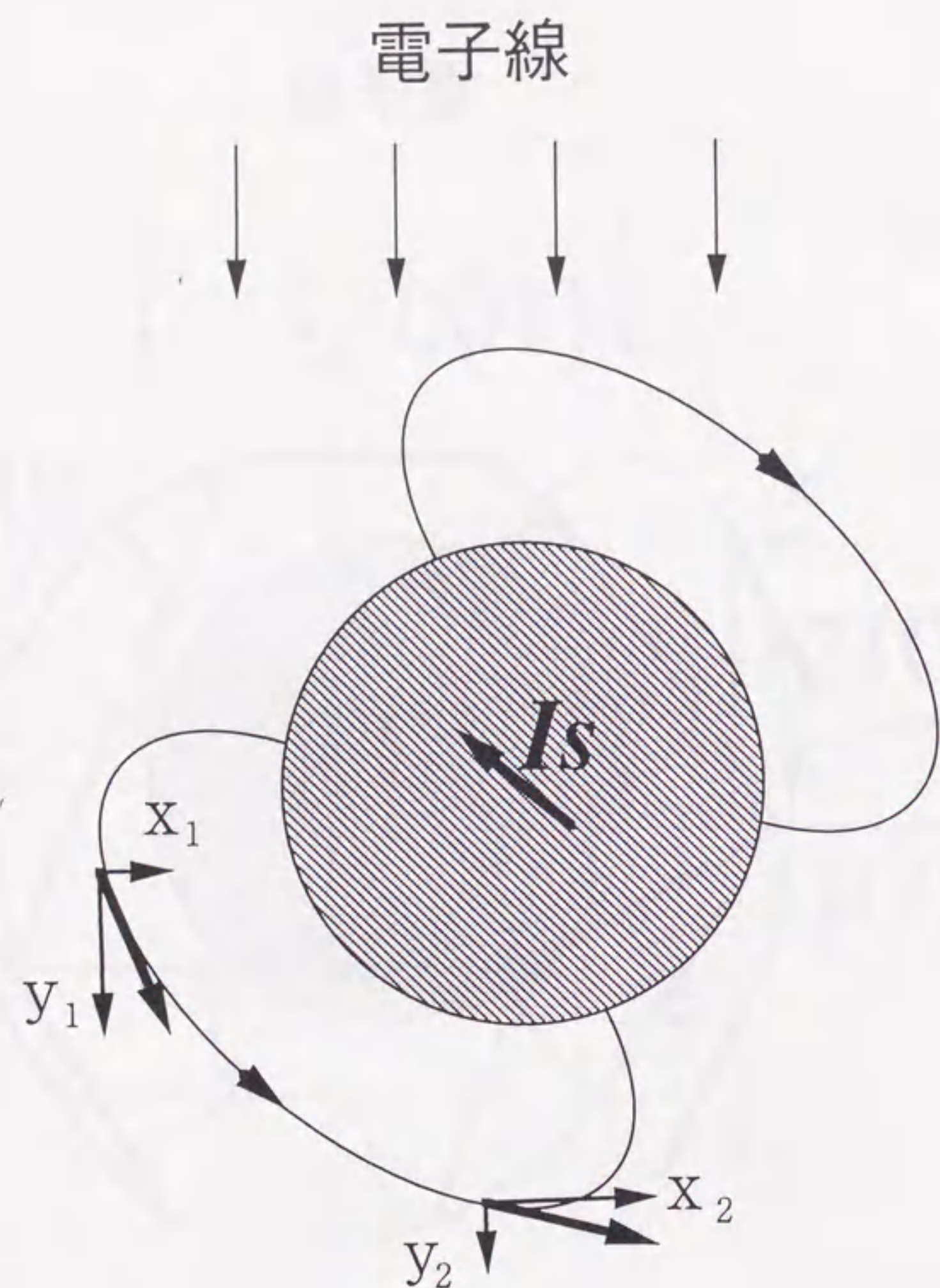


図 3-7 単磁区粒子の観察
 (磁力線観察ができる場合)
 (磁化と電子線が平行でない)

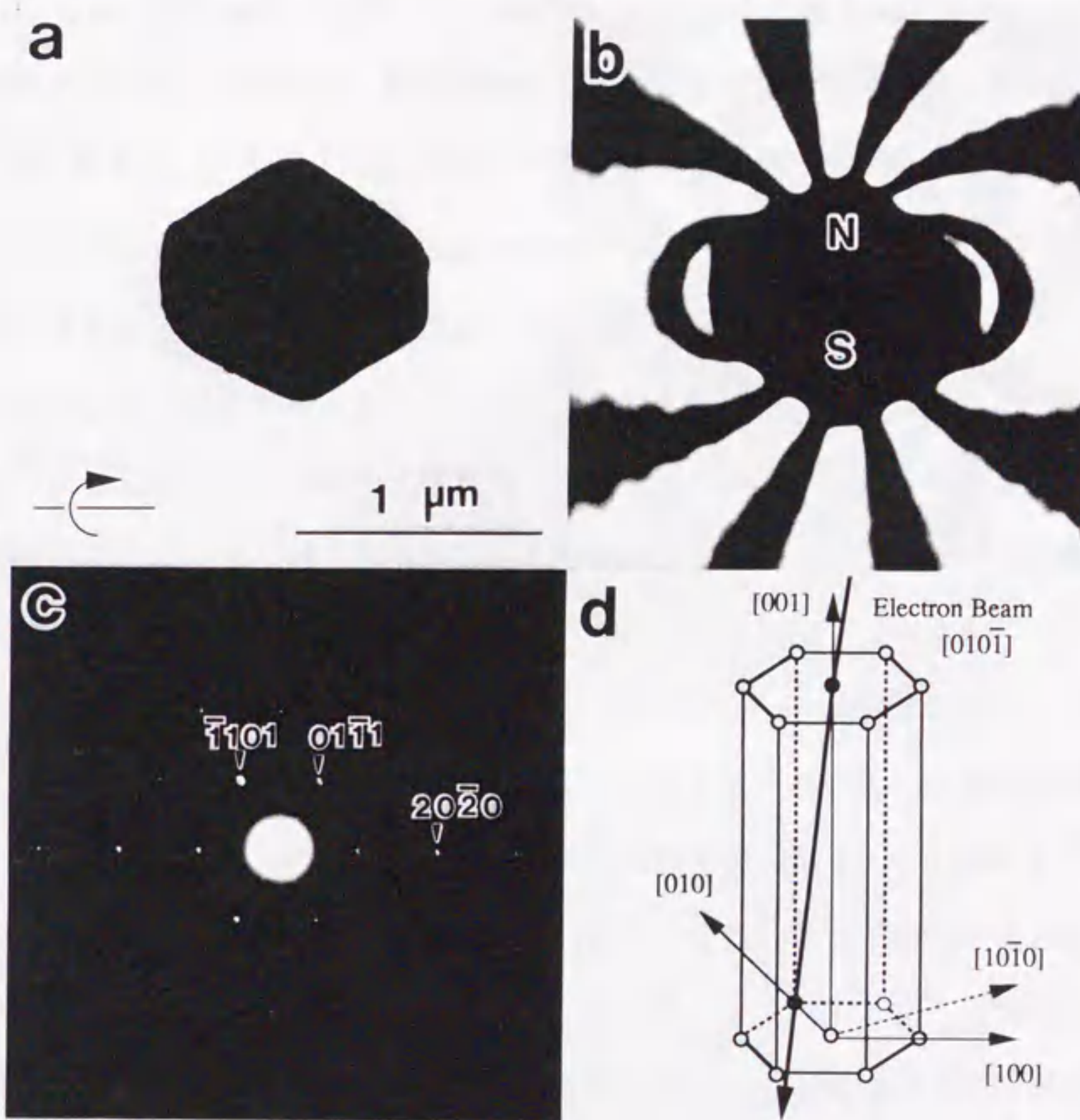


図 3-8
 バリウムフェライト単磁区粒子 (入射方向 $[0\ 1\ \bar{1}]$)
 (a) 電子顕微鏡像、(b) 干渉顕微鏡像、(c) 回折図形、
 (d) 電子線と結晶の方位関係を表す模式図

像ではN極から出てS極にはいる6本の磁力線がはっきりと見られる。磁力線の形状はこの粒子が単磁区状態であることを直接的に示している。

次に、この粒子を別の方向から観察するために、まず最初の $[00\bar{1}]$ 軸入射の状態に戻し、今度は $[010]$ 方向を軸として約24度回転した。図3-9(a)、(b)、(c)、(d)にそれぞれこの状態で観察した電子顕微鏡像、干渉顕微鏡像、回折図形、電子線と結晶の方位関係を表す模式図を示す。回転方向は図3-9(a)に記入してある。電子線入射方向は $[\bar{2}1\bar{1}]$ である。図3-9(b)で見られる粒子の磁化方向と図3-8(b)における磁化方向はほとんど垂直であるように見えるが、実際には紙面に垂直な磁化をわずかに異なる方向に傾けたものであることに注意すべきである。このような結果は、粒子の磁区構造を研究する時には磁化方向を3次元的見地から注意深く考察しなければならないことを示唆している。第5章で記述する「電磁場の3次元再構成」は、そのための信頼性の高い手法の一つである。

図3-10には粒径約 $1\mu\text{m}$ のバリウムフェライト2磁区粒子を示す。図3-10(a)の干渉顕微鏡像は一見複雑に見えるが、図3-10(b)の模式図に示すように大きな磁区と小さな磁区をもつ2磁区粒子であると解釈できる。このような粒径 $1\sim 2\mu\text{m}$ の粒子の観察においては約半数の粒子が単磁区であり、残りの半数が2磁区あるいは解釈出来ないものであった。ホログラム撮影は、コントラストの高い干渉縞を得るために普通の電子顕微鏡写真の撮影に比べて低い電子線照射条件($1\times 10^5\sim 1\times 10^3\text{ A/cm}^2$)で行ったが、このような照射条件下では磁区構造の変化は認められなかった。図3-11には粒径約 $0.15\mu\text{m}$ の単磁区粒子を示す。ホログラムは磁気シールドポールピースを用いて撮影し、像再生では位相は10倍増幅した。このような微小な粒子が持つ磁束による電子波の位相変化は非常に小さく、位相増幅なしでは干渉顕微鏡像に1本の磁力線さえ現れない。図3-12には粒径約 $0.2\mu\text{m}$ の2磁区粒子を示す。後藤ら²³⁾によれば、球形バリウムフェライト粒子の単磁区臨界径は磁壁エネルギー $=2.8\sim 9\text{ erg/cm}^2$ を用いて $0.3\sim 0.8\mu\text{m}$ と概算される。しかし、本実験で得られた結果が示すように単磁区粒子と2磁

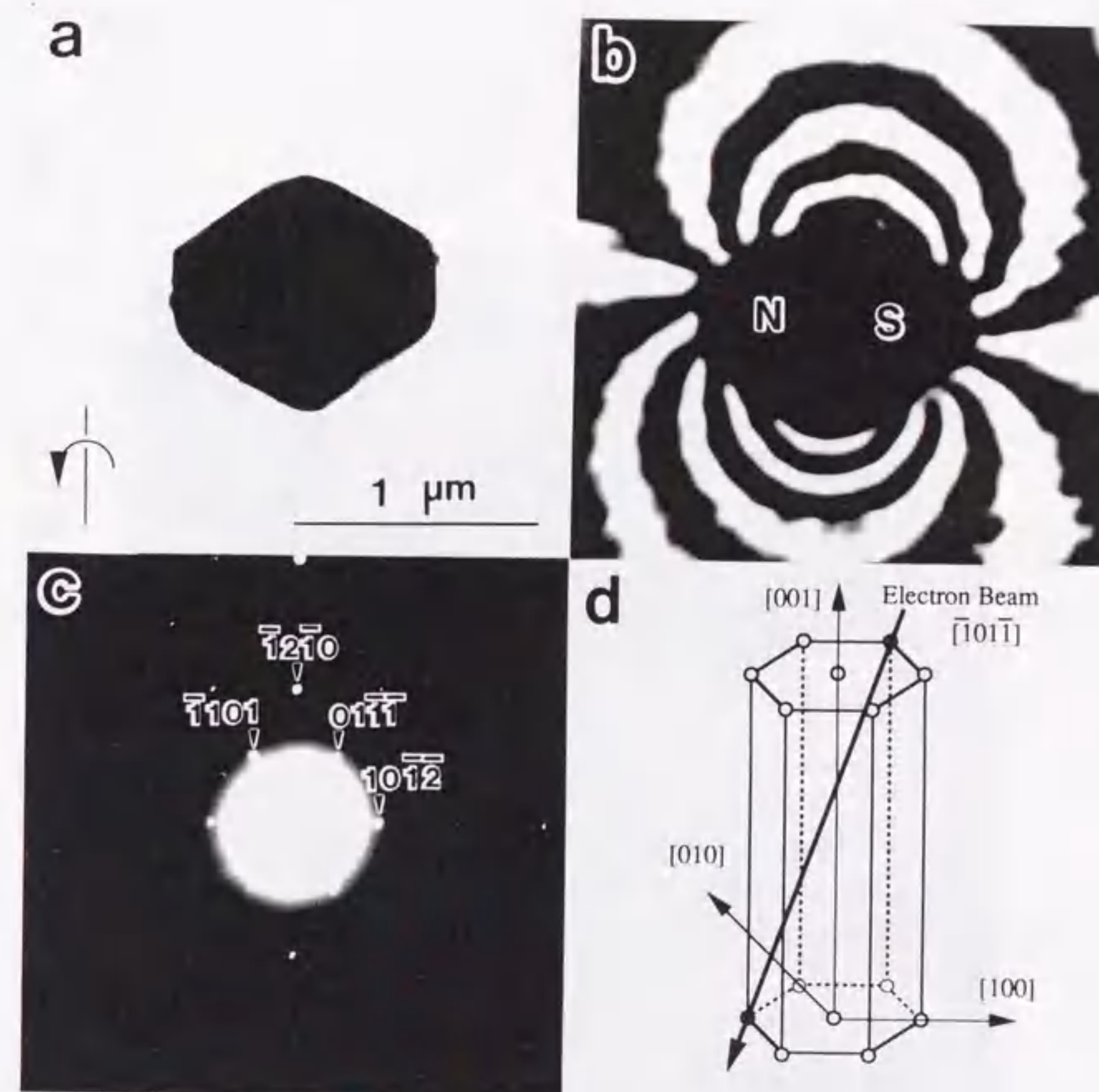


図3-9
バリウムフェライト単磁区粒子（入射方向 $[\bar{2}1\bar{1}]$ ）
(a) 電子顕微鏡像、(b) 干渉顕微鏡像、(c) 回折図形、
(d) 電子線と結晶の方位関係を表す模式図

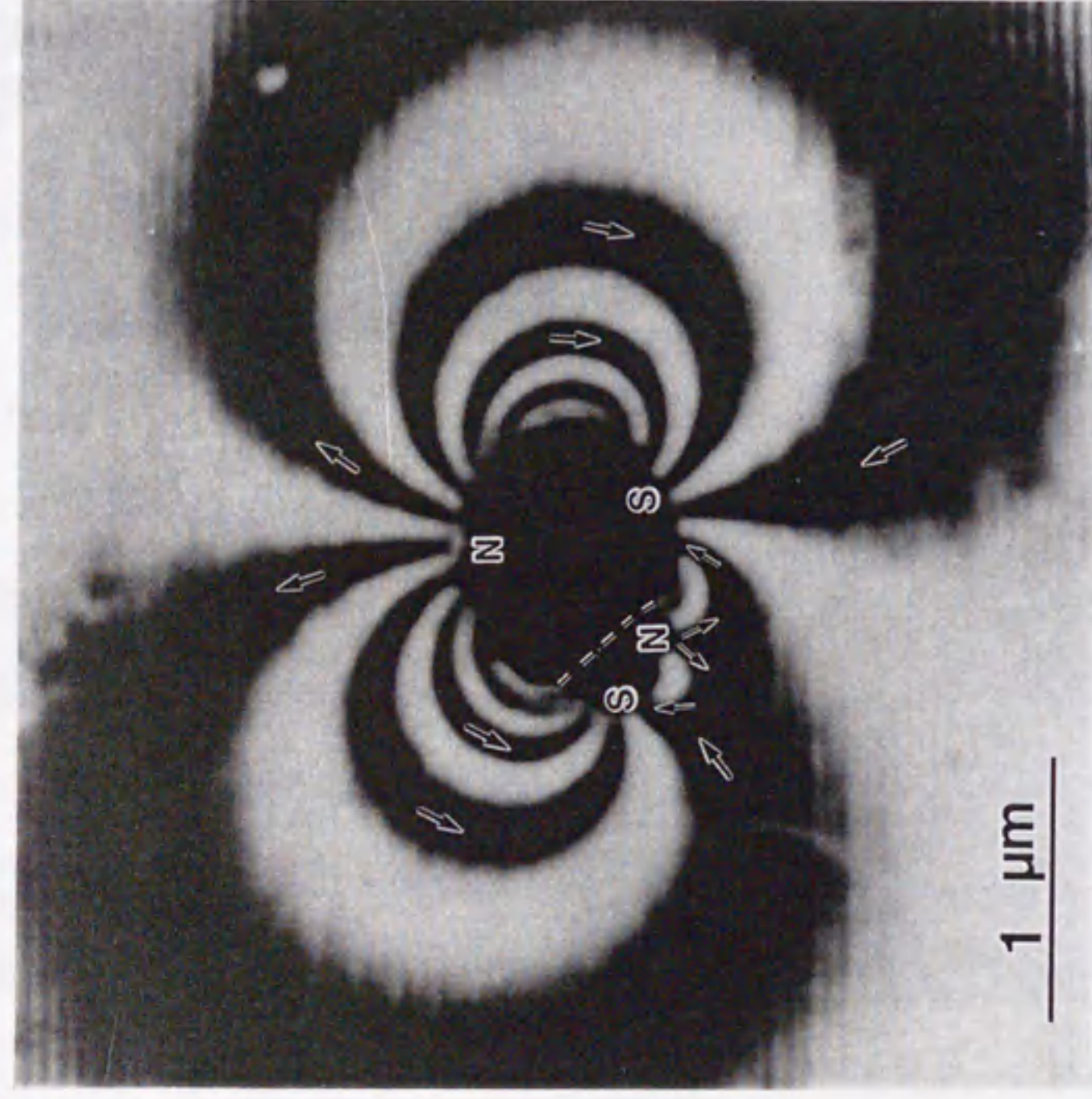


図3-10 バリウムフェライト2磁区粒子 (粒径1 μm)

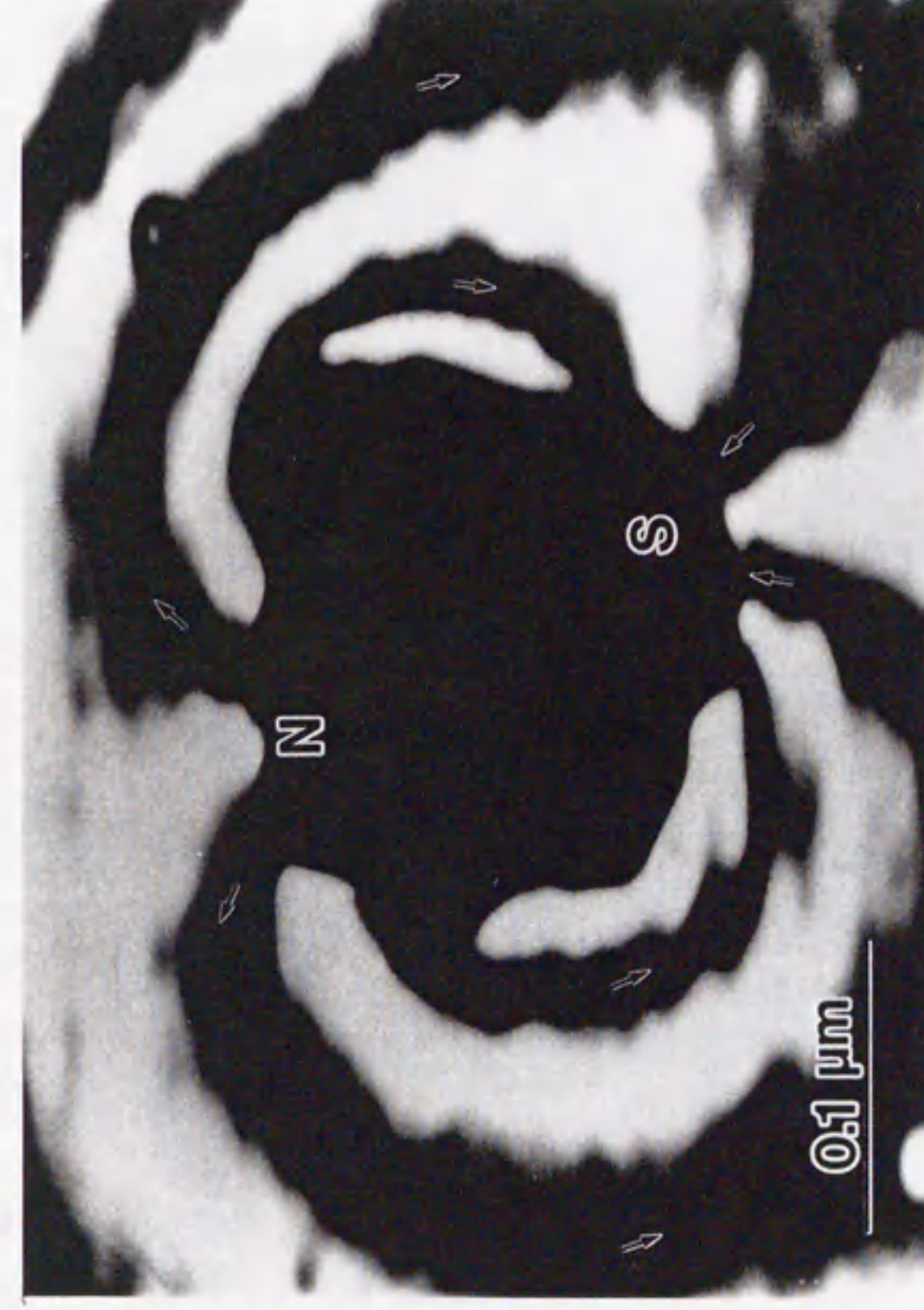


図3-11 バリウムフェライト単磁区粒子 (粒径0.15 μm)

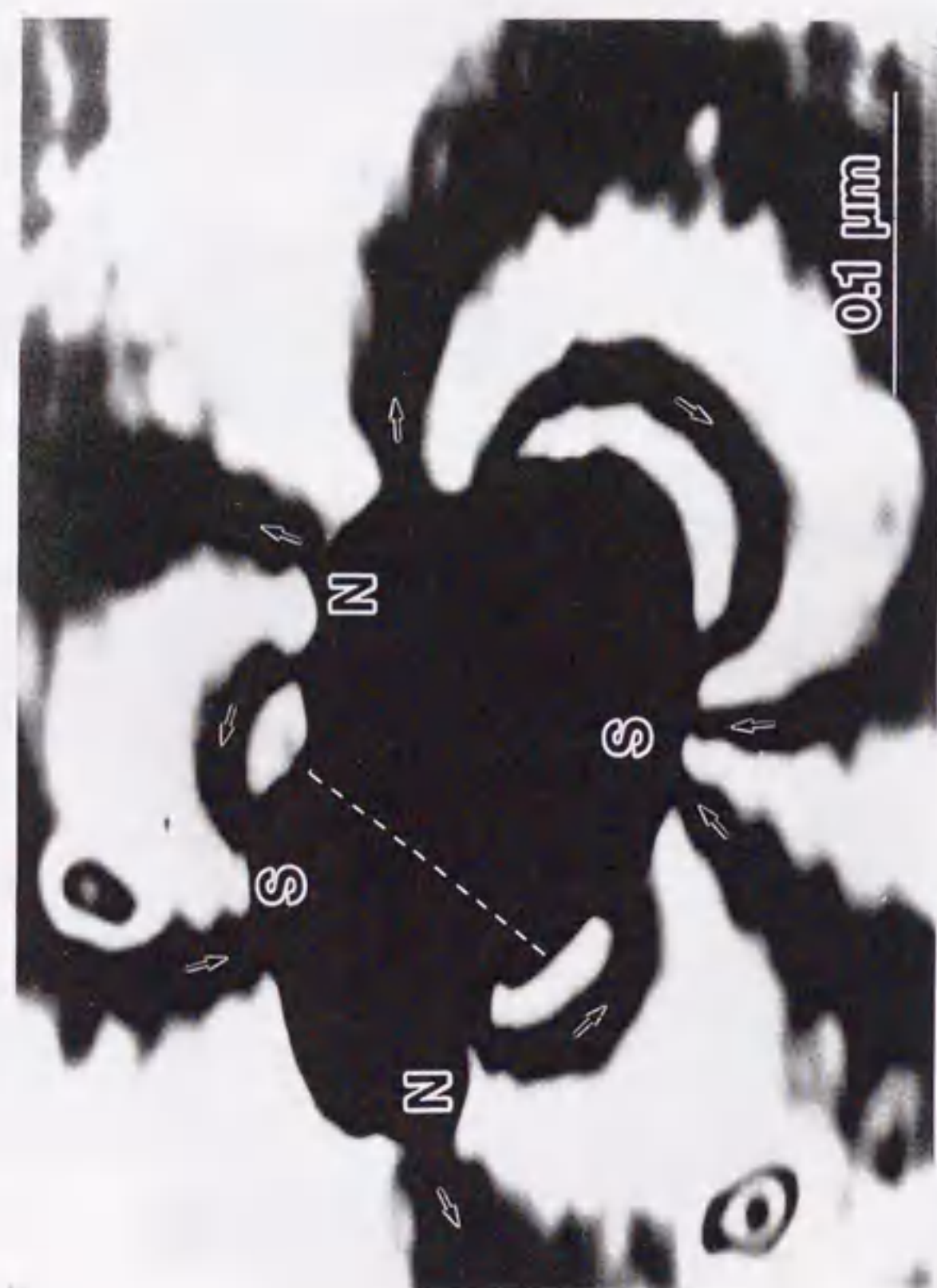


図3-1-2 バリウムフェライト2磁区粒子 (粒径0.2μm)

区粒子はそれよりかなり広い領域にわたって共存している。現実の粒子は様々な形をしており、また積層欠陥や粒界などを含むために臨界領域を広げていると思われる。たとえば、図3-1-2の2磁区粒子には図中に点線で示したような磁壁が存在すると考えられるが、このサイズの粒子はエネルギー的には本来単磁区になるべきである。点線のどこかに磁壁の移動を妨げているピンニング点が存在すると考えられる。このようなピンニング点が結晶欠陥なのか析出物なのか詳しく研究することも磁性体研究として価値ある一分野であると考ええる。

3.3.2 単磁区粒子の干渉顕微鏡像の理論計算

(計算の方法)

前節で記述したように、我々が干渉顕微鏡像で観察する磁力線は一般に3次元的磁場を電子線の軌道方向に沿って2次元観察面に投影したものである。磁場が薄膜のような2次元的な試料の内部に面に沿って存在するのであれば解釈は容易であるが、バリウムフェライト単磁区粒子の例のように磁場が粒子のまわりに3次元的に存在するときには、磁化方向の解釈には注意を要する。特に、結果の定量的考察のためには理論計算と実験結果の比較検討が必要である。そこで、前節のバリウムフェライト単磁区粒子の干渉顕微鏡像を計算し、実験結果と比較した。

本研究における干渉顕微鏡像の理論計算は福原ら²⁶⁾の方法を基本として作成したプログラムによって行った²⁷⁾。図3-1-3に試料、試料の観察面への投影、z軸に平行な電子線軌道Lを示す。図の上方から来る電子は物面を透過し試料から出る磁場によって位相変化を受ける。第2章で論じたように、物体波の位相変化 $\Delta\phi$ は次式で近似される。

$$\Delta\phi(x, y) = -\frac{2\pi e}{h} \int_L A(\mathbf{r}) \cdot d\mathbf{s} \quad (3 \cdot 1)$$

ここに、 h と e はそれぞれプランク定数と電気素量、 A は磁性体試料によって発生するベクトルポテンシャルである。積分は L に沿って行う。点Pにおけるベクトルポテンシヤ

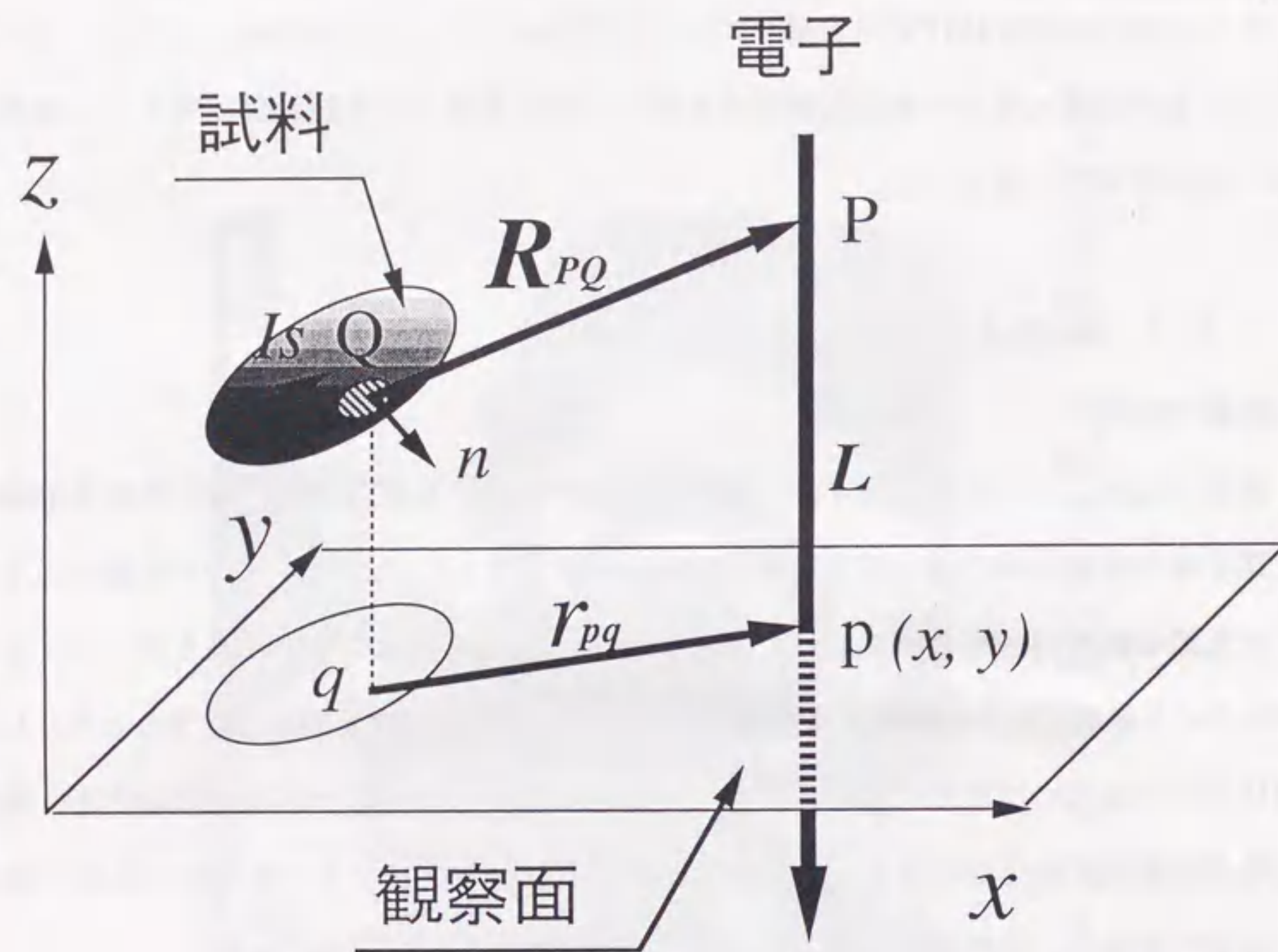


図 3-1-3

単磁区粒子干渉顕微鏡像計算における粒子、観察面 (x-y 平面)、電子ビームのジオメトリ

ル $A(P)$ は

$$A(P) = \frac{1}{4\pi} \int_V dV_Q [I_s \times R_{PQ}] / (R_{PQ})^3 \quad (3 \cdot 2)$$

と表される。ここに、 I_s は試料内の点 Q における磁化であり、 R_{PQ} は点 P から点 Q へ向かうベクトルである。(3・2) 式の $A(P)$ を (3・1) 式の A に代入して L に沿って積分すれば、 $\Delta\phi$ は次のような形になる。

$$\Delta\phi = \frac{e}{h} \int_V dV_Q [I_s \times r_{pq}]_L / (r_{pq})^2 \quad (3 \cdot 3)$$

ここに、 p と q はそれぞれ P と Q の観察面上への投影であり、 r_{pq} は p から q への Distance Vector である。サブスクリプト L は L に平行な成分を意味する。部分積分によって $\Delta\phi$ は次の式のようにになる。

$$\Delta\phi = \frac{e}{h} \left[\int_V dV_Q [\nabla \times I_s]_L \ln r_{pq} - \int_S dS_Q [n \times I_s]_L \ln r_{pq} \right] \quad (3 \cdot 4)$$

n は試料表面に対する外向きの法線ベクトルである。

試料が単磁区粒子であれば I_s は一定であるから、 $\nabla \times I_s$ は 0 である。ゆえに、 $\Delta\phi$ は

$$\Delta\phi = -\frac{e}{h} \int_S dS_Q [n \times I_s]_L \ln r_{pq} \quad (3 \cdot 5)$$

となる。さらに、粒子が半径 R の球であれば上式の積分は解析的に行うことができ、 $\Delta\phi$ は次式のようにまとめられる。

$$\Delta\phi(x, y) = -\frac{4\pi e R^2 I_s}{3 h} \frac{y}{x^2 + y^2} \cos\theta \quad (x^2 + y^2 \geq 1) \quad (3 \cdot 6)$$

$$\Delta\phi(x, y) = -\frac{4\pi e R^2 I_s}{3 h} \frac{y}{x^2 + y^2} \left[1 - \{1 - (x^2 + y^2)\}^{\frac{3}{2}} \right] \cos\theta \quad (x^2 + y^2 \leq 1) \quad (3 \cdot 7)$$

ここに、 x と y は R で規格化された座標であり、 I_s は観察面と角度 θ をなして $x-z$ 面内に存在する。式 (3・6) と (3・7) はそれぞれ粒子外部と粒子内部を通過した物体波の位相変化である。第2章で述べたように、この波動場にもう一つの平面波を干渉させると干渉顕微鏡像が得られる。粒子は c 軸方向に一様に磁化された単磁区粒子であり図3-8に示した観察条件と同様に $[01\bar{1}]$ 方向から観察すると仮定した。この観察条件では、格子定数 $a_0=0.5876$ nm, $C_0=2.137$ nm より磁化ベクトルと観察面のなす角度は75.8度となる。実際の計算は、コンピューター (Macintosh Quadra 610) を使用して観察面内 128×128 点で $\cos\Delta\phi(x,y)$ を算出し、その値を濃淡によって表示した。計算時間は、干渉顕微鏡像1枚あたり数分であった。

(計算結果と考察)

図3-14 (a) と (b) にそれぞれバリウムフェライト単磁区粒子干渉顕微鏡像の観察像と計算像を示す。両者はほぼ一致しており、観察したバリウムフェライト粒子が確かに単磁区粒子であることを証明している。計算像では完全に左右対称なのに対し観察像ではわずかに左右非対称なのは、参照波に含まれる磁場の影響である。粒子から出ている磁場は粒子からの距離の2乗に反比例して減衰するが、無限遠まで行かなければゼロにはならない。波面分割型ホログラフィでは物体波のすぐとなりの部分を参照波として取り入れるので、参照波は粒子から出ている左右非対称な磁場の「尾」を含むことになる。このため、本来きれいな平面波である参照波は少し歪みを持ってしまいその歪みが再生像にも現れてしまう。この影響を少なくするためには、少しでも粒子から離れた場所から参照波を取り込めば良いのであり、これは、プリズムによる干渉領域を広く取することを意味する。しかし、電子波の干渉性には限界があり、あまり干渉領域を広く取ると干渉縞の鮮鋭度 (visibility) が低下してしまう。実際には、適当な妥協点を見つけてホログラムを撮影する。バイプリズムを使う波面分割型ホログラフィで電場・磁場を観察するかぎり、この問題は原理的に避けられない。現在2枚以上のホログラムを撮影してこの影響を取り除く手法を開発中である²⁸⁾。

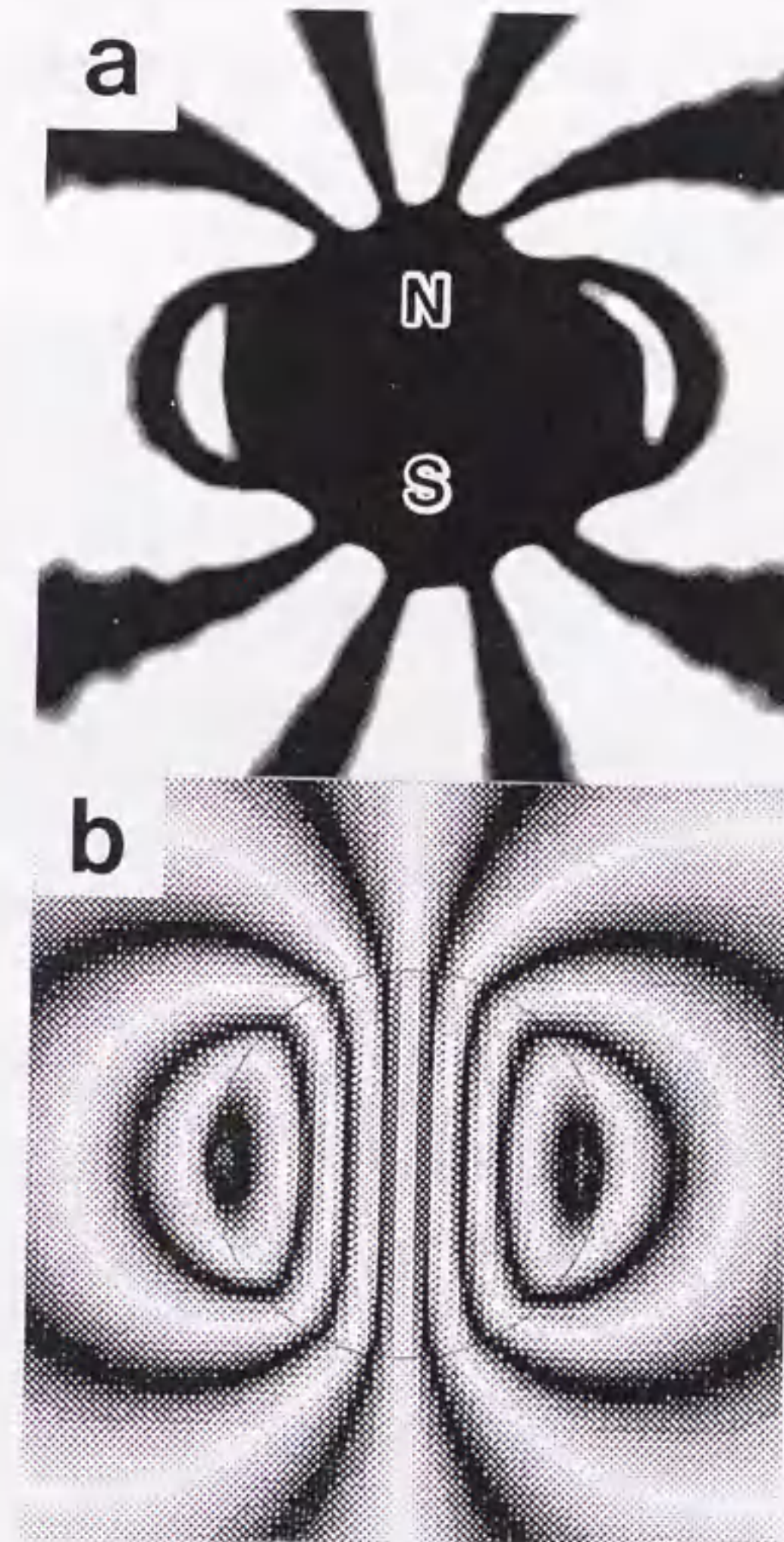


図3-14
バリウムフェライト単磁区粒子干渉顕微鏡像
(a) 実験像、(b) 計算像

3.4 連鎖状鉄超微粒子

(実験方法)

図3-15にアルゴンガス中で鉄を蒸発させて(ガス中蒸発法)生成した連鎖状鉄超微粒子の電子顕微鏡像を示す¹⁷⁾。粒径10~200 nmの粒子が鎖のように一列に連なっているようすから、これらの粒子は単磁区状態になっていると推測されていた。しかし、実際にこのような粒子の磁区構造が観察されたことはなかった。図3-16(a)はこのような連鎖上粒子のある先端部分のホログラムを単純にデジタル再生した干渉顕微鏡像(位相増幅10倍)である。光学再生ではホログラムからの高次回折波が弱く、このような高次位相増幅は大変困難である。10倍もの位相増幅を容易に行うことができるのはデジタル再生法の長所であるが、ホログラムに含まれるあらゆるノイズや像の歪みまで同時に増幅され、この図のように質の悪い再生像になってしまう。最も大きな原因は、バイプリズムのフレネル縞と電子レンズの歪みである。そこで、デジタル再生法で高次位相増幅再生する場合にはこれらに起因する歪みを除去する必要がある。この手法のフローチャートを図3-17に示す。

まず、試料の通常のホログラムを撮影する。このホログラムには試料に関する情報と上述の原因による歪みの情報が含まれている。その後、試料を移動させて何も無い真空部分の干渉縞を撮影する。この干渉縞を「参照ホログラム」と呼んでいる。参照ホログラムにはもちろん試料の情報は含まれていないが、歪みの情報は含まれている。この歪みの情報は通常のホログラムに含まれているそれと全く同じである。この2つのホログラムをそれぞれフーリエ変換し、回折図形のサイドバンドに適当な大きさの絞り関数をかけて原点へ移動させる。さらにその逆フーリエ変換を求めると波動場が複素振幅として求められる。その複素振幅の値から位相値を計算し、観察面上での位相分布を求める。この時、ホログラムより求めた「位相分布」にも参照ホログラムより求めた「位相分布」にも位相の凹凸が見られる。これは、上述のようにサイドバンドに絞り関数をかけ、これを逆フーリエ変換することによって現れたものであり、画像再生によって形成される擬像である。この擬像は位相分布像にスムージングをかけることにより、磁場による位



図3-15 連鎖状鉄超微粒子の電子顕微鏡像

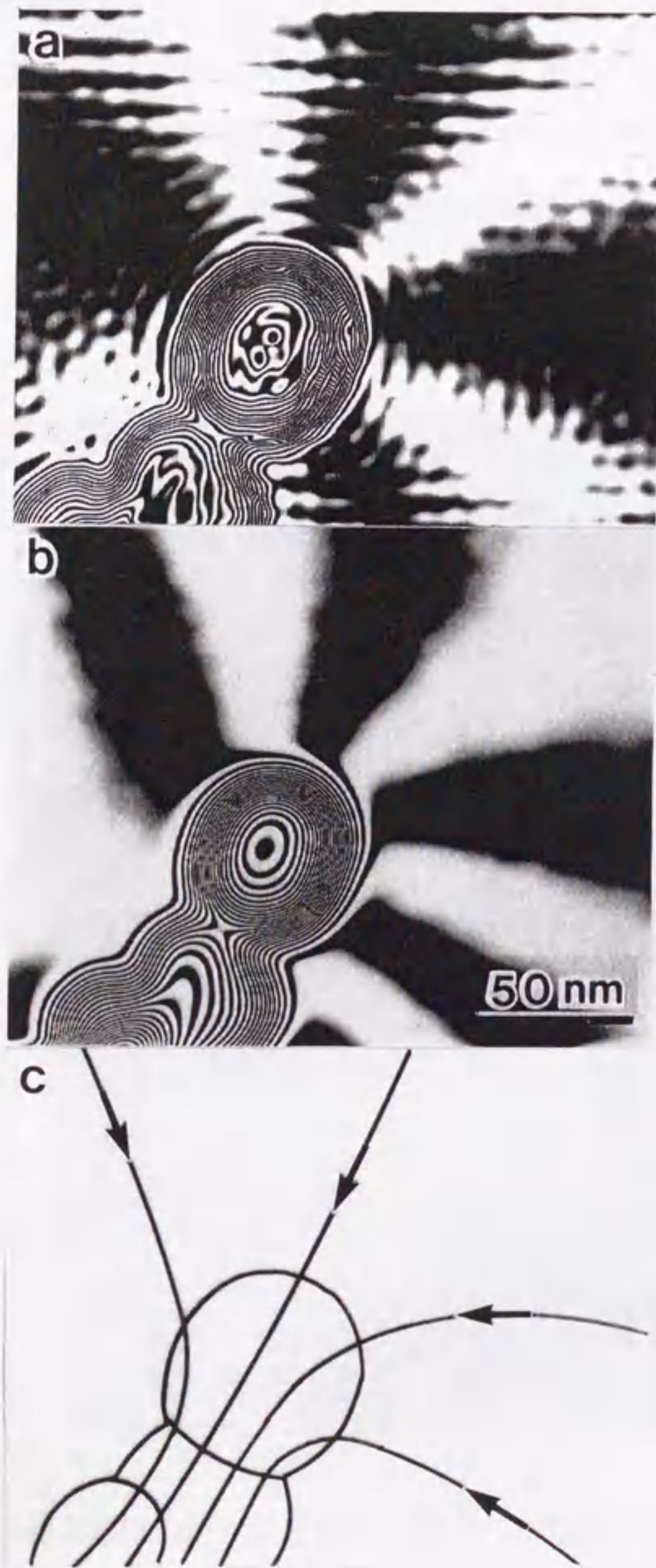


図 3-16
連鎖状鉄超微粒子先端部の干渉顕微鏡像（位相増幅 10 倍）
(a) 単純なデジタル再生によるもの
(b) 参照ホログラムを使ってノイズや歪みを取り除いたもの
(c) 模式図

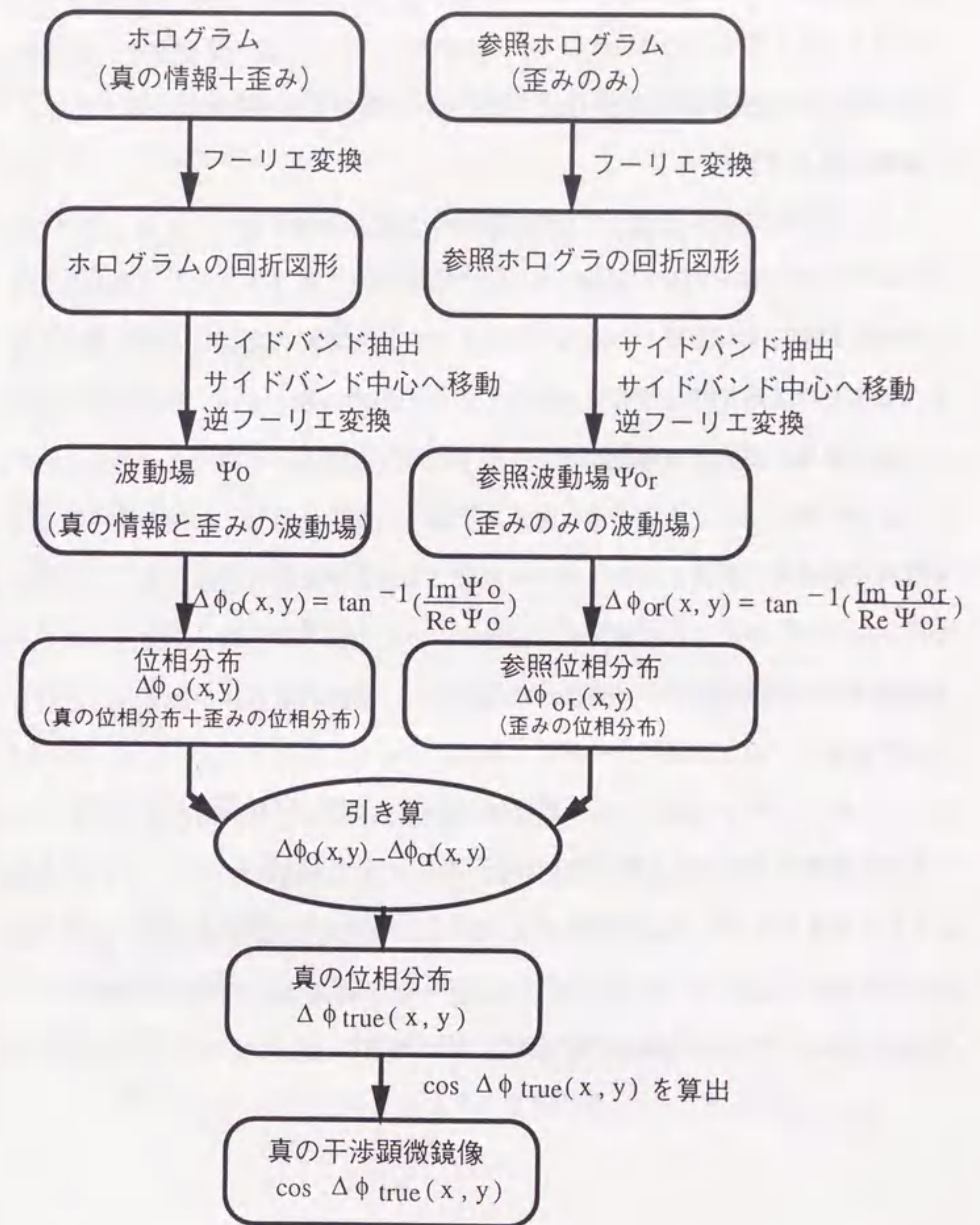


図 3-17
デジタル再生における高次位相増幅法のフローチャート

相情報を損なうことなく減少させることができる。その後、「位相分布」から「参照位相分布」を差し引く。これによって歪みを取り除かれた「真の位相分布」が求められる。この「真の位相分布」の余弦 (cos) を求めれば真の干渉顕微鏡像が得られる。

(実験結果と考察)

このようにして歪みを除去して得た真の干渉顕微鏡像を図3-16 (b) に示す。粒子外部では磁力線が明瞭に観察される。これに対し、粒子内部では内部電位による厚さの情報と磁場の情報が重なり合っている。相対的には粒内磁場による位相変化よりむしろ内部電位による位相変化の方が大きく、同心円状の厚さ分布 (等厚縞) が描かれている。粒子外部の磁力線の形状から、これらの粒子は図3-16 (c) で模式的に示されるような単磁区状態であると考えられる。粒子の縁を注意深く観察すると、最も外側の等厚縞が磁力線に変化して粒子外部へ発散しているかのように見える。これは粒子の同心円状の厚さ分布による位相変化と磁場によって形成されたらせん階段的勾配の位相分布が重なり合うことによって生まれた像であり、実際の磁力線が渦巻き状になっているわけではない。磁力線は模式図のようになっていると解釈すべきである。また、一般に正である粒子の内部電位によって電子波の位相は遅れることが知られているので、この干渉顕微鏡像において左上部の位相は右下部の位相より遅れていることがわかる。このような位相変化を起こす磁場の向きは、フレミングの法則より模式図の方向であることが判定できる。このような $0.1\mu\text{m}$ 以下の粒子の磁区構造は磁性体観察用電子レンズの導入とコンピュータによる高精度画像解析技術の確立によって初めて明らかにされた。

3.5 結 言

本章では、電子線ホログラフィによる磁性体粒子の磁区構造観察について記述した。要点は以下のとおりである。

- (1) ミクロンオーダー以下の微小粒子の磁区構造観察をする手法を開発することは、実用的磁性材料や磁気デバイスの開発の役に立つばかりでなく、新しい「メソスコピック磁性」研究への手がかりとなる可能性が高く、重要な研究項目である。
- (2) 電子顕微鏡のレンズは磁界レンズであるために、通常の方法で磁性体を観察しようとすると、鉛直方向の強い磁場により試料の磁区構造が変化してしまう。この問題を解決するためには、対物レンズ電流を切って観察する「レンズOFF法」を採用したり、試料位置での磁場が非常に弱い「磁気シールドポールピース」を使用したりすることが必要である。
- (3) 粒径約 $1\mu\text{m}$ のバリウムフェライト単磁区粒子を初めて干渉顕微鏡像で直接観察した。また、干渉顕微鏡像は3次元磁場分布の2次元観察平面への投影であるという観点から、像解釈に関する重要な点を明らかにした。
- (4) バリウムフェライト単磁区粒子の干渉顕微鏡像を理論的に求めて実験像と比較し、観察された粒子が間違いなく単磁区であることを証明した。
- (5) ガス中蒸発法で生成した連鎖状鉄超微粒子が単磁区粒子であることを示した。この粒子の像再生においては、ホログラムに含まれるバイプリズムのフレネル縞によるノイズや電子レンズの歪みを除去する高精度画像解析技術を開発した。

参 考 文 献

- 1) C. P. Bean, J. Appl. Phys. 26 (1955) 1381.
- 2) E. Kneller, Z. Phys. 152 (1958) 574.
- 3) E. M. Chudnovsky and L. Gunther, Phys. Rev. Lett. 60 (1988) 661.
- 4) H. J. Williams, R. M. Bozorth and W. Shockley, Phys. Rev. 75 (1949) 155.
- 5) D. J. Craik and R. S. Tebble, *Ferromagnetism and Ferromagnetic Domains*
(North-Holland Publishing Company, Amsterdam, The Netherlands, 1965), p. 66.
- 6) Y. Martin and H. K. Wickramasinghe, Appl. Phys. Lett. 50 (1987) 1455.
- 7) Y. Honda, S. Hosaka, A. Kikugawa, S. Tanaka, Y. Matsuda, M. Suzuki and M.
Futamato, Jpn. J. Appl. Phys. 31 (1992) L1061.
- 8) G. Chrobok and G. Hofmann, Physics Lett. 57A (1976) 257.
- 9) T. H. DiStefano, IBM Tech. Discl. Bull. 20 (1978) 4212.
- 10) K. Koike and K. Hayakawa, Jpn. J. Appl. Phys. 23 (1984) L187.
- 11) H. Boersch, H. Hamisch, D. Wohllenben and K. Grohmann, Z. Phys. 159 (1960) 397.
- 12) H. Fuller and M. Hole, J. Appl. Phys. 31 (1960) 238, 31 (1960) 1699.
- 13) A. Tonomura, *Electron Holography* (Springer-Verlag, Berlin, Germany, 1993).
- 14) 上田良二、電子顕微鏡、9 (1974) 49.
- 15) A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii and K. Mihama, Phys. Rev. Lett. 44
(1980) 1430.
- 16) T. Hirayama, Q. Ru, T. Tanji and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 63 (1993) 418 .
- 17) T. Hirayama, J. Chen, Q. Ru, K. Ishizuka T. Tanji and A. Tonomura, J. Electron
Microsc. 43 (1994) 190.
- 18) K. Shirota, A. Yonezawa, K. Shibatomi and T. Yanaka, J. Electron Microsc. 25 (1976)
303.
- 19) J. Frenkel and J. Dorfman, Nature 126 (1930) 274.

- 20) C. Kittel, Phys. Rev. 70 (1946) 965.
- 21) L. Neel, CR Acad. Sci. 224 (1947) 1488.
- 22) W. Brown, Jr., Phys. Rev. 105 (1957) 1479.
- 23) K. Goto, M. Ito and T. Sakurai, Jpn. J. Appl. Phys. 19 (1980) 1339.
- 24) K. Goto, J. Jpn.Soc. Powder Metall. 36 (1989) 761.
- 25) O. Kitakami, K. Goto and T. Sakurai, Jpn. J. Appl. Phys. 27 (1988) 2274.
- 26) A. Fukuhara, K. Shinagawa, A. Tonomura and H. Fujiwara, Phys. Rev. B 27 (1983)
1839.
- 27) T. Hirayama, N. Osakabe, Q. Ru, T. Tanji and A. Tonomura, Jpn. J. Appl. Phys. 34
(1995) 3294.
- 28) T. Tanji, Q. Ru and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 69 (1996) 2623.

第4章 オンラインリアルタイム電子線ホログラフィ

4.1 緒言

物理学において、動的観察によって新しい知見が得られた例は多数挙げられる。現代の電子顕微鏡法においても動的観察は非常に重要な意味を持ち、新しい物理的発見に寄与している¹⁾。

電子線ホログラフィでは電子の波面を再生することができ、微小領域の電場・磁場に関する情報を実空間の映像として得られるため、数々の磁性体研究たとえば、板状粒子の磁区構造²⁾、薄膜の磁壁³⁾、磁気記録テープの記録パターン⁴⁾、などの観察解析に活用されてきた。本研究においても磁場（磁力線）観察の分解能と計測感度を一層向上させ、単磁区構造など微小領域に特別に発現する物理現象を探るとともに材料研究の分野への応用を計ってきたことを前章で記述した⁵⁻⁷⁾。しかし、ホログラフィはホログラム撮影と像再生の2段階の結像方法であるために、動きを伴う現象を観察するのは容易でない。また、電子顕微鏡でホログラムを撮影する時、オペレータはホログラムを見ているのであり、磁力線を見ることはできなかった。このことは、ホログラムを撮影してフィルムを現像し、それを光学再生系あるいはコンピューターで再生してはじめて試料の磁化状態などがわかることを意味する。つまり、電子顕微鏡でホログラムを撮影してから早くて半日、普通は2～3日後でなければ観察結果は出ないのである。今日では、像再生はコンピューターによるデジタル再生が主流になっているので、最初は再生のための計算を早く行う方法⁸⁻¹¹⁾が考えられた。これらの手法は計算時間をある程度短縮することには成功したが、リアルタイム観察には至らなかった。それでもなお磁力線のリアルタイム観察の重要性に対する認識は変わることがなく、以下に述べるような工夫によって超伝導体の磁束量子の動的観察が初めて実現した。まず、時間的に変化する磁束量子のホログラムをビデオに撮影し、そのホログラムをすべてひとコマずつ再生して

動画を得た¹²⁾。この手法によって磁束量子の動きが初めて観察された。しかし、すべてのホログラムをひとコマずつ再生する方法には大変長い時間がかかった。また、オペレーターが電子顕微鏡を操作するときには再生像を見ることは出来ないという問題はそのまま残された。

本研究では、光学再生装置が非常に計算速度の早い「光コンピューター」であるという視点から光学再生の価値を再認識し、ホログラフィ電子顕微鏡と光学再生系を電氣的に結合させることを試みた。この電氣的結合には最近進歩の著しい液晶素子を利用した。これにより、電子顕微鏡操作中にホログラムと再生像の両方を観察できる「オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステム」を実現した。以下に使用した液晶素子の性質（位相変調特性）、オンラインリアルタイムシステム、磁性体観察例について記述する。

4.2 液晶パネルの性質とシステムの開発

4.2.1 液晶パネルの構造と位相変調特性

近年、時計や計算機の表示素子として液晶素子が利用されることが多くなった。一般に液晶素子にはツイストネマティック (twisted nematic, TN) 液晶素子とホモジニアス配向液晶素子がある。純粋に空間位相変調素子として使用するにはホモジニアス配向液晶素子の方が原理的に適しているが、本研究では入手しやすいツイストネマティック液晶素子を使用した。このタイプでは通常液晶分子の旋光性が利用され、光の強度変調素子として用いられているが、光の位相を変える機能をも合わせ持っている¹³⁻¹⁵⁾。図4-1に本研究で使用した液晶素子の外観を示す。この液晶素子は、画面サイズ25.6 x 19.8 mm²、画素数320 x 220、画素ピッチ80 x 90 μm²のものである。図4-2にはその構造を模式的に示してある。液晶分子は二枚のガラス基板の間に封入されており、ガラス基板には透明電極および配向膜が付けられている。液晶素子に電圧を印加していないとき、液晶分子は配向膜によって2枚のガラス基板の間で90°ねじれている。水平偏波の光

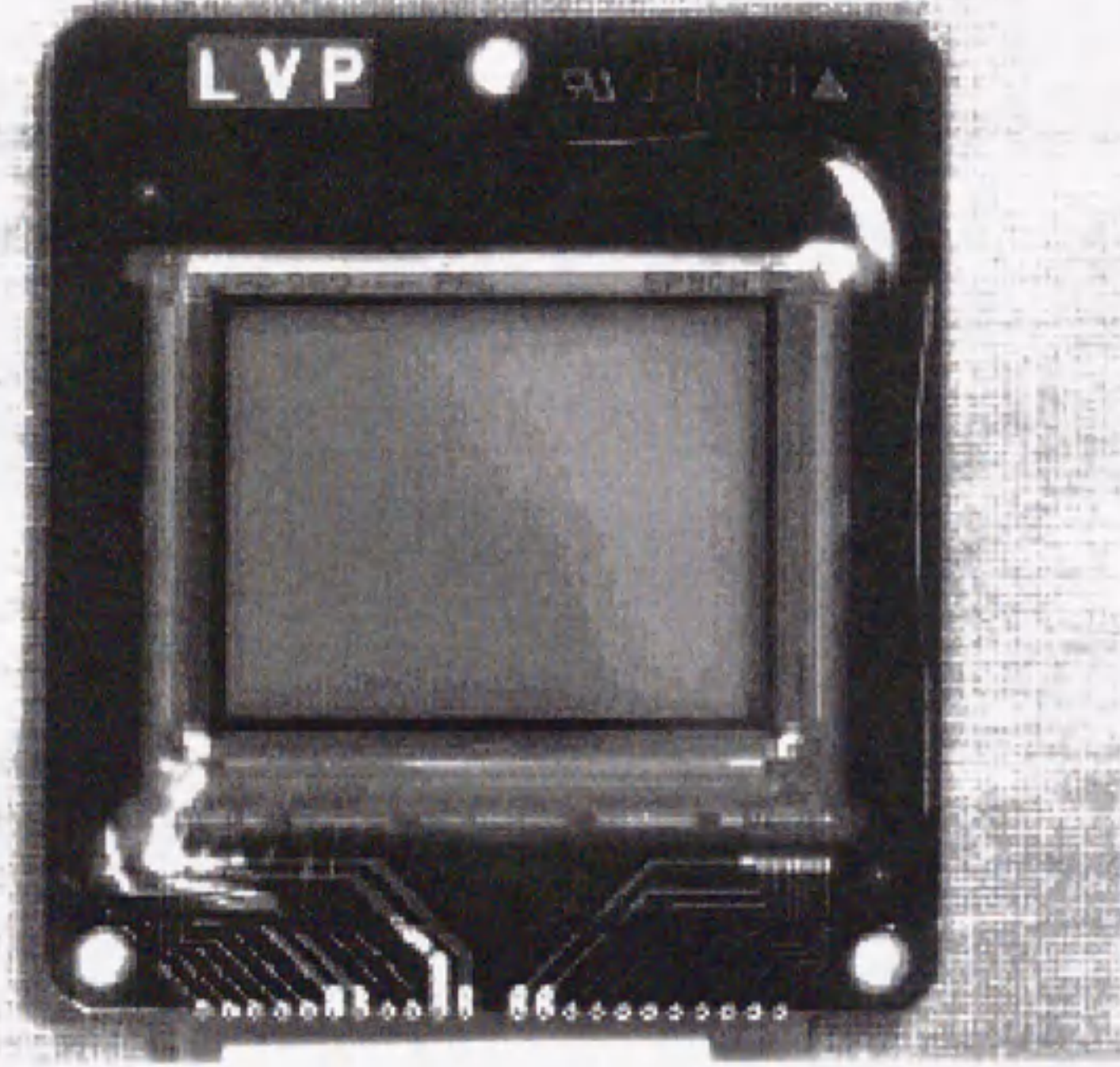


図 4 - 1 液晶素子の外観

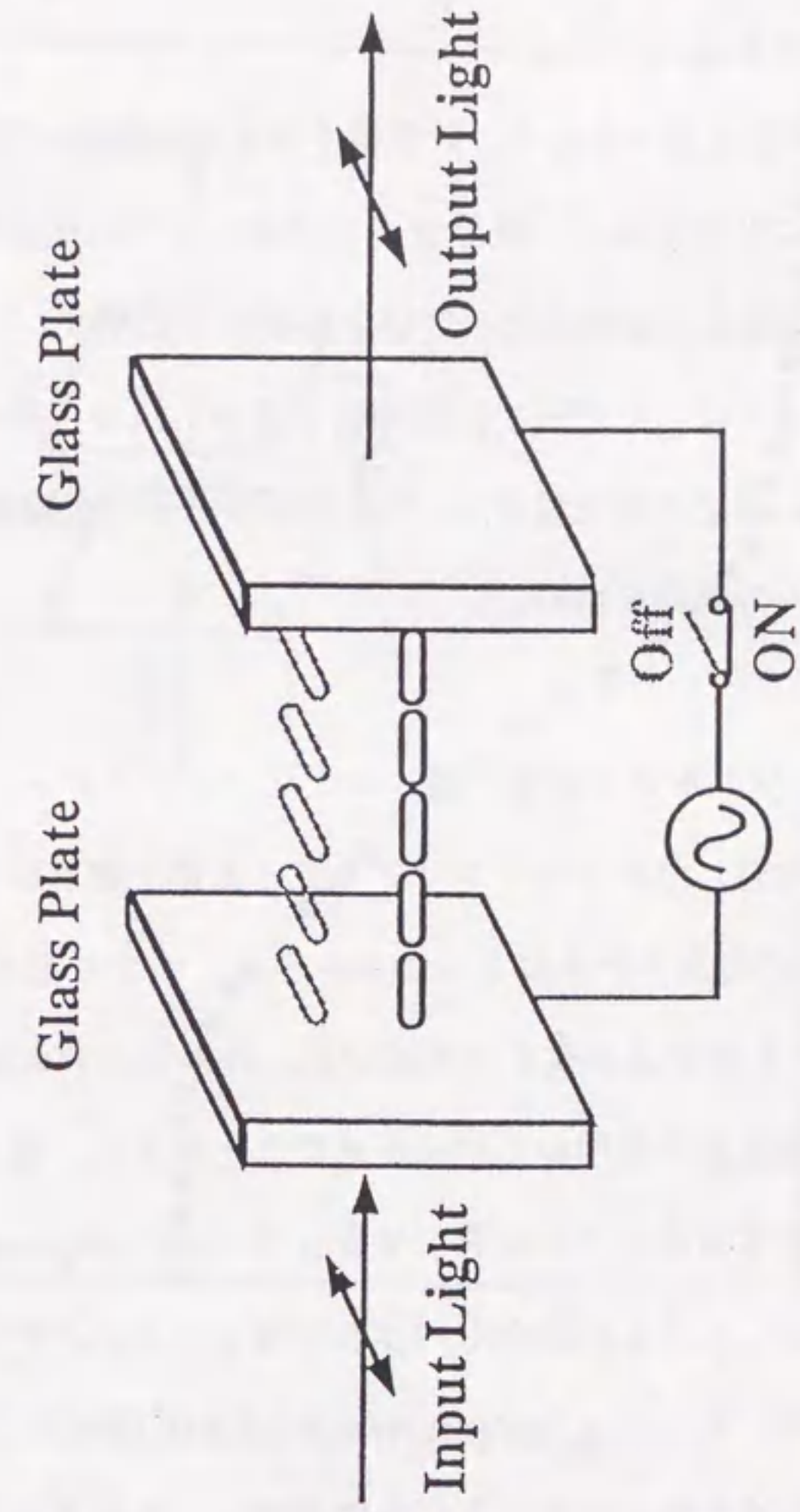


図 4 - 2 ツイストネマティック液晶素子の構造

を入射させると、液晶の旋光性によって、光が垂直偏光となって出射する。一方、液晶にしきい値より大きい電圧を印加すると、液晶分子は光軸方向に回転し、水平偏光の入射光は水平偏光のまま出射する。この液晶素子を偏光板と組み合わせて使用すれば光の強度を変化させることができる。また、このように液晶の印加電圧を変えると液晶分子の向きが変わり、入射光に対する液晶の屈折率を変えることができるので位相変調素子としても用いることができる。

液晶素子の位相変調特性を調べるため、計算機で濃度が線形的に変化するビデオパターンを作成して液晶素子に出力表示し、液晶素子を透過した光の位相変化を干渉計で測定した。その結果得た印加電圧と位相変化の関係を図4-3に示す^{16, 17)}。この図から、印加電圧を増加させていくにしたがって、位相変化量が 3.1π から徐々に小さくなっていくことが分かる。実験には位相変化量が 2π の範囲にわたって直線的に変化する領域、すなわち、1.6Vから3.2Vの範囲を用いた。

4.2.2 オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステム

図4-4に本研究で作製したオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムの模式図を示す^{18, 19)}。このシステムは2つのユニット、つまり電子線ホログラフィ顕微鏡とマッハツェンダー干渉計より構成されている。このシステムの要点は、これら2つのユニットを先述の液晶素子を用いて結合させたことにある。電子線ホログラフィ顕微鏡で得られる時間変化するホログラムをTVカメラ (GATAN model 622) で撮影し、その情報はビデオ信号として 75Ω 同軸ケーブルでマッハツェンダー干渉計の後ろに設置された液晶素子上に映し出した。このマッハツェンダー干渉計は干渉顕微鏡像を得るために必要な2つの平面波を作り出すように角度調整し、液晶素子をこの2つのビームが透過するようにした。干渉顕微鏡像はこれら2つのビームのうち一方のビームの回折波の延長上に再生される波ともう一方のビームの透過波とを重ね合わせて観察面上に形成した。この干渉顕微鏡像は観察面に設置したCCDカメラで撮影し、電子顕微鏡の横に置いたCRTに映し出した。このシステムによって電子顕微鏡のオペレータはホログラム

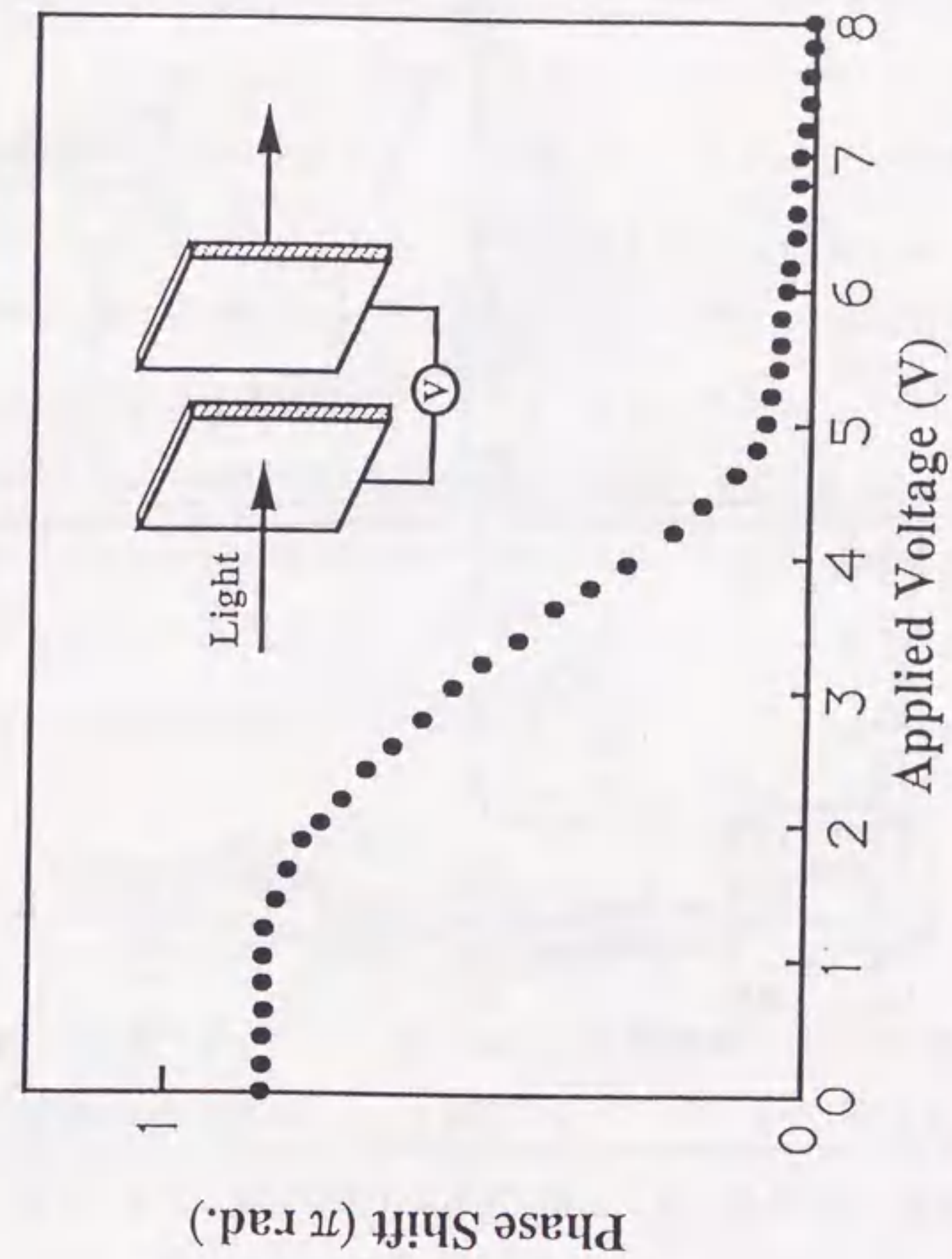


図4-3 液晶素子の位相変調特性

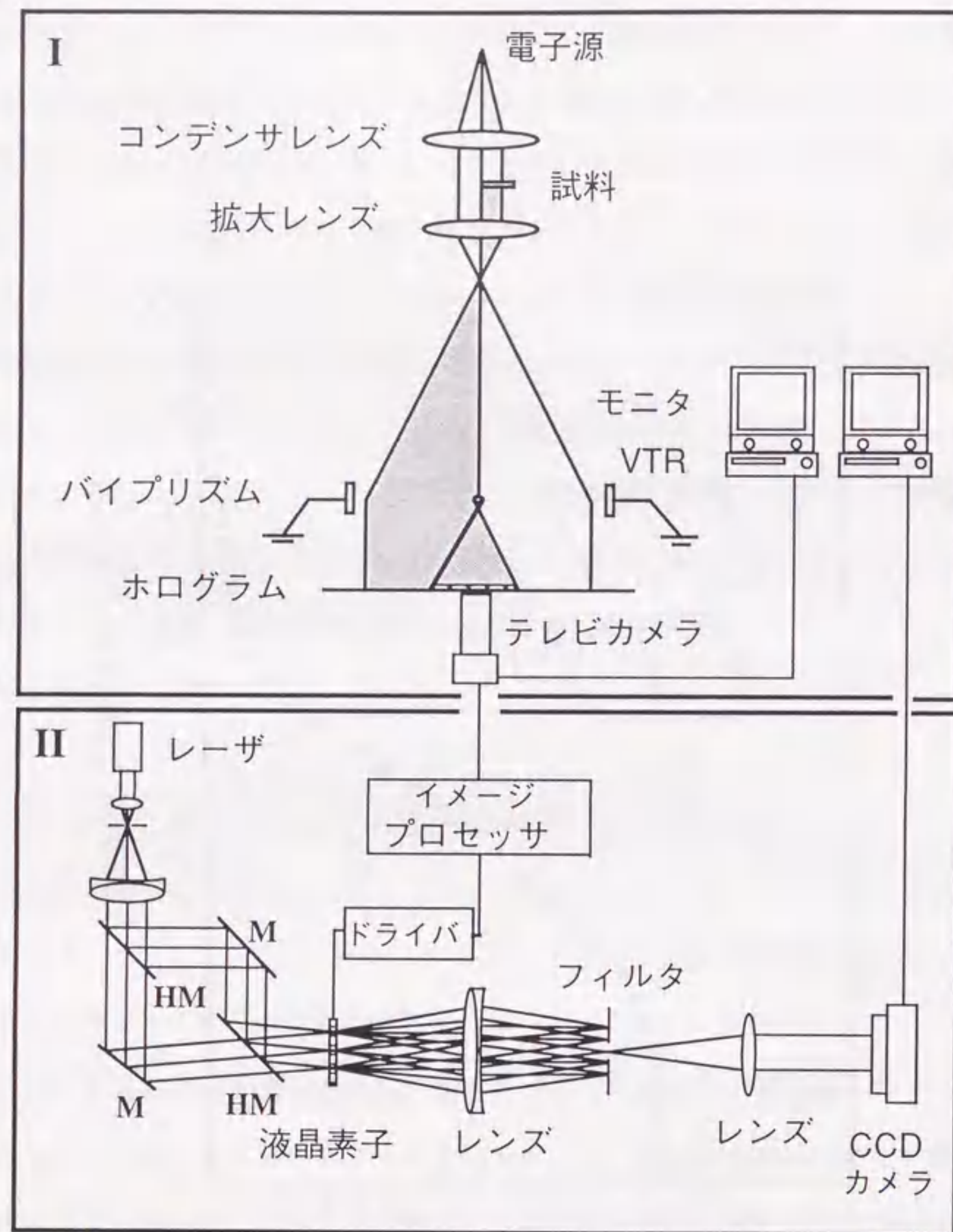


図4-4
オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステム

と干渉顕微鏡像の両方を見ながらオペレートすることができるようになった。

本装置の時間分解能を測定するために、予備的にビデオ撮影したホログラムとそれに対応する干渉顕微鏡像を1フレームずつ検査した。その結果、干渉顕微鏡像の変化は完全にホログラムの変化に追従していることが明らかとなった。カメラの1フレームは1/30秒で撮影されるのであるから、この液晶の時間分解能は1/30秒以上であると言える。しかし、ホログラムの変化を注意深く観察すると、時々TVカメラは残像を示すことが判明した。とくに背景に強いコントラストを持つホログラムに関しては最大数フレームにわたる残像を持つことがわかった。このことから、システム全体の時間分解能は現在のところTVカメラで決定されている。

本再生システムは従来の光学的再生システムと比較したときには何ら短所はない。しかし、デジタル再生システムと比較すると次のような短所がある。

- (1) 干渉顕微鏡像において位相変化量を正確かつ定量的にもとめることは困難である。
- (2) 10倍以上の高次位相増幅はきわめて困難である。それは、高次位相増幅に必要なホログラムからの高次回折波の強度が十分強くないためである。現在のところ6倍程度の位相増幅は本システムでも可能である。

4.3 パーマロイ磁壁移動の観察

上記のリアルタイム電子線ホログラフィシステムを使用して、代表的な軟磁性材料であるパーマロイ薄膜の磁壁移動のようすを観察した^{18, 19)}。まず、第3章で述べたように対物レンズ電流を切り、試料を電子顕微鏡に挿入した。焦点は第一中間レンズを調整して合わせた。次に、試料に磁場を印加するために、図4-5に示すように試料を5-15度傾斜させ、対物レンズ電流をゆっくりと0.1A程度まで増加させた。この電流値は対物レンズを普通に使用する時のレンズ電流値の約1/50に相当する。この程度のレンズ電流の変化では、焦点はほとんど変化しなかった。その後再びゆっくりと0までもどした。この磁場印加によって引き起こされた磁壁移動のホログラムと干渉顕微鏡像は

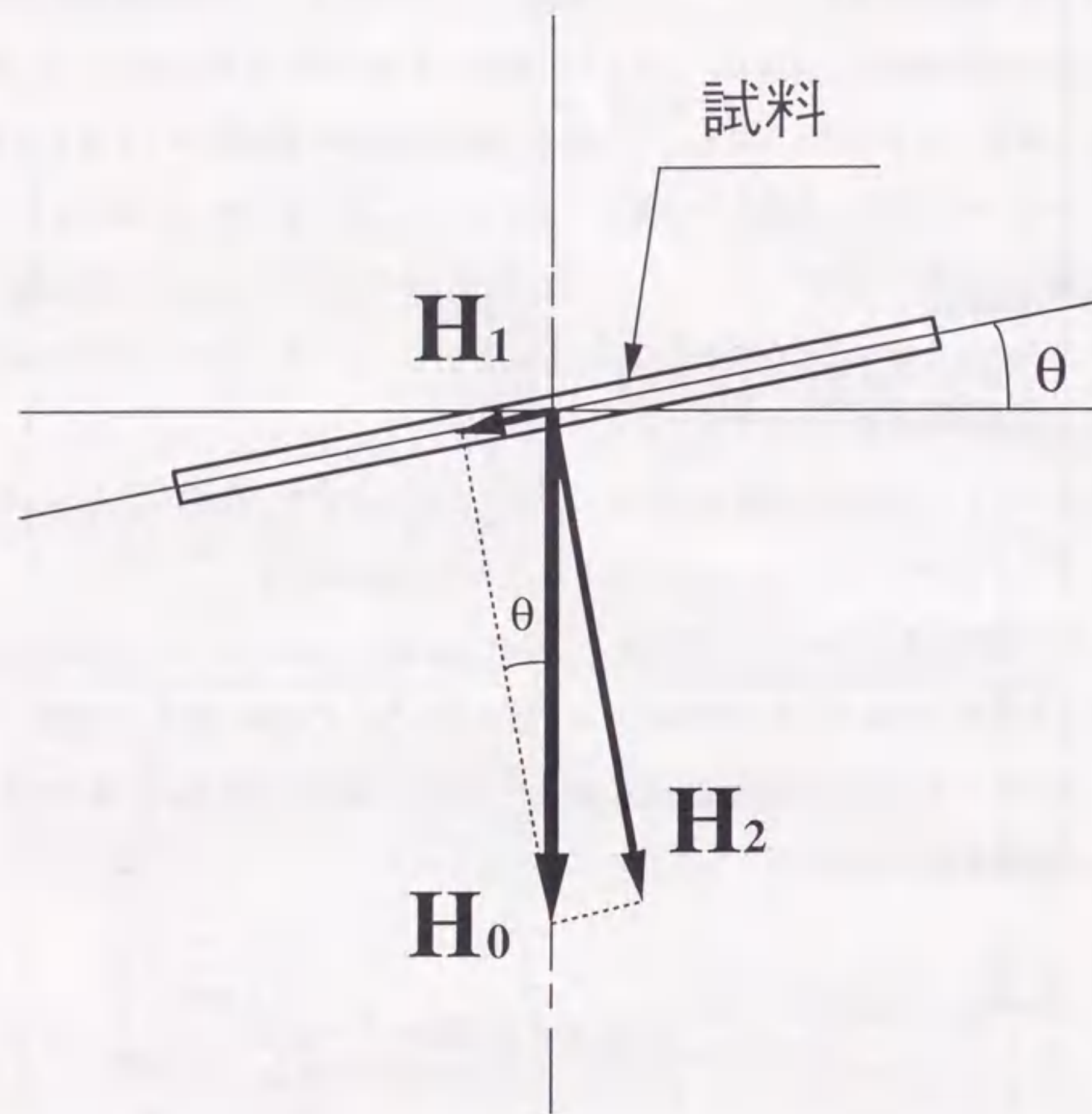


図 4 - 5
パーマロイ薄膜試料への磁場印加の方法

両方ともビデオに録画した。

このような方法によって、試料薄膜に平行な磁場の強さ H_1 は次式で与えられる。

$$H_1 = H_0 \sin \theta \quad (4 \cdot 1)$$

ここに H_0 は対物レンズによって試料位置に作られる鉛直方向の磁場であり、 θ は試料傾斜角である。 H_0 はガウスマーターで測定し、レンズ電流値によって磁場の強さを知ることができるように予めデータを取っておいた。本実験において H_1 は最大 4000 A/m 印加した。

図 4 - 6 (a) ~ (e) は上述の磁場印加による磁壁の動きを示す一連の電子線干渉顕微鏡像、(a) ~ (e) はそれぞれの模式図である。図 4 - 6 (a) は試料に外部磁場を印加する前の状態を示す。間隔約 $0.25 \mu\text{m}$ の干渉縞は磁力線を表している。この図では 2 つの磁壁 A と B で分けられた 3 つの磁区 I, II, III が認められる。磁壁 A と磁壁 B は試料の端の一点 P_1 から始まり、試料内部へと伸びている。2 つの磁壁のなす角度は 95° となっている。試料エッジ付近に達した磁力線はエッジに平行になるように方向転換し静磁エネルギーの増加を防止している。ここで、図 2 (b) の H_1 で表す磁場 3000 A/m を試料にかけると、磁壁 A がほとんど動かないのに対し、磁壁 B は上に移動して行った。その結果として磁区 II の面積は増加し、2 つの磁壁のなす角度は 115° に達している。これは、典型的な磁化過程の観察である。磁壁 B の移動は H_1 の試料端に垂直な成分 H_{1y} がほぼ同じ磁化方向を持つ磁区 II の面積を拡大しようとした結果である。磁壁 A がほとんど動かないのは H_1 の試料端に平行な成分 H_{1x} が磁区 I の面積減少を阻止したためと考えられる。この変化の間 P_1 は全く移動しなかったため、 P_1 はピンニングポイントであると考えられる。しかし、このような低倍率の観察では P_1 がピンニングポイントである理由となるものは特に観察されなかった。もう少し印加磁場 H_1 を強くすると、図 4 - 6 (c) のように磁壁 B はより上に移動し、磁壁のなす角度は 125° になった。ここで磁区 II 内の磁

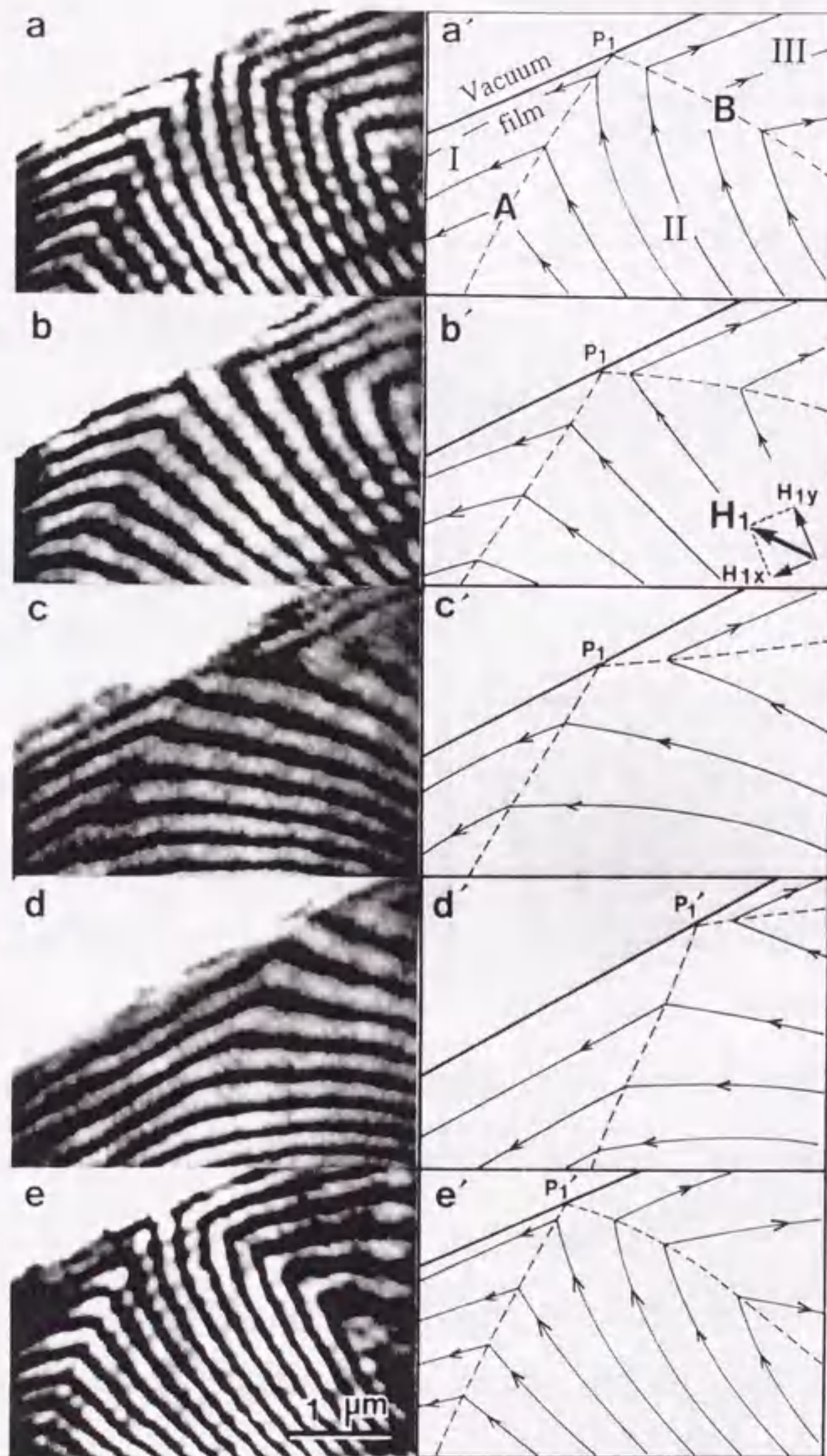


図 4-6 磁壁移動の動的観察 I

(a) $H_1=0$ A/m、(b) $H_1=3000$ A/m、(c) $H_1=4000$ A/m、
(d) $H_1=4000$ A/m、(e) $H_1=0$ A/m

化方向が H_1 とほとんど完全に平行な方向に変化したことに注意すべきである。このように、磁壁の位置だけでなく磁区内の磁化方向を知ることができるのは電子線ホログラフィの強みである。さらに H_1 を強くして行き 4000A/m に達すると、突然、磁壁 A と磁壁 B は図 4-6 (d) に示すようにその間の角度をほぼ一定に保ったまま約 $1\mu\text{m}$ 右に瞬間的に移動した (磁壁 A と磁壁 B の交点は P_1' へ移動した)。この動きは、 H_{1x} が磁区 I の面積を増加させたのだと解釈できる。印加磁場 H_1 を弱めてゆき 0 にすると、磁壁 B は下に移動し、図 4-6 (e) に示すように磁壁 A と磁壁 B がなす角度はほぼ最初の状態に戻った。これは、消磁過程の観察である。しかし、2つの磁壁の交点はもとの場所 P_1 には戻らなかった。これは残留磁化の起源を意味する現象である。図で元の位置に戻ったように見えるのは試料自体を移動させたためである。

このような2つの磁壁の移動は本実験でしばしば観察された。あるものは完全に可逆的に変化し、またあるものは H_1 を 0 に戻しても磁壁の位置は完全には最初の場所へは戻らなかった。

図 4-7 にもう少し複雑な磁区構造の観察例を示す。ここには4つの磁壁 A、B、C、D で分けられた4つの磁区 I、II、III、IV が認められる。3つの磁壁 B、C、D は点 P_3 で結合しており、そのまわりで磁力線は回転している。点 P_3 では磁力線は膜に垂直に立っていると考えられる。ここで、 H_1 で表す磁場を試料にかけると結合点は数回ステップをしながら上方に移動した。 H_1 をゼロにもどすと結合点は下方に移動した。しかし、厳密にはもとの点 P_3 よりわずかに上の位置で止った。これも、残留磁化の起源を意味する現象である。

以上記述したように、オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムにより、パーマロイ薄膜の磁壁や磁区内の磁化方向の変化が実時間で観察できた。模式図で説明されていた磁化過程、消磁過程、残留磁化の起源などの基本的な現象や性質の背景となるミクロの領域の磁気現象が明瞭に観察されるようになった。

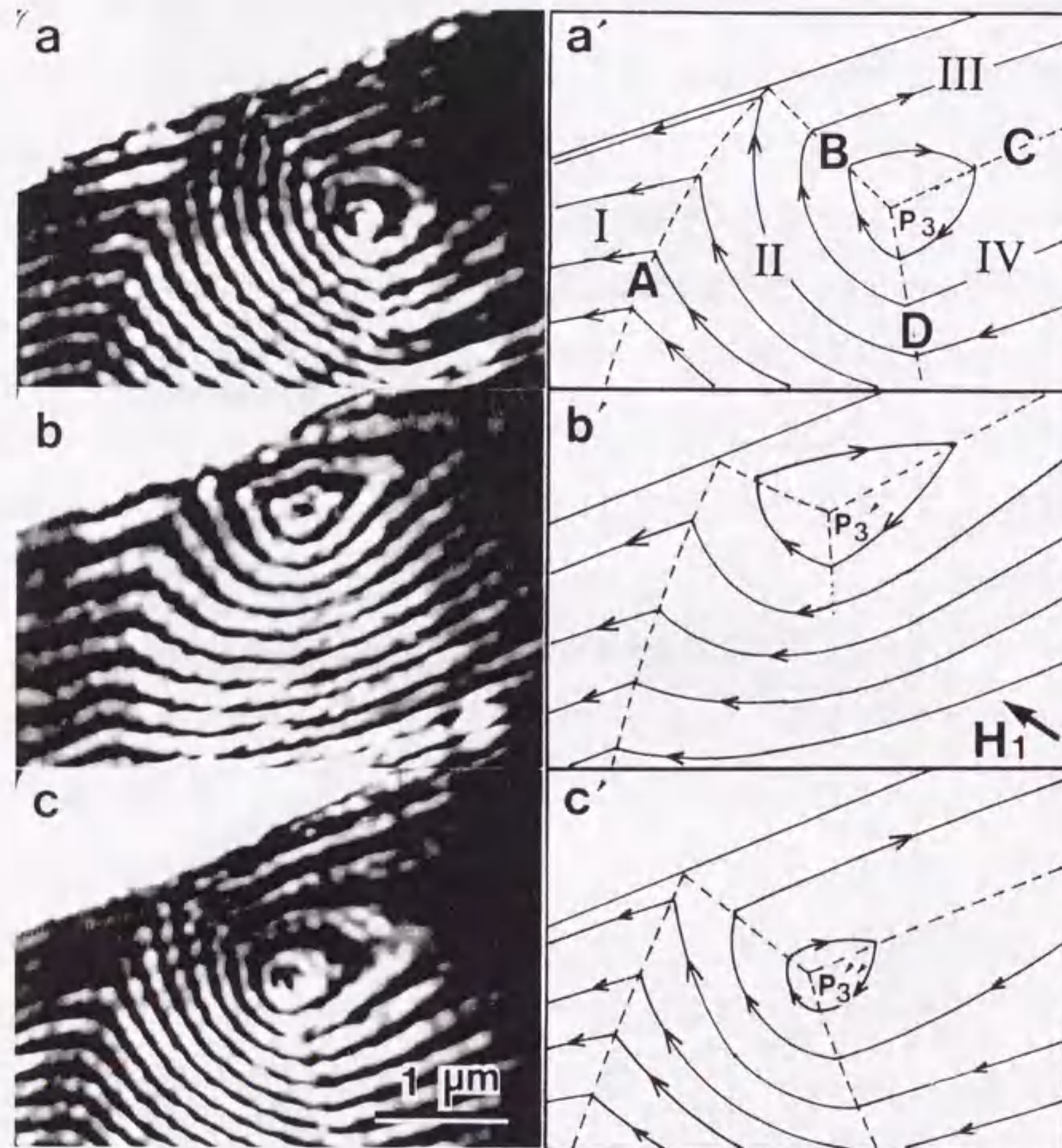


図4-7 磁壁移動の動的観察 II
 (a) $H_1=0$ A/m、(b) $H_1=1600$ A/m、(c) $H_1=0$ A/m

4.4 加熱によるバリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移の観察

一般に磁性は温度の関数である。たとえばバリウムフェライトは常温ではフェリ磁性を持つが、キュリー点と呼ばれる温度以上に加熱するとパラ磁性（常磁性）体となる。温度変化による磁性の変化を動的観察することは磁性体研究において1つの重要な実験技術であると考えられる。そこで、本研究においてはバリウムフェライト単磁区粒子を電子顕微鏡内で加熱し、キュリー点（ 450°C ）付近で磁力線の様子に変化する様子を長時間観察した。

まず、第3章で記述したバリウムフェライト単磁区粒子の観察の時と同様に対物レンズを切り、カーボン膜にバリウムフェライト粒子を付着させた試料を抵抗加熱ホルダーにセットした。このホルダーを電子顕微鏡に挿入し、パーマロイの磁壁移動観察の時と同様にオンラインリアルタイムシステムを利用して試料を1分間に50度程度の速度で加熱しながらその場観察を行った。試料ホルダーの加熱ヒーターに完全に整流されていない電流を流すと、そこから発生する磁場の変動のために電子顕微鏡像に何の影響もなくとも干渉縞のコントラストが著しく低下した。このため、加熱用電源には蓄電池を使用した。

図4-8はバリウムフェライト粒子を加熱した時の粒子周辺の磁力線変化を示したものである。図4-8(a)は室温での状態を示す。粒子周辺に単磁区状態を示す磁力線が6本見える。観察しながら試料を加熱すると磁化の熱擾乱のために磁化が弱まり、磁力線の本数が減少してゆく。図4-8(b)では磁力線は4本になっている。さらに加熱してキュリー点以上になると磁化はゼロになり、図4-8(c)のように粒子外形だけが見えている。これは、フェリ磁性-パラ磁性転移の初めての観察である。この状態から試料を冷却して行くと図4-8(d)のように再び最初のように磁化された。この実験では磁化方向の揺らぎや磁化反転などは観察されなかった。

図4-9にはもう1つの加熱実験を示す。図4-8で示した実験と同様に温度上昇とともに磁化が弱まりパラ磁性に転移したが、その後試料温度を下げた時最初の方とは

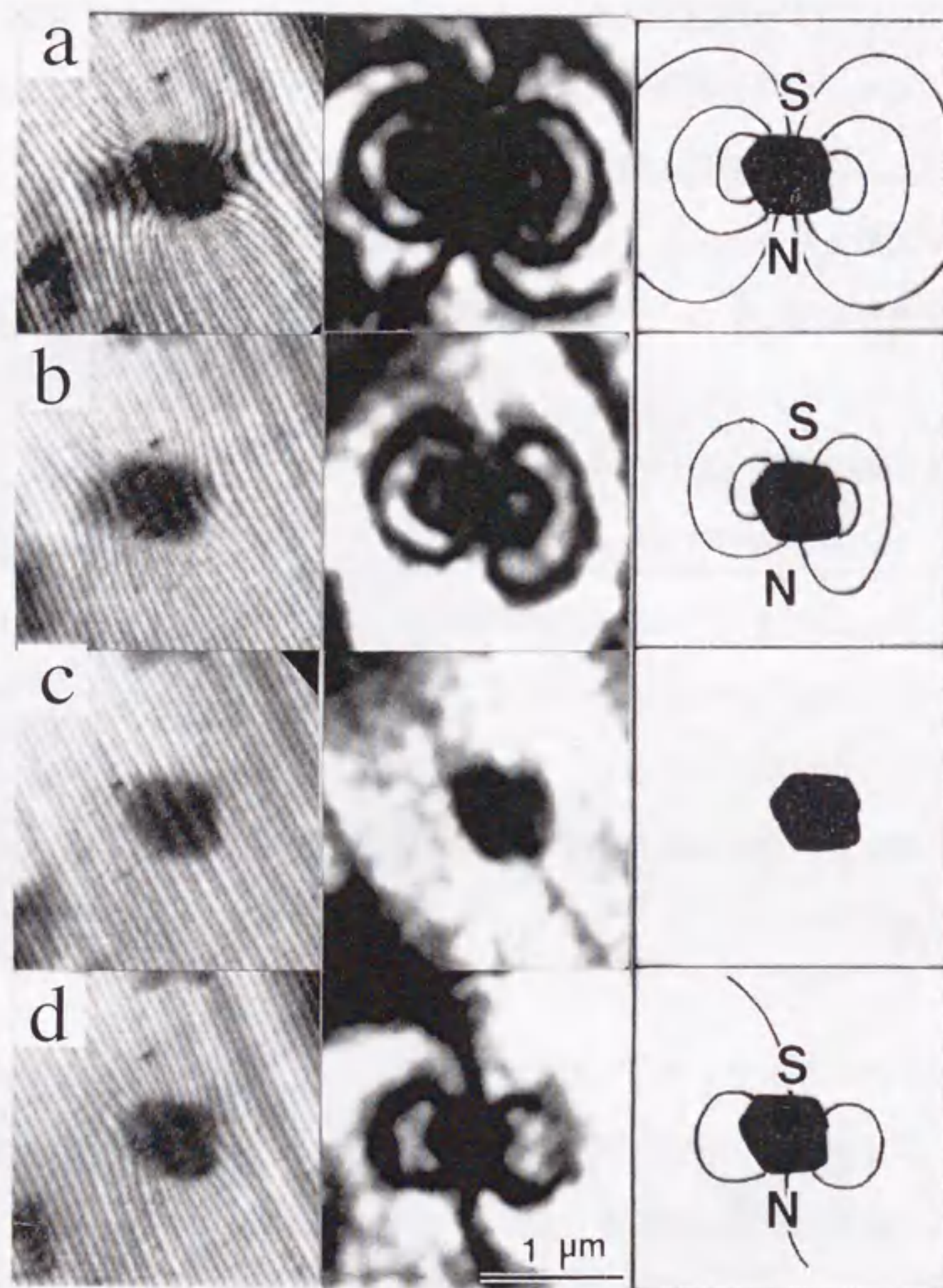


図4-8
 バリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移 I
 (a) 室温、(b) 420° C、(c) 570° C、(d) 450° C

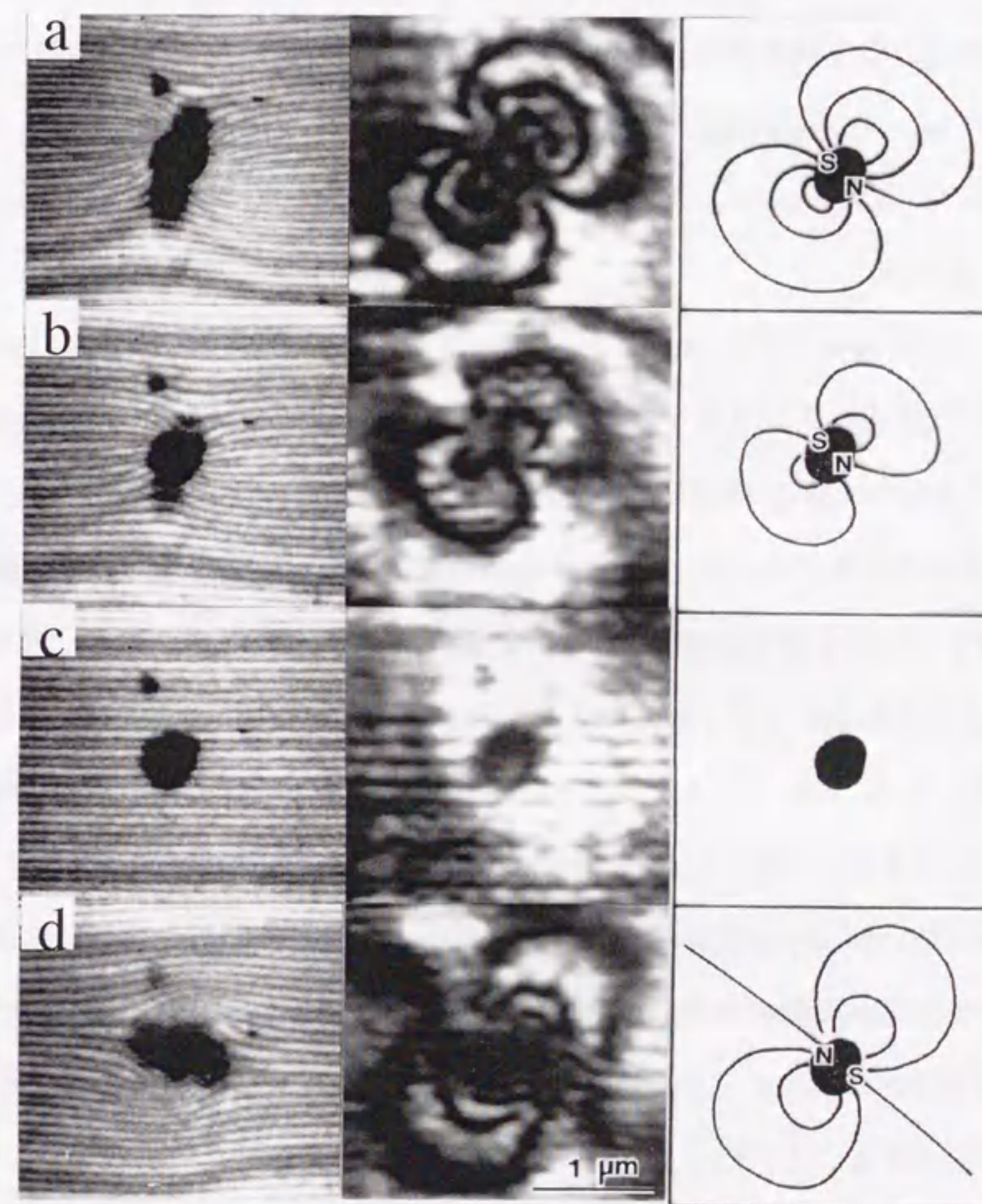


図4-9
 バリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移 II
 (a) 室温、(b) 370° C、(c) 550° C、(d) 340° C

逆方向に磁化された。一般に電子顕微鏡の対物レンズを0にしても、レンズのヒステリシスによって試料位置に弱い磁場が残留している。キュリー点以上に加熱された粒子の温度が下がり再びフェリ磁性となる時、この残留磁場の方向に磁化されたと考えられる。このような実験を数個の単磁区粒子に対して行った結果、最初の磁化方向に関わらず、常にレンズの残留磁場の方向に再磁化されることがわかった。

4.5 結 言

本章では新規にオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムを作製し、このシステムを用いて磁性体の動的観察を行ったことを述べた。要点は以下のとおりである。

- (1) ツイストネマティック液晶素子の印加電圧と位相変調特性の関係を測定し、この素子が空間位相変調素子として十分使用できるものであることを明らかにした。
- (2) 上記液晶素子を用いてオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムを作製した。このシステムでは電子線ホログラフィ顕微鏡で撮影されるホログラムはTVカメラで撮影し、マッハツェンダー干渉計の中に置いた液晶素子上に表示した。それによって実時間で干渉顕微鏡像を形成し、この像はCCDカメラで撮影して電子顕微鏡の横に置いたモニターに映し出した。このシステムによって、実験者はホログラムと干渉顕微鏡像の両方を観察しながら電子顕微鏡を操作することができるようになった。
- (3) オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムにより、パーマロイ薄膜の磁壁や磁区内の磁化方向の変化を実時間で観察した。今まで模式図で説明されていた磁化過程、消磁過程、残留磁化の起源などの基本的な現象が明瞭に観察された。
- (4) バリウムフェライト単磁区粒子を電子顕微鏡内で加熱し、キュリー点付近で磁力線の様子が変化する様子を実時間観察した。この実験でバリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移が初めて観察された。

参 考 文 献

- 1) たとえば、S. Iijima and T. Ichihashi, Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 616.
- 2) A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii and K. Mihama, Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 1430.
- 3) A. Tonomura, T. Matsuda, H. Tanabe, N. Osakabe, J. Endo, A. Fukuhara, K. Shinagawa and H. Fujiwara, Phys. Rev. B 25 (1982) 6799.
- 4) N. Osakabe, K. Yoshida, Y. Horiuchi, T. Matsuda, H. Tanabe, T. Okuwaki, J. Endo, H. Fujiwara and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 42 (1983) 746.
- 5) T. Hirayama, Q. Ru, T. Tanji and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 63 (1993) 418.
- 6) T. Hirayama, J. Chen, Q. Ru, K. Ishizuka, T. Tanji and A. Tonomura, J. Electron Microsc. 43 (1994) 190.
- 7) T. Hirayama, N. Osakabe, Q. Ru, T. Tanji and A. Tonomura, Jpn. J. Appl. Phys. 34 (1995) 3294.
- 8) Q. Ru, J. Endo, T. Tanji and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 59 (1991) 2372.
- 9) Q. Ru, T. Hirayama, J. Endo and A. Tonomura, Jpn. J. Appl. Phys. 31 (1992) 1919.
- 10) Q. Ru, T. Matsuda, A. Fukuhara and A. Tonomura, J. Opt. Soc. Am. A 8 (1991) 1739.
- 11) W. D. Rau, H. Lichte, E. Völkl and U. Weierstall, J. Comput. Assist. Microsc. 3 (1991) 51.
- 12) T. Matsuda, A. Fukuhara, T. Yoshida, S. Hasegawa, A. Tonomura and Q. Ru, Phys. Rev. Lett. 66 (1991) 457.
- 13) N. Hashimoto, S. Morokawa and K. Kitamura, Proc. SPIE, 5 (1991) 291.
- 14) J. Amako and T. Sonehara, Appl. Opt. 30 (1991) 4622.
- 15) K. Ishizuka, T. Tanji, A. Tonomura, T. Ohno and Y. Murayama, Ultramicroscopy 53 (1994) 361.
- 16) J. Chen, T. Hirayama, K. Ishizuka, A. Tonomura, Opt. Rev. 1 (1994) 304.

- 1 7) J. Chen, T. Hirayama, T. Tanji, K. Ishizuka and A. Tonomura, Opt. Commun. 110 (1994) 33.
- 1 8) J. Chen, T. Hirayama, G. Lai, T. Tanji, K. Ishizuka and A. Tonomura, Opt. Lett. 18 (1993) 1887.
- 1 9) T. Hirayama, J. Chen, T. Tanji and A. Tonomura, Ultramicroscopy, 54 (1994) 9.

第5章 電場・磁場の3次元再構成

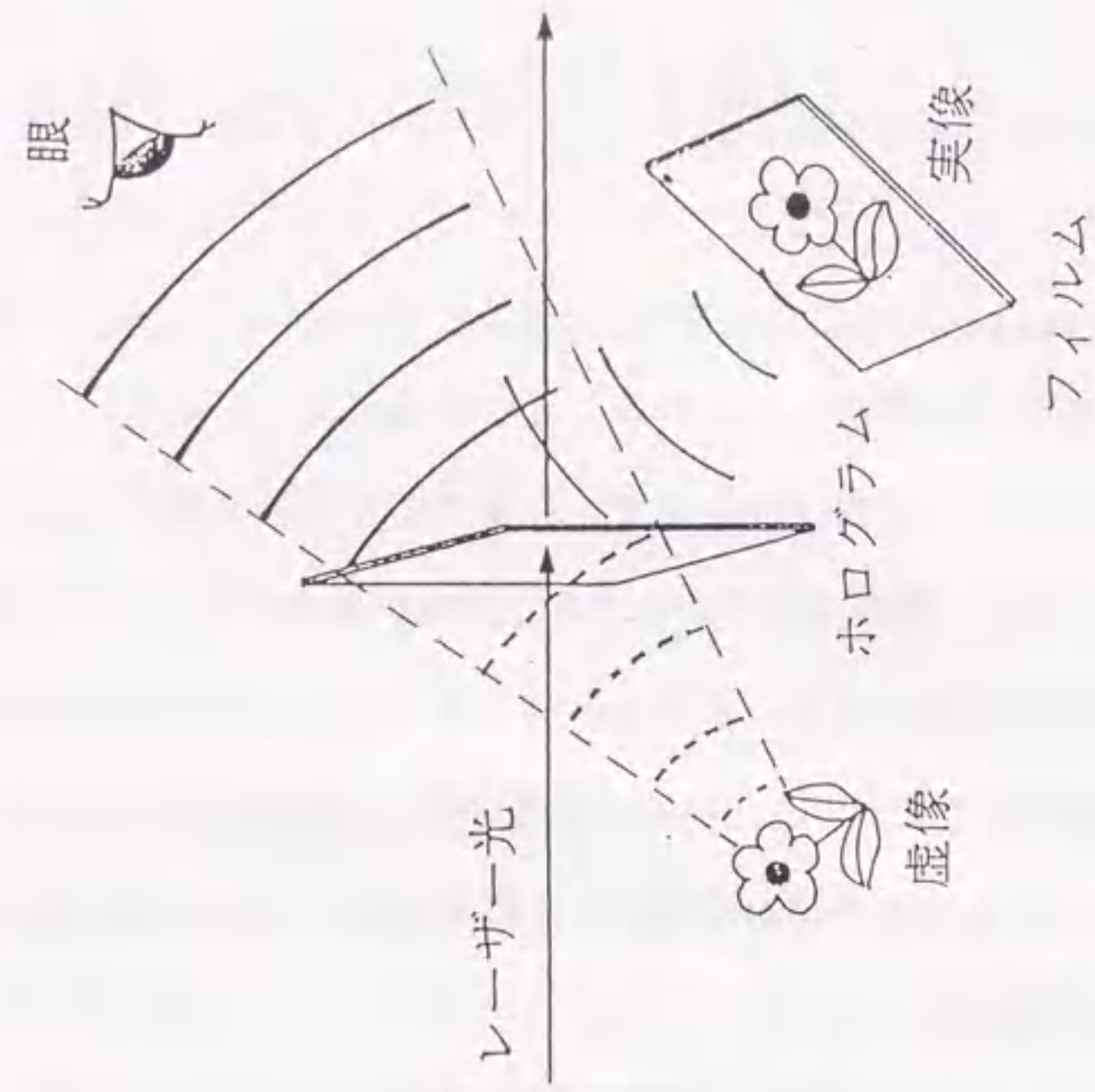
(電子線ホログラフィCT)

5.1 緒言

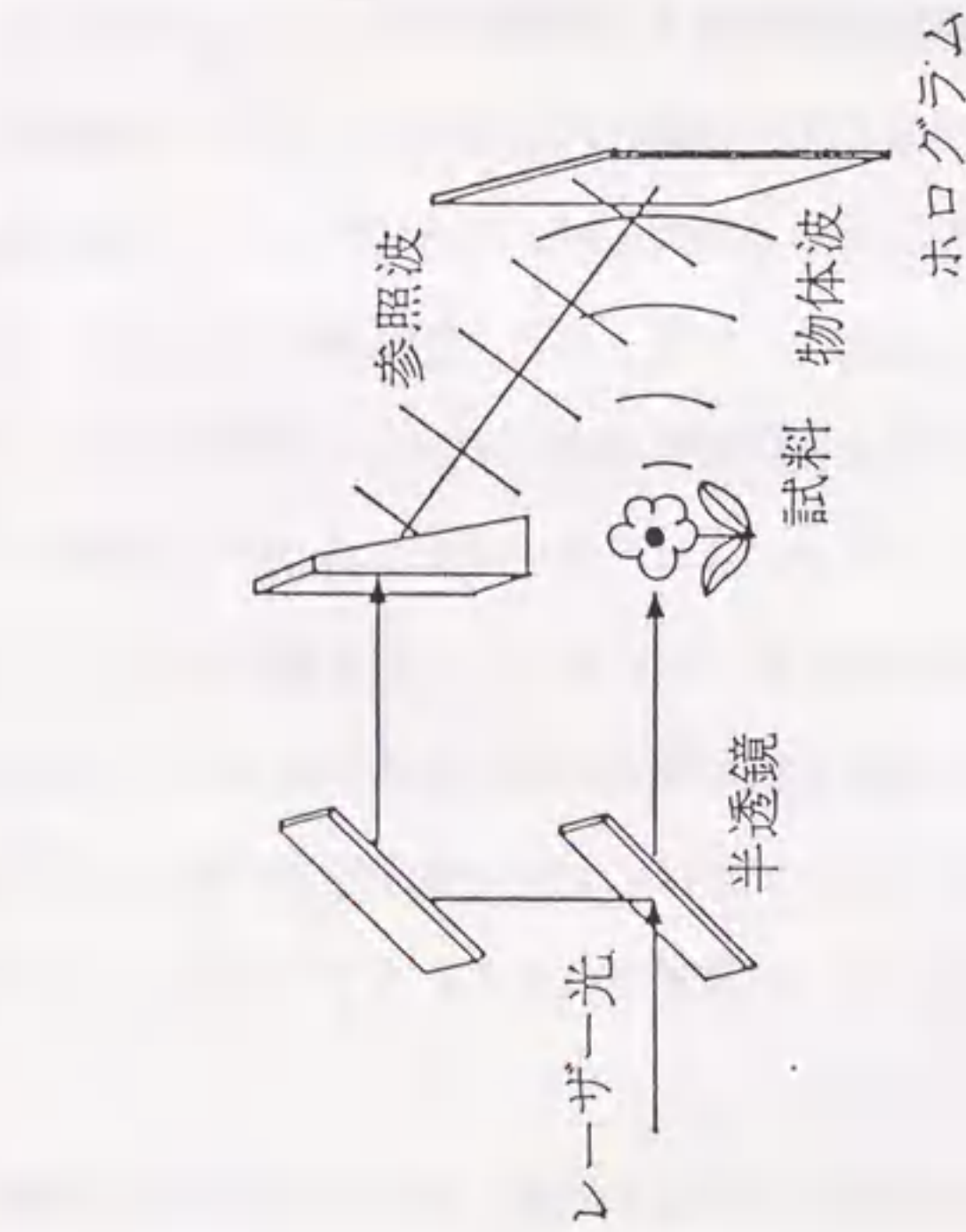
光のホログラフィでは見事な立体像が再生されることが常識になっており、この3次元像形成技術は科学的分野のみならず芸術やレジャーにまで広く利用されている。これに対して電子線ホログラフィでは一枚のホログラムから立体像が再生されたことはない。

まず、光ホログラフィと電子線ホログラフィの基本的な違いについて結像原理に立ち返って考察し、1枚の電子線ホログラムから立体像が再生されない理由を明らかにする。ホログラフィは光でも電子線でもホログラムを撮影しそれを再生する2段階の結像である。再生した時、「立体像が見える」というのは左右の目で少し違った再生像を見ている時の人間の脳の認識作用である。再生された虚像が立体的に見えるためには図5-1に示すように像と左右の目を結ぶ直線のなす角度 θ が数度以上になる必要がある。光で物体を見るということは、物体の表面で反射散乱された光によって2次元表面の形状を観察認識することであり、一般に散乱角は十分大きい。これに対し、電子顕微鏡で試料を観察するときの電子の散乱には①結晶による電子回折、②試料の外形散乱、③空間磁場による電子線の偏向があるが、①による回折角はせいぜい 1° 程度であり、②及び③による散乱角度はそれよりはるかに小さい。よって像が再生された時も虚像からの光の発散角度は小さく、立体感のある像は得られない。従って、電子線ホログラフィでは立体情報がホログラムに記録されずに単なる投影像が記録されるに留まっている。このように光ホログラフィと電子線ホログラフィの差は光回折と電子回折の物理的な差に起因するものであり、従来の電子線ホログラムの撮影や再生の仕方を少々改善しても克服できるものではない。

しかしながら、微小物体の3次元的な形態や構造を観察したり、微小領域の磁場の3次元的状态を求めたりすることが出来れば、材料科学、デバイス工学、医学などに対し



(a) ホログラムの撮影



(b) 像再生

図5-1 ホログラフィで立体像が再生される条件
(Tanji and Yada, 1990)

きわめて価値のある情報を提供することができる。このため、電子線ホログラフィによる立体観察は開発価値の高い技術であり、その実現が待ち望まれている。現在の段階でその方法として2つ挙げることができる。1つは100V以下の超低加速電子を利用したホログラフィ¹⁻⁴⁾である。電子線の加速電圧が非常に低くなれば試料による電子の散乱角度が大きくなり、立体情報を1枚のホログラムに記録できる可能性がある。しかし、この方法は観察対象が軽元素により構成されるきわめて薄い物に限定される。また、磁場による電子線の偏向角は加速電圧が低くなくても変化しないので、磁場観察においては低加速のメリットは無い。もう1つの方法は、従来の加速電圧200kV程度の off-axis ホログラフィにX線医療分野で発達してきた Computed Tomography (CT) を導入し、3次元位相計測法を確立することである。本研究ではすでに進めてきた電子線ホログラフィの技術を十分活用でき、早期実現の可能性の高い後者を進めた。本章ではCT技術をどのように位相計測に導入したか、またベクトル場の再生のためにどのように新しいアルゴリズムを構築していったかについて述べる。さらにこれらの手法を用いて微粒子の形状や磁性体微粒子の持つ磁場を3次元再構成した例を示す。

5.2 CTの手法と電磁場再構成への応用

一般に、X線や電子線が物体を透過するときその物体のある物理量の入射ビームに沿った線積分を投影と呼ぶ。投影像においては観察対象とする物体の存在は確認できるが、その位置や形状に関する正確な情報を得ることはできない。しかし、投影から3次元物理量の分布を求め、これを画像化する手法があり、この手法を投影からの画像再構成または Tomography と呼んでいる。特にこのような画像再構成を計算機によって行うものを Computed Tomography (CT) という。現在のCTによってなされていることを一言で表せば、「3次元空間に分布するスカラーポテンシャルの投影データをあらゆる方向から取り、そのデータからもとの3次元空間におけるそのポテンシャルの分布を求める」ことである。このことから、スカラーポテンシャルの3次元再構成には従来のCTの手

法が利用できるが、ベクトルポテンシャルの3次元再構成には新しいアルゴリズムが必要であることが推測できる。

3次元物体のあらゆる方向からの投影像からもとの物体の構造を再構成できることは1917年Radonにより最初に示された^{5, 6)}。その後、いろいろな分野への応用が考えられたが、1973年あらゆる方向からのX線投影データから人体の断面を画像化する装置として実用化された^{7, 8)}。この手法と装置は医療分野で革命的な貢献をし、今日では医療診断になくてはならないものになっている。計算手法に関してはその後いくつかの方法が開発された。3次元再構成のアルゴリズムには大きくわけて次の2つの手法がある。一つは投影と逆投影を繰り返すことにより最初に得られた投影データを満足する3次元分布を算出する逐次近似法⁹⁾である。もう一つはラドンの逆変換式に基づく逆投影法¹⁰⁾である。逐次近似法はCTの開発当初用いたアルゴリズムであるが、コンピュータの進歩により前者のラドンの逆変換に基づく逆投影法が主流となった。しかし、投影データがすべての角度から得られない場合や再構成の対象に対する付加条件が加えられる場合などには逐次近似法に有利な面があり、現在でもしばしば用いられている。

5.3 電場の3次元再構成

5.3.1 電場再構成の理論

電子線が真空中を進む時、その経路の途中に存在する静電ポテンシャルによる電子波の位相変化 $\Delta\phi(x, y)$ は相対論効果を含めると次式で表される¹¹⁾。

$$\Delta\phi(x, y) = \frac{\pi}{\lambda E} \int_z V(x, y, z) dz \quad (5 \cdot 1)$$

ただし、 $V(x, y, z)$ 、 λ 、 E はそれぞれ電位分布、相対論効果を考慮した電子の波長、電子の加速電圧を表す。ここで、 $V(x, y, z)$ は試料の内部電位や空間中に存在する電荷によってポアソン方程式に従って形成される空間ポテンシャル分布を意味する。この式

は、位相変化 $\Delta\phi(x, y)$ が電位分布 $V(x, y, z)$ の電子線経路にそった線積分に比例することを示している。つまり、いろいろな方向からの試料の投影位相分布 $\Delta\phi(x, y)$ を求めれば通常のCTの原理によってもとの試料の3次元静電ポテンシャル分布が再構成されることを表している。

物体の異なる方向からの多くの投影から、物体の三次元分布を再構成するCTの手法にはすでに述べたように逐次近似法と逆投影法がある。電子顕微鏡で試料を観察する時には試料傾斜が最大 ± 60 度に限定されるため、本研究に於いては投影方向に本質的制約のない逐次計算法を用いた。実際には、ある1つの軸を中心にして試料を傾斜させいろいろな方向から得た2次元投影像から3次元物体を再生する。まず考え方を簡単にするために、その回転軸に垂直な2次元断面とその面に平行なある方向への1次元投影を考える。最終的に再生する3次元物体は再生された2次元断面の集合と考えることができる。この2次元断面と1次元投影データの関係を図5-2に示す。2次元断面を矩形要素 (x, y) に分割し、角度 θ での1次元直線上への投影を考える。実験的に求められる1次元位相分布 $\phi(\theta, t)$ はポテンシャル分布 $v(x, y)$ の投影であるから、次式が成立する¹²⁾。

$$\sum_x \sum_y w(\theta, t, x, y) v(x, y) = \phi(\theta, t) \quad (5 \cdot 2)$$

ここに、 $w(\theta, t, x, y)$ は直線上の位置 t における角度 θ による投影に対応するピクセル (x, y) の重み因子である。各ピクセルの重み因子は長方形の1ピクセルを透過する光線 $R(\theta, t)$ の長さとして計算する。各ピクセルのポテンシャル $v_e(x, y)$ は逆投影により次の式を用いて求める。

$$v_e(x, y) = \sum_{\theta} \sum_t \frac{w(\theta, t, x, y)}{W(\theta, t)} \phi(\theta, t) \quad (5 \cdot 3)$$

ただし、 $W(\theta, t)$ は次式で定義される関数である。

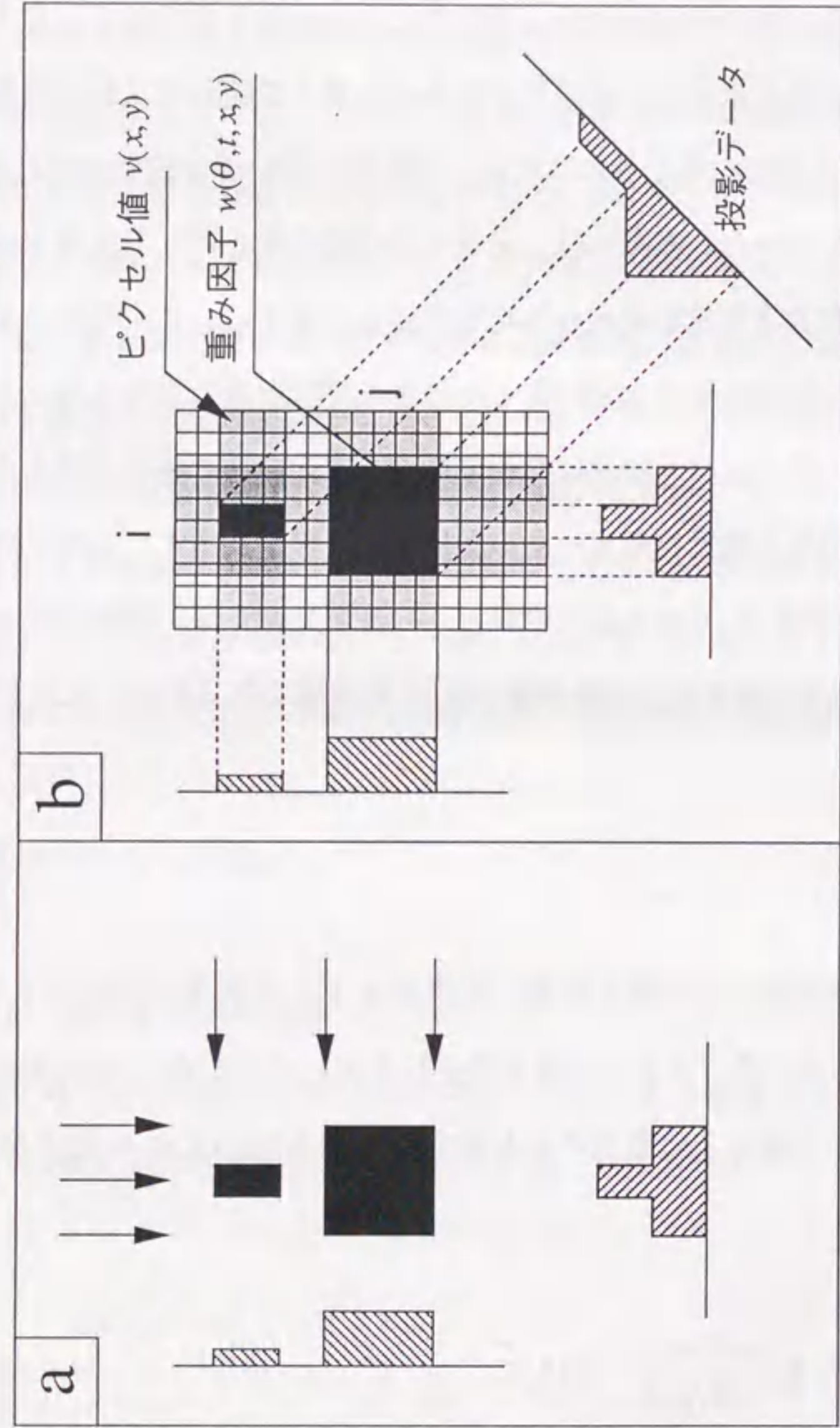


図5-2 異なる方向からの投影より逐次近似法によって物体を再構成する原理
(a) 投影、(b) 逆投影

$$W(\theta, t) = \sum_x \sum_y w^2(\theta, t, x, y). \quad (5 \cdot 4)$$

式(5・3)により見積もる $v_e(x, y)$ は、誤差を含んでいるので、逐次計算によって修正しなければならない。本研究では次のような順序で行う逐次近似計算によるポテンシャル再構成アルゴリズムを開発した。

- ① 試料物体の存在する空間に、ポテンシャルの初期見積値 $v_e(x, y)$ を与える。もし情報が全くない時にはすべてゼロとする。
- ② すべての投影方向に対し、式(5・2)に示すような投影演算子 P により物体の投影を算出する。

$$\phi_e(\theta, t) = P[v_e(x, y)]. \quad (5 \cdot 5)$$

- ③ 実験的に計測した投影 $\phi_m(\theta, t)$ と計算によって得た投影 $\phi_e(\theta, t)$ の差 $\phi_d(\theta, t)$ を求める。

$$\phi_d(\theta, t) = \phi_m(\theta, t) - \phi_e(\theta, t) \quad (5 \cdot 6)$$

- ④ 式(5・3)に示すような逆投影演算子 B により投影差 ϕ_d を逆投影し、ポテンシャル差 $v_d(x, y)$ を求める。

$$v_d(x, y) = B[\phi_d(\theta, t)] \quad (5 \cdot 7)$$

- ⑤ ポテンシャル差 $v_d(x, y)$ を用いて、初期設定したポテンシャル $v_e(x, y)$ を補正する。

$$v'_e(x, y) = v_e(x, y) + v_d(x, y) \quad (5 \cdot 8)$$

この時点でいろいろな物理的条件、たとえば試料の内部ポテンシャルの符号が正であることなどを含めることができる。この条件の演算子を C とし、この条件によ

て修正されたポテンシャル分布 $v_e(x, y)$ を

$$v_e(x, y) = C[v'_e(x, y)] \quad (5 \cdot 9)$$

と表す。

- ⑥ ステップ②に戻り、ステップ⑤で新しく得られた $v_e(x, y)$ を用いて再び計算を始める。この手順で計算を繰り返し、投影差 ϕ_i が最初に定められたある基準以下になるまで続ける。投影差 ϕ_i が基準以下になった時の $v_e(x, y)$ を再構成されたポテンシャル分布とする。

5.3.2 微粒子形状再構成の実験方法

(試料傾斜)

試料として粒径約 $0.1\mu\text{m}$ のラテックス微粒子を選んだ。ラテックス微粒子は球形であることが分かっているので、本方法の有効性を証明するには適している試料である。ラテックスは高分子の一種でありアモルファスとみなせる材料である。一般に試料の内部電位は正であることが知られており、電子が試料を透過する時にはこの正の電位によって位相変化を受ける。この意味において、電子線による投影位相分布を用いて粒子の3次元再構成を行うことは静電場の3次元再構成を行うことになる。

3次元再構成を行うためには、いろいろな方向から投影データを得なければならない。このために、試料を電子顕微鏡内で傾斜させなければならない。理想的には $\pm 90^\circ$ 傾斜させることが望ましいが、試料傾斜機構の構造的な制約により普通 $\pm 60^\circ$ が限界である。本実験では試料を 5° 刻みに $\pm 60^\circ$ 傾斜させ合計 25 枚のホログラムを撮影した。

(投影位相分布の計測)

撮影したホログラムより、第2章で記述したフーリエ変換によるデジタル再生法を用いて投影位相分布を求めた。このような位相計測において位相の値は相対的意味だけを持つ。相対的であるというのは以下の二つのことを意味する。一つは初期位相が不定である。フーリエ変換による位相解析では干渉縞を取り込む位置、つまり電子線パイプの位置によって初期位相が変わる。この初期位相は試料に対して物理的意味を持っ

ていない。意味のあるのは相対位相だけである。もう一つは電子線ホログラフィーのキャリア干渉縞の影響によるものである。キャリア干渉縞の空間周波数は情報の抽出できる周波数幅を決める。位相分布を求める時、第2章で記述したようにサイドバンドを抽出してセンターに移動させるという操作によってキャリアを除去するのであるが、この移動量を正確に決定することがキャリアを完全に除去することに相当する。移動量が正確でないと得られた位相分布に本来はないはずの傾きが生じてしまう。以上の不確定要素を排除し、試料による絶対位相量を測るために、試料周辺の何もない部分の位相が平坦でありその値がゼロになるように初期位相の決定とキャリアの除去を行った。

(位相の連続化)

位相値は $-\pi$ と π の間で変化する主値として得られるために、位相変化が 2π 以上である時は、 $-\pi$ と π のつなぎ目で位相の不連続が生じる。この不連続を避け連続的な位相分布を得るために、隣り合う2つの画素の位相差は π 以下であるという仮定を導入し位相を連続化した。

(投影データの位置合わせ)

電子顕微鏡では試料を傾斜させると多少試料が移動する。このため試料微動装置を用いて試料を平行移動させ、もとの位置に戻してホログラムを撮影するという手順を繰り返す。しかし、厳密にはもとの位置とはわずかにずれがある。この問題を解決するために、試料のポテンシャルの重心を基準にした。重心は一点であるから、重心の位置が一致するようにすべての位相分布の位置合わせをした。

以上のような処理を経て、物体(内部ポテンシャル分布)の投影と対応する位相分布を25枚得た後、それらを使って先述の逐次近似法で3次元再構成を行い、粒子の内部電位分布を36断面(1断面 50×50 要素)得た。こうして3次元再構成された粒子の3次元ポテンシャル分布を等高線像や鳥瞰図として表示した。

5.3.3 微粒子形状再構成の実験結果

試料として使用したラテックス微粒子のホログラムの一例(試料傾斜角度 0°)を図

5-3(a)に示す。このホログラムからフーリエ変換法で求めた物体波の位相分布を図5-3(b)に示す。この位相分布像の中には前節で論じたように現実にはあり得ない2つの要因が含まれている。1つは位相の不連続である。もう1つはバックグラウンドの位相の傾きである。図5-3(c)に連続化した位相分布を示す。図5-3(d)はさらにこのバックグラウンドの位相が平坦であると仮定して位相の傾斜成分を除去した位相分布である。

図5-3(d)の様な位相分布25枚からもとのラテックス粒子の3次元形状を再生した。図5-4(a)に傾斜角 0° の方向から観察した時の粒子の等高線図を示す。この実験では粒子は球形であることがわかっており、直感的イメージと良く合っている。図5-4(b)は傾斜角 60° の方向から見た等高線図である。図5-5(a)は物体の表面を鳥瞰図として表示したものであり3次元情報の表現の一例である。物体の形から予想されるものと一致していることが分かる。図5-5(b)は異なる方向から見た鳥瞰図である。3次元ポテンシャルが再構成されているのであるから、このように任意の方向から見たときの見え方が表示できる。また、任意方向からの投影や任意の断面を表示することも可能である。生物試料の観察への応用も期待できる。

5.4 磁場の3次元再構成

5.4.1 磁場再構成の理論

(成分ごとの再構成)

電子線が静磁場中を進むとき、電子線の経路に存在する静磁場によりうける電子波の位相変化 $\Delta\phi(x,y)$ は次式で与えられる。

$$\Delta\phi(x,y) = -\frac{e}{\hbar} \int_s \mathbf{B}(x,y,z) \cdot d\mathbf{S} \quad (5 \cdot 10)$$

ここに、 e 、 $\hbar = h/2\pi$ 、 B 、 S はそれぞれ電気素量、プランク定数、磁束密度、電子線経路に囲まれ磁束の貫く面の面積である。磁束密度はベクトル量であるから、先述のよ

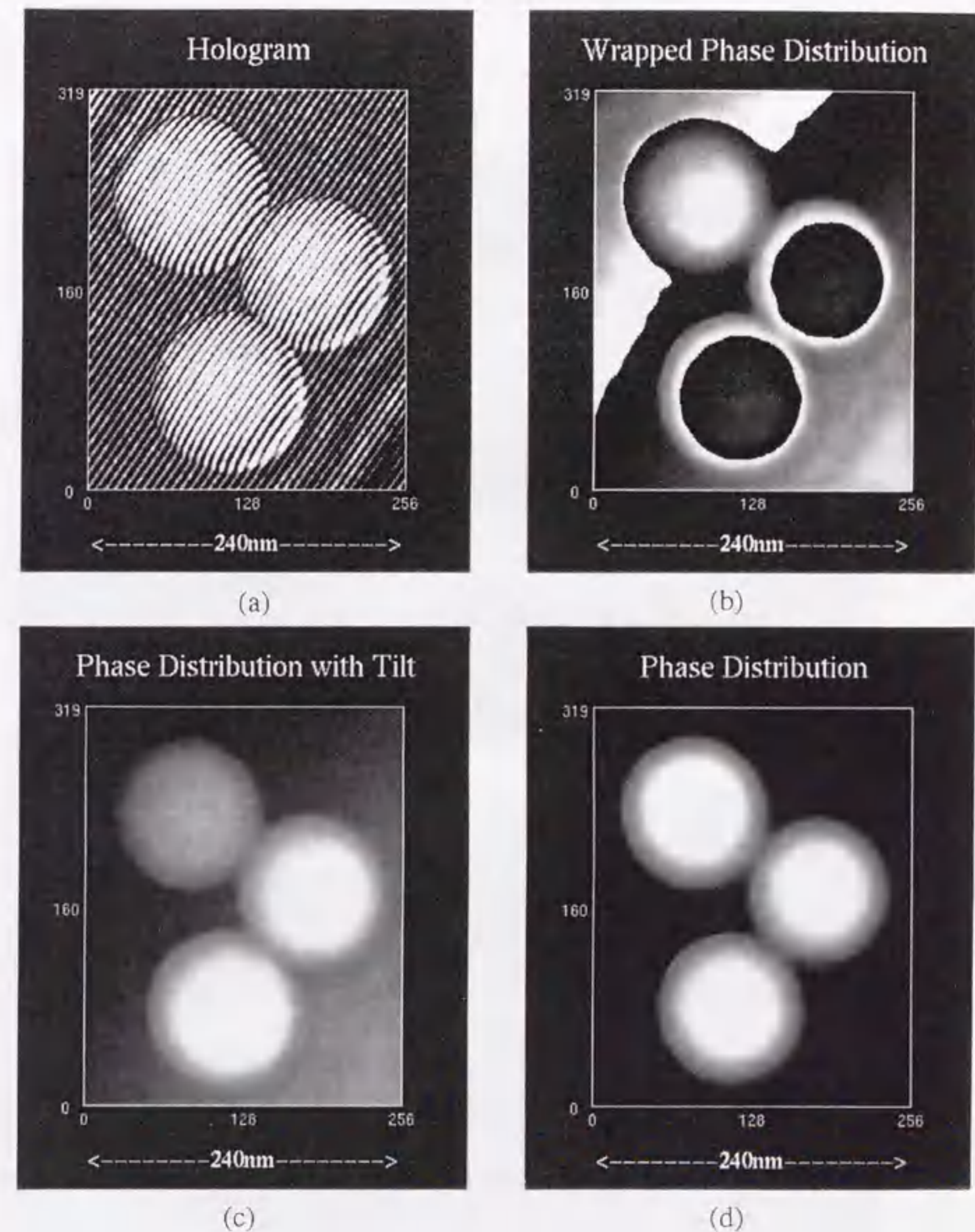
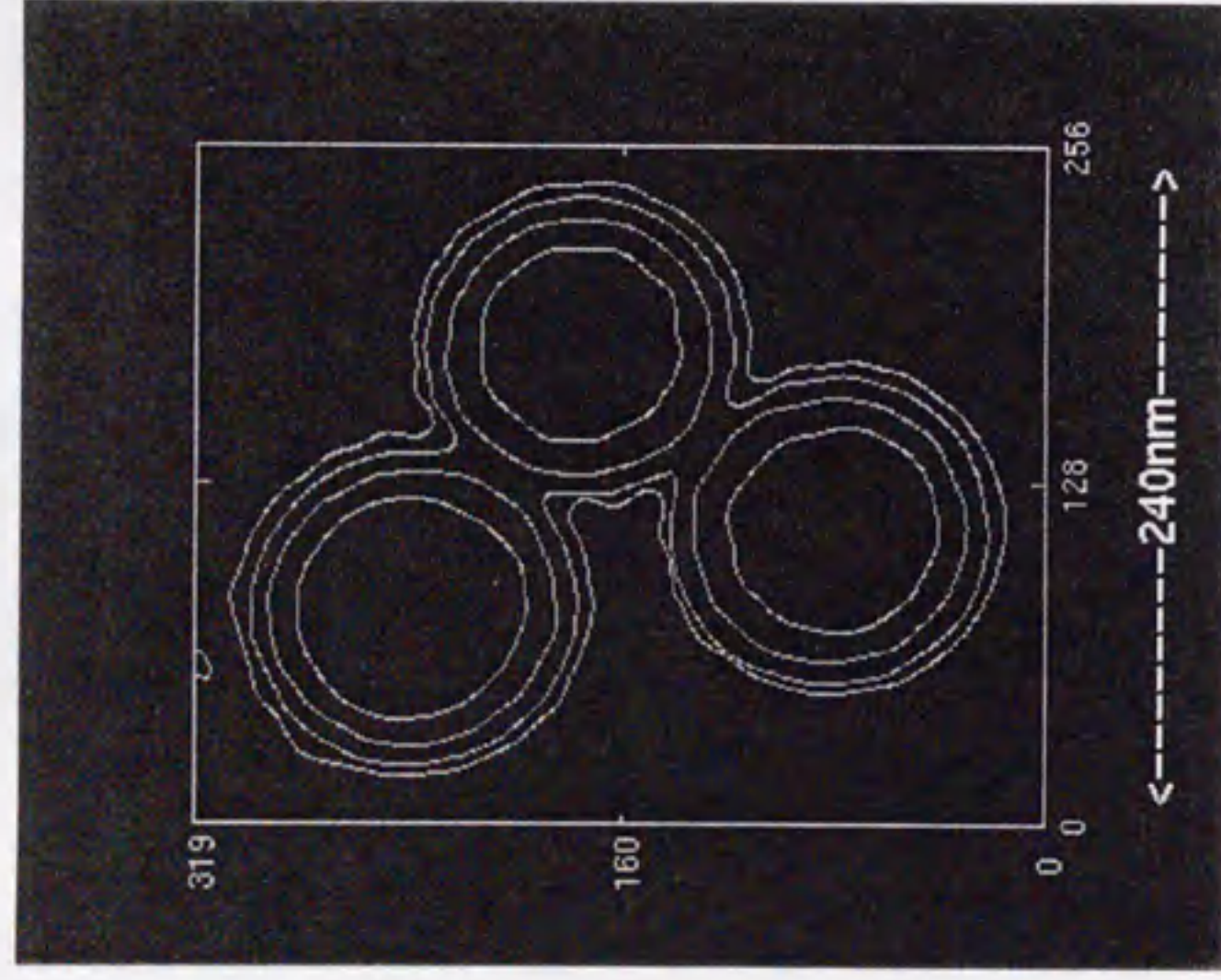
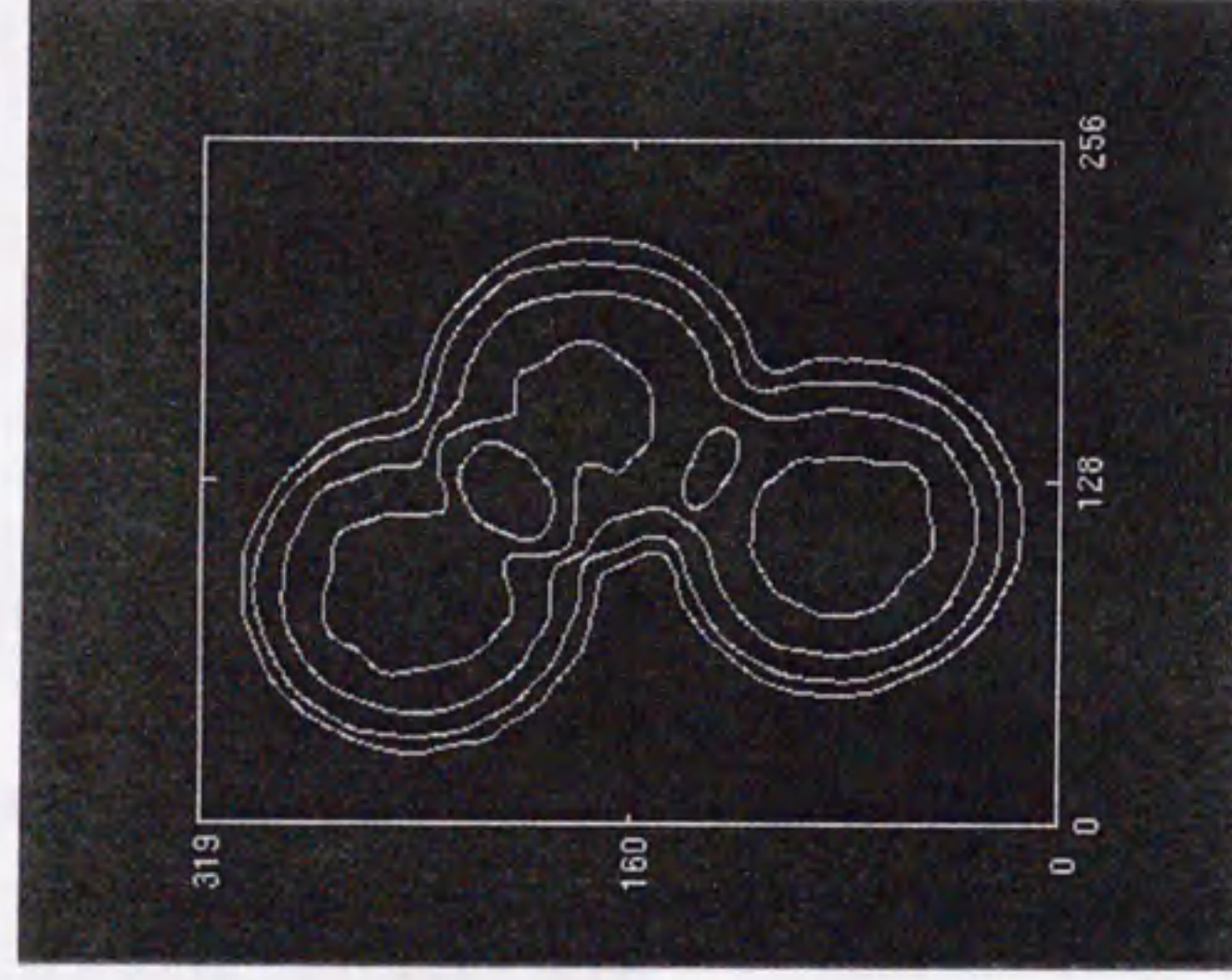


図5-3 電子線ホログラムから物体の投影を求めるための処理過程
(a) ホログラム、(b) 単純に求めた位相分布、(c) 連続化した位相分布、
(d) 連続化してバックグラウンドの傾斜成分を除去した位相分布



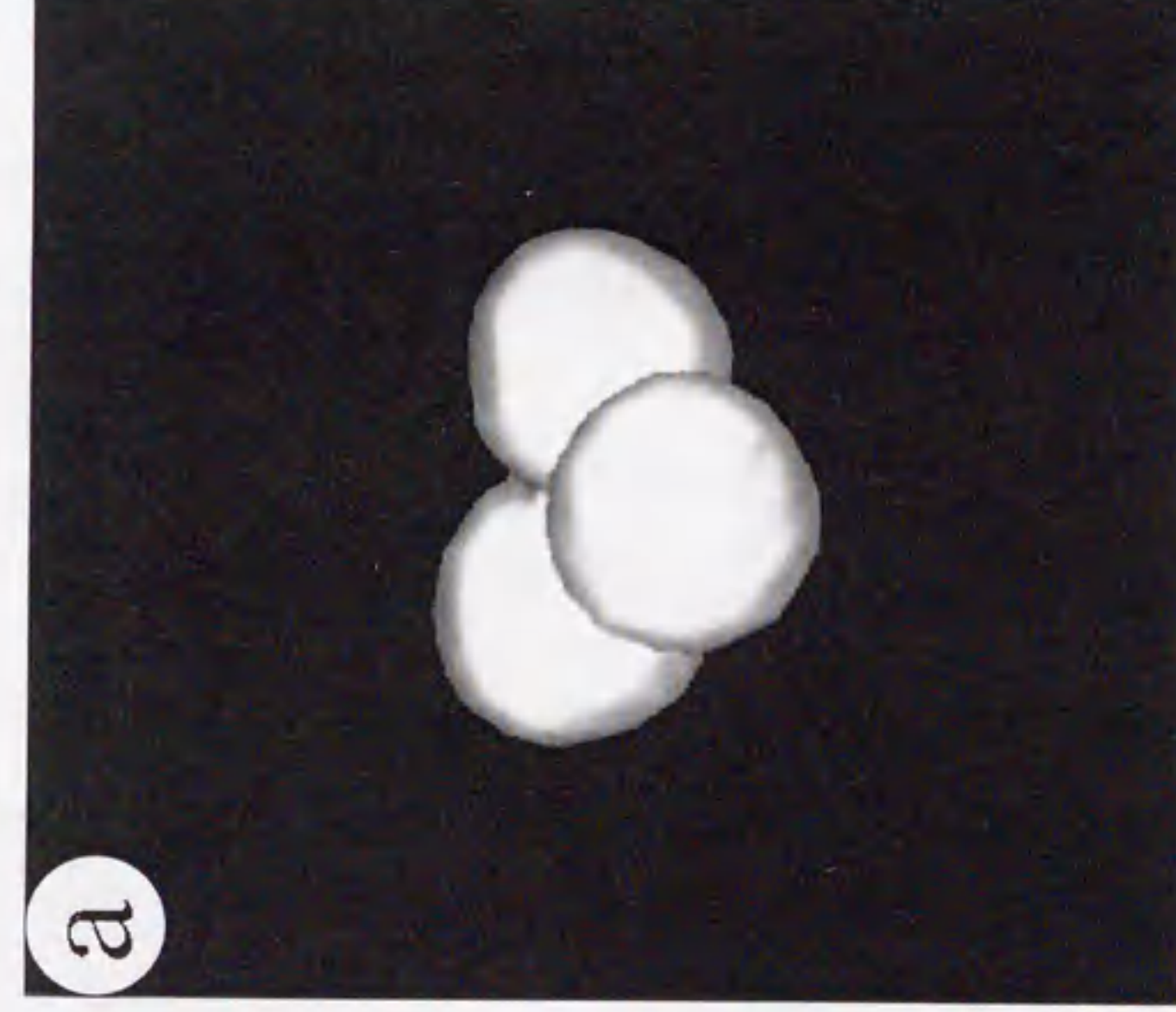
(a)



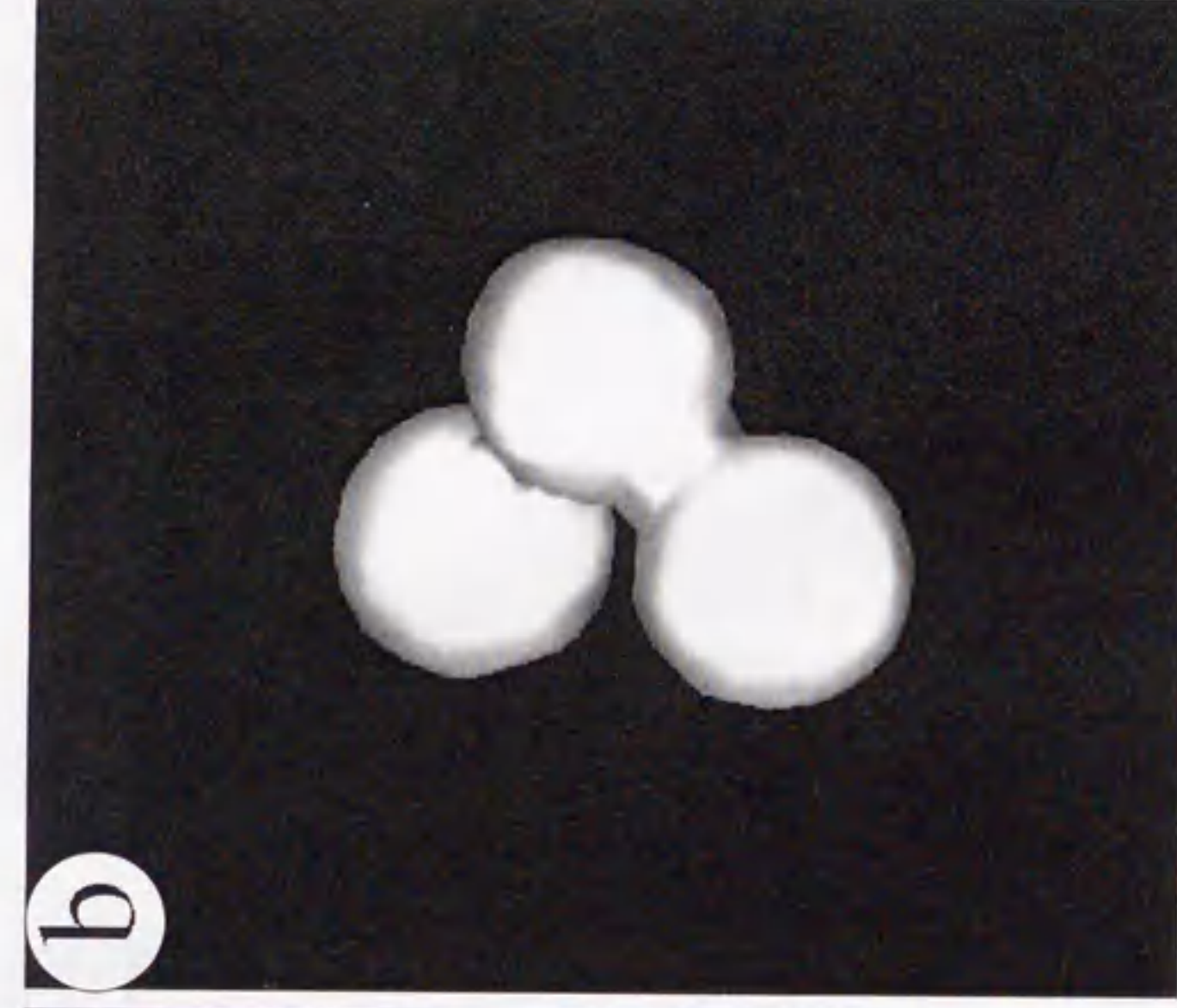
(b)

図5-4 ラテックス微粒子の投影位相の等高線図

(a) 試料傾斜角0度、(b) 試料傾斜角60度



a



b

図5-5 ラテックス微粒子の形状

(a)、(b) はいずれもホログラムを撮影した方向とは異なる
方位から観察した場合の鳥瞰図

うに従来のCTの手法では3次元再構成はできない。

図5-6に示すように式(5・10)における dS を $x-z$ 面にとると、位相を以下のように磁束密度 B の一つの成分で表すことができる¹³⁾。

$$\Delta\phi(x, y_0) = -\frac{e}{\hbar} \int_0^x d\zeta \int_{-\infty}^{\infty} B_y(\zeta, y, z) dz \quad (5 \cdot 11)$$

ここで z は電子の入射方向である。この式の両辺を x で微分すると、次式が得られる。

$$\frac{\partial}{\partial x} \Delta\phi(x, y_0) = -\frac{e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} B_y(\zeta, y, z) dz \quad (5 \cdot 12)$$

この式から、 B の y 成分の投影は2次元位相分布の x 方向に対する微分で与えられることがわかる。同様に、 x 成分の投影は次式のように2次元位相分布の y 方向に対する微分で与えられる。

$$\frac{\partial}{\partial y} \Delta\phi(x_0, y) = -\frac{e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} B_x(x, \eta, z) dz \quad (5 \cdot 13)$$

これらの式は磁束密度分布を成分ごとに再構成できることを示している。磁束密度分布を成分毎にスカラー量として考え、CTの手法を導入すればよい。このことを利用すれば磁束密度の x 成分と y 成分は独立に求められる。

さて、残りの z 成分は次のように求めることができる。マクスウェルの方程式に次に示す式がある。

$$\text{div } \mathbf{B} = 0 \quad (5 \cdot 14)$$

この性質から z 成分は x 及び y 成分から以下の式により得られる。

$$B_z(x, y, z) = -\int_{-\infty}^z \left\{ \frac{\partial}{\partial x} B_x(x, y, \zeta) + \frac{\partial}{\partial y} B_y(x, y, \zeta) \right\} d\zeta \quad (5 \cdot 15)$$

(投影切断面定理)

一般に、物体の投影はある方向の直線に沿った物体を構成する物理量の線積分値とし

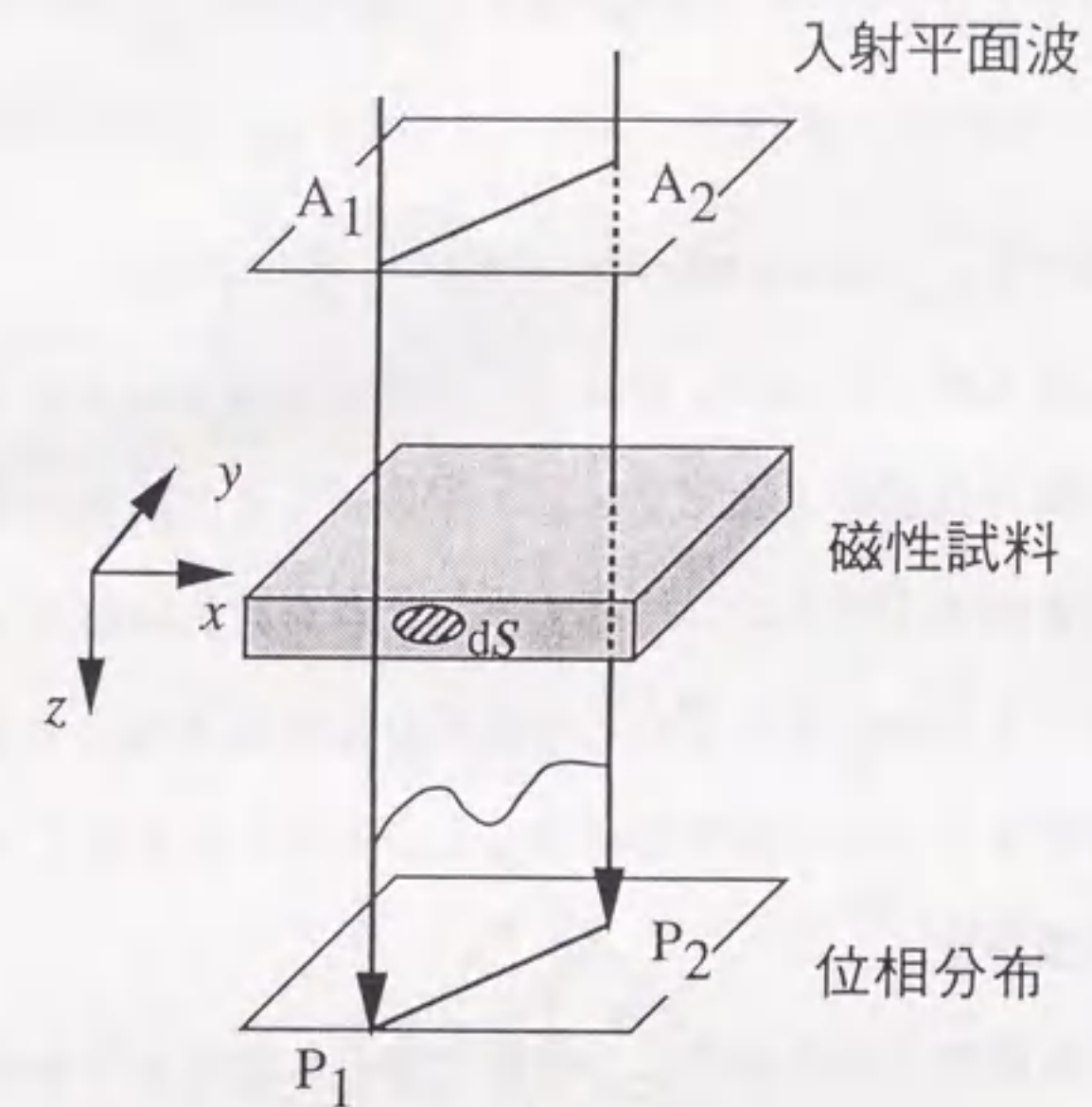


図5-6 磁場による電子波の位相変化

て定義される。図5-7に2次元断面とそのフーリエ変換面の関係を示す。2次元実空間断面の θ 方向に対して垂直な方向からの1次元直線上への投影は、ラドン変換の式、つまり線積分で与えられる。

$$P[f](r, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} f(r \cos \theta - t \sin \theta, r \sin \theta + t \cos \theta) dt \quad (5 \cdot 16)$$

この投影の r 方向に対するフーリエ変換は

$$Fr[P[f]](R, \theta) = \int \int_{-\infty}^{\infty} f(r \cos \theta - t \sin \theta, r \sin \theta + t \cos \theta) \exp(-2\pi i r R) dt dr \quad (5 \cdot 17)$$

となる。ここで、 $r = x \cos \theta + y \sin \theta$ 、 $t = -x \sin \theta + y \cos \theta$ により

$$Fr[P[f]](R, \theta) = \int \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y) \exp[-2\pi i(xR \cos \theta + yR \sin \theta)] dx dy \quad (5 \cdot 18)$$

が得られる。これは周波数 $(R \cos \theta, R \sin \theta)$ と対応する $f(x, y)$ の2次元フーリエ変換である。つまり、断面の投影の1次元フーリエ変換はもとの断面の2次元フーリエ変換面上の原点を通る同方向の1ラインに対応する。これを投影切断面定理という。すべての方向からの投影データを得られればもとの断面分布の2次元フーリエ変換が得られ、2次元フーリエ逆変換を行えば原理的にはもとの断面が再構成できる。

(フィルター補正逆投影法)

投影切断面定理から理解できるように、投影で得られるフーリエ係数は原点を通るライン上にあるため、極座標による表現が便利である。ここで逆投影は

$$B[P](x, y) = \int_0^{\pi} P(x \cos \theta + y \sin \theta, \theta) d\theta \quad (5 \cdot 19)$$

と定義する。フーリエ変換の逆変換が元の関数に戻ることから、極座標におけるフーリエ逆変換は

$$f(x, y) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} F_2[f](R \cos \theta, R \sin \theta) \exp[2\pi i R(x \cos \theta + y \sin \theta)] R dR d\theta \quad (5 \cdot 20)$$

積分範囲を変えて

$$f(x, y) = \int_0^{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F_2[f](R \cos \theta, R \sin \theta) \exp[2\pi i R(x \cos \theta + y \sin \theta)] |R| dR d\theta \quad (5 \cdot 21)$$

となる。ここで $| |$ は絶対値である。投影切断面定理を用いて、2次元フーリエ変換の

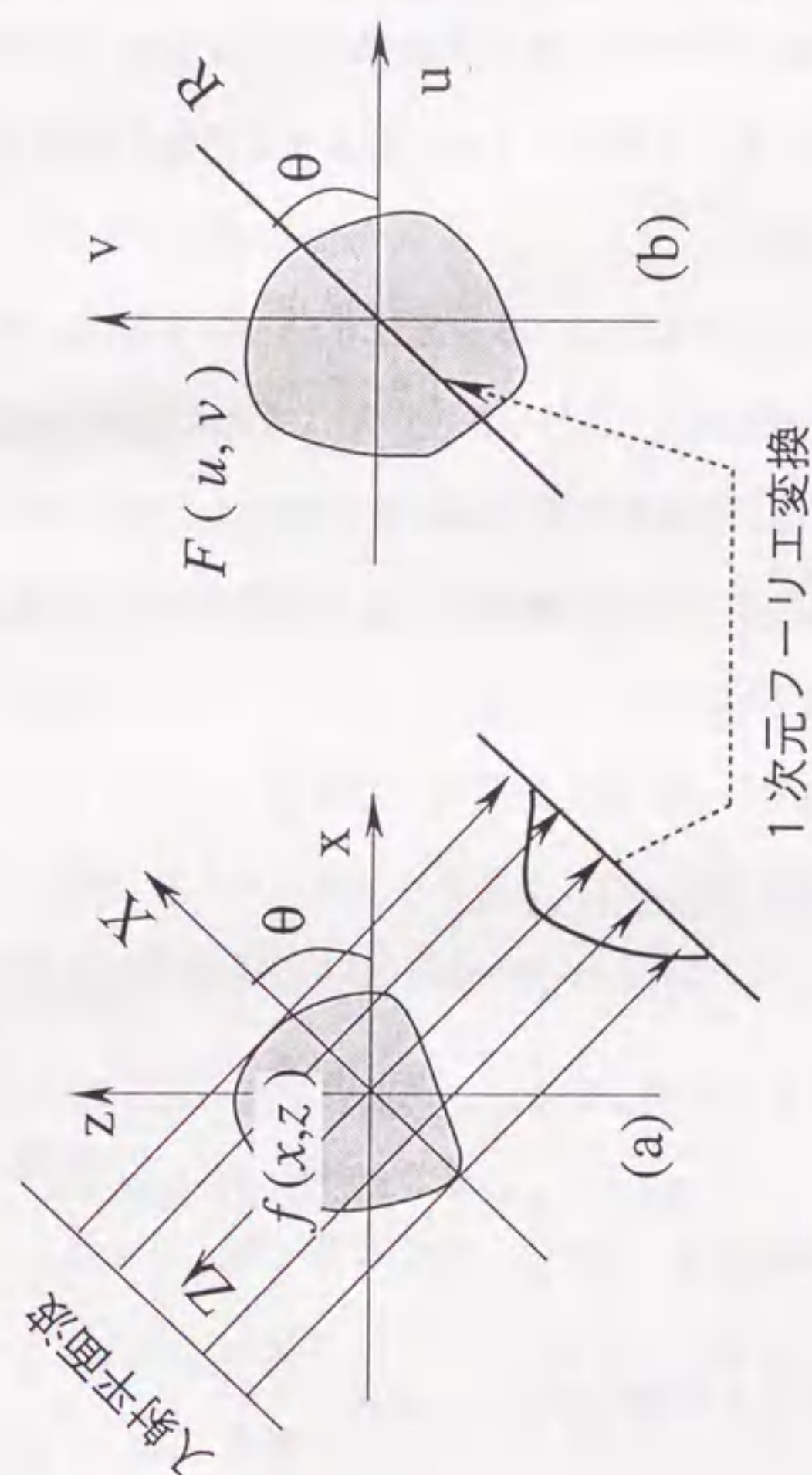


図5-7 投影切断面定理

部分を投影の形に書き換えると

$$f(x, y) = \int_0^\pi \int_{-\infty}^{\infty} F_R[P[f]](R, \theta) |R| \exp[2\pi i R(x \cos \theta + y \sin \theta)] dR d\theta$$

$$= \int_0^\pi F_R^{-1}[F_R[P[f]](R, \theta) |R|] (x \cos \theta + y \sin \theta) d\theta \quad (5 \cdot 22)$$

となる。この式はまず求められた投影のフーリエ変換に $|R|$ を掛け、逆フーリエ変換し、 θ に対して積分する形になっており、ちょうど逆投影の式となっている。ここで $|R|$ をフィルターと言う。この方法の名前の由来である。このフィルターは高周波の部分を強調する効果があり、後述のように高周波成分を減衰させる関数を用いる。

(磁場の再構成アルゴリズム)

すでに式 (5・12) に示したように、2次元位相分布の x 方向に対する微分は磁束密度 B の y 成分 B_y の投影に等しい。しかし、実験的に求めた位相分布は第3章で論じたノイズや歪みを含んでおり、これを微分することは事実上ノイズばかりを拡大増幅することになり実用的でない。そこで、微分を避ける方法を考える。一般に、微分のフーリエ変換は次の形に書き換えることができる。

$$F_x\left[\frac{d}{dx} f(x)\right] = (-2\pi i X) F(X) \quad (5 \cdot 23)$$

ここで $F(X)$ は $f(x)$ のフーリエ変換である。この関係を用いれば微分演算をフィルターに置き換えることで解決できる。 B_y はフィルター補正逆投影法のアルゴリズムに従い次式で求められる。

$$B_y(x, y = y_i, z) = \int_0^\pi F_R^{-1}[F_R[P[B_y]](R, \theta) |R|] (x \cos \theta + y \sin \theta) d\theta$$

$$= \int_0^\pi F_R^{-1}\left[F_R\left[\frac{\partial}{\partial r} \phi(r, y = y_i)\left(\frac{h}{2\pi e}\right)\right](R, \theta) |R|\right] (x \cos \theta + y \sin \theta) d\theta$$

$$\int_0^\pi F_R^{-1}[F_R[\phi(r, y = y_i)](R, \theta) \left(\frac{h}{2\pi e}\right) (-2\pi i R) |R|] (x \cos \theta + y \sin \theta) d\theta \quad (5 \cdot 24)$$

このようにフィルター関数を導入することにより、位相分布を微分せずに直接磁束密度の再構成に取り込むことができる。新たなフィルター関数は

$$F_f = \left(\frac{h}{2\pi e}\right) (-2\pi i R) |R| \quad (5 \cdot 25)$$

である。実際の計算では高周波側でのノイズ増幅の影響を考慮し、高周波成分を減衰させることが必要である。図5-8に理論的なフィルター関数、高周波を減衰させるための窓関数及び実際の3次元再構成で用いたフィルター関数を示す。

5.4.2 磁場再構成の実験方法

(試料傾斜)

試料として粒径約 $1\mu\text{m}$ のバリウムフェライト単磁区粒子を選んだ。この実験では試料を2軸傾斜して数十枚のホログラムを撮影する必要がある。ギャップの広いポールピースを選べば一般に一方の傾斜軸に関しては $\pm 60^\circ$ 傾斜させることができるがもう一方の傾斜軸に関しては試料ホルダーの構造上普通 $\pm 30^\circ$ 程度が限界であり $\pm 60^\circ$ まで傾斜させることはできない。そこで、本実験では、まず電場の再構成の時と同様に試料を 5° 刻みに $\pm 60^\circ$ 傾斜させ25枚のホログラムを撮影した。次に試料を試料ホルダー上で 90° 回転させ、再び試料を 5° 刻みに $\pm 60^\circ$ 傾斜させ25枚のホログラムを撮影した。こうして得た合計49枚 (2枚は同一条件) のホログラムから3次元再構成を試みた。

(投影位相分布の計測)

撮影したホログラムより、第2章で記述したフーリエ変換によるデジタル再生法を用いて投影位相分布を求めた。前節のラテックス粒子の再構成では粒子のない場所の位相が平坦であると仮定したが、磁場の場合には視野全体に位相の傾きがある。そこで、各ホログラムを撮影した後、常に同じ条件で試料を視野から外して干渉縞だけを撮影し

(これを参照ホログラムと呼ぶ) これから再生した位相分布を平坦であるとして試料を含んだホログラムから求めた位相の傾きを補正した。あるいは、視野の中央の磁性体試料から最も遠い点、つまり視野の4隅の位相値は等しいと仮定した。また、磁場の再構

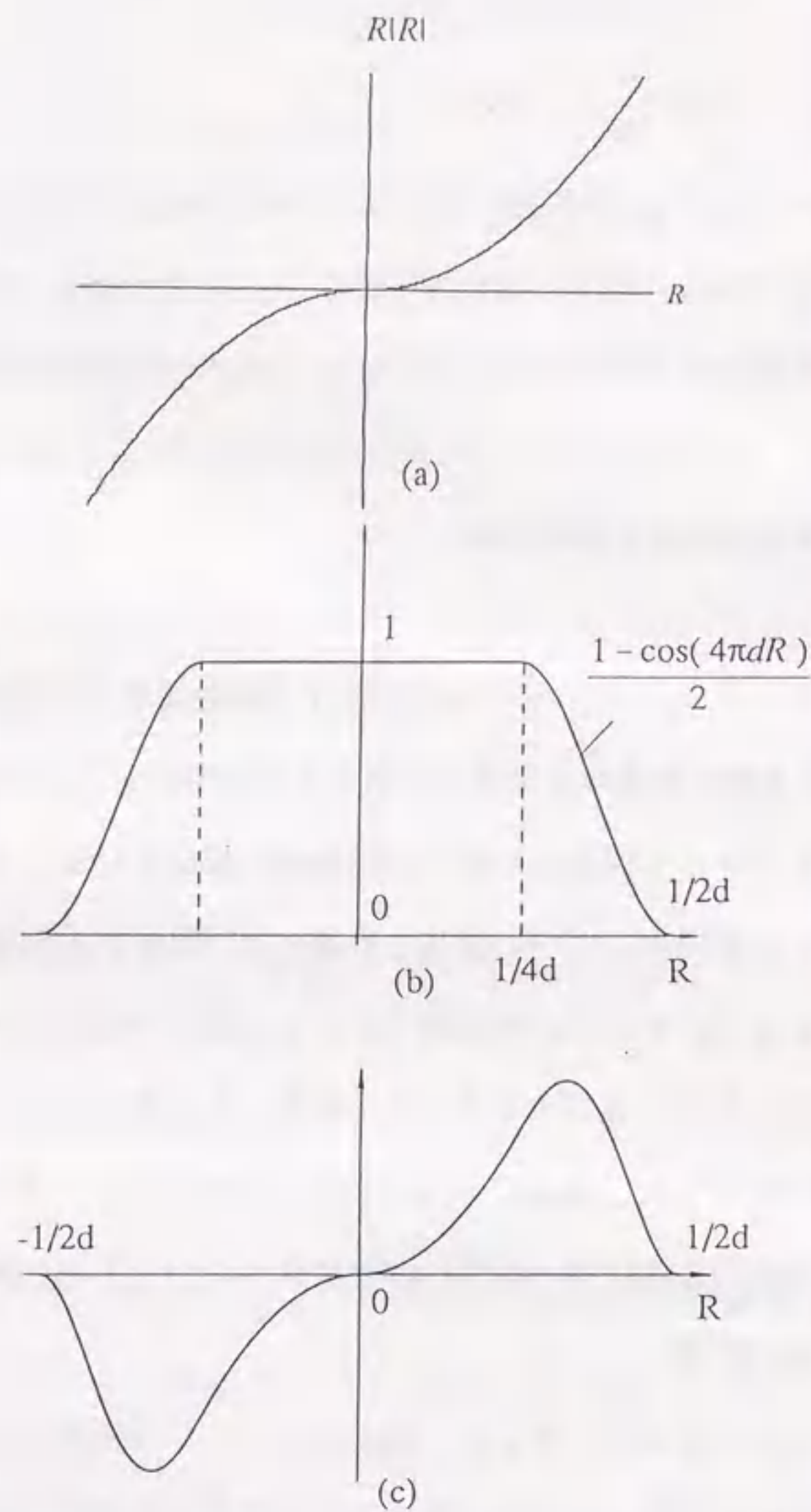


図5-8 フィルター関数

- (a) 理論的フィルター関数
- (b) 高周波領域を減衰させるフィルター関数
- (c) 実際の3次元再構成に用いたフィルター関数

成においては位相分布の微分に相当する演算を、フィルター関数を用いて行うことを述べた。微分と同じ演算を行うのであるから位相分布の変化率だけがデータとなり、初期位相は意味がなくなる。このことは、各ホログラムの初期位相を定める必要がないことを意味する。

(位相の連続化)

電場の再構成の時と同様に、隣り合う2つの画素の位相差は π 以下であるという仮定を導入し位相を連続化した。

(投影データの位置合わせ)

この実験においては、電場の再構成の時と同じように試料のポテンシャルの重心を基準にすることはできない。そこで、バリウムフェライト粒子の近傍に存在する極めて微小な粒子に注目し、その粒子の位置を基準にした。

(投影データの角度内挿)

投影データは観察の角度を変えて多数計測する必要があるが、先述のように2つの回転軸いずれに対しても $\pm 60^\circ$ 以上傾斜させることができない。そこで、欠損した角度に対してデータを内挿した。図5-9に示すように各投影データの一つのラインに対して、スプライン関数によってデータの内挿をした。特にスプラインによる内挿は微分が連続になるように次数を設定できることから、磁場の再構成には有用な方法である。

5.4.3 磁場再構成の実験結果

図5-10は傾斜角 0° で撮影したバリウムフェライト粒子のホログラム及びその位相分布像である。位相は $-\pi$ から π の間の主値として表示されている。この位相分布をある軸に対して微分すれば、その軸と垂直な方向の磁束密度の成分の投影が得られることをすでに述べた。前節で記述したように、フィルターを用いることによりこの微分と等価な計算を行い、x軸成分だけの投影磁束密度分布ベクトルを求めたものが図5-11(a)である。同様にy成分だけの投影磁束密度分布ベクトルを求めたものが図5-11(b)である。これら2成分より求めた2次元磁束密度分布のベクトルを図5-11(c)

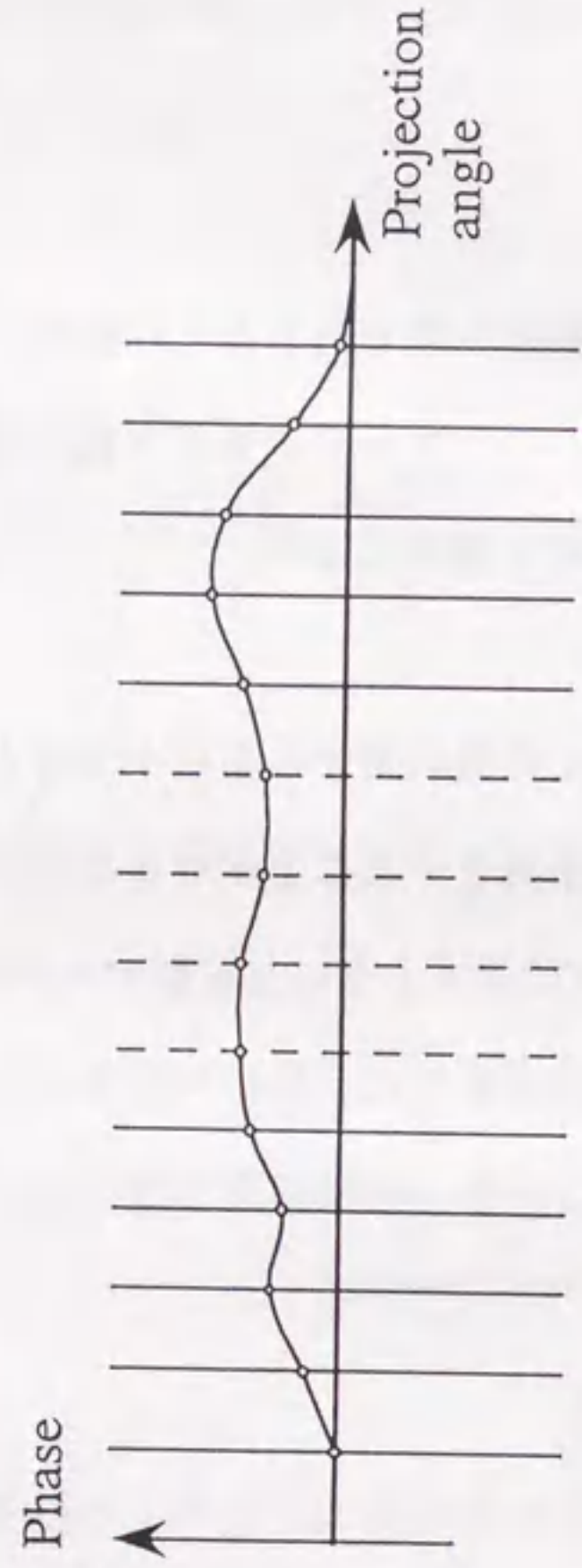


図5-9
角度により欠損した投影データを補うためのスプライン関数

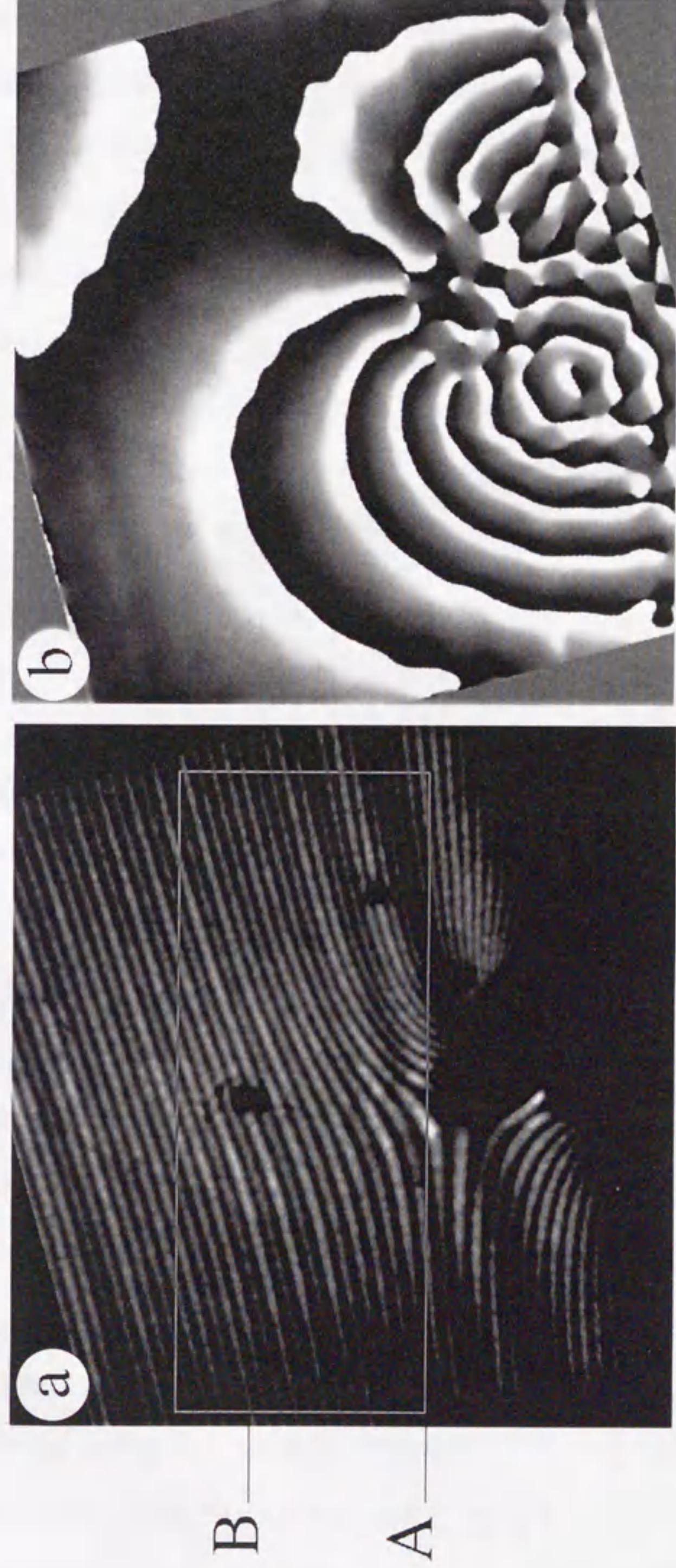


図5-10 試料傾斜角 0° のときのバリウムフェライト単磁区粒子
(a) ホログラム、(b) 位相分布

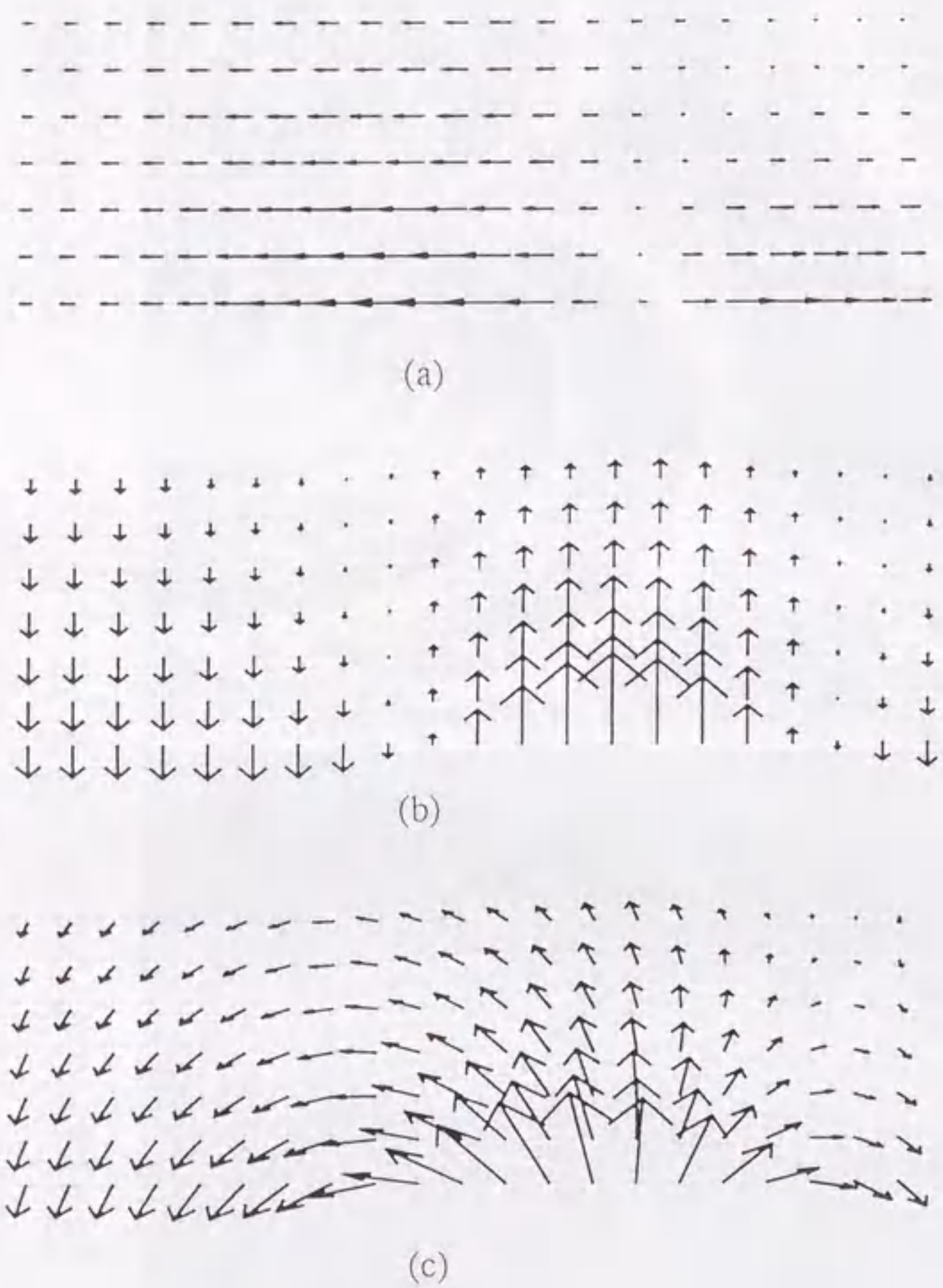


図5-11
1枚の位相分布から成分ごとに求めた投影磁束密度分布
(a) x成分、(b) y成分、(c) x-y成分

に示す。

図5-12に示す実験結果は、本研究で開発した磁束再構成のアルゴリズムを用いて再構成した磁束密度分布ベクトルの分布を示すものである。図の(a)及び(b)はそれぞれ図5-10に示す断面A及びBにおける磁束密度分布である。(a)は試料に近い断面であり、磁性粒子の近くでは磁場の向上きの成分が大きく、粒子の中心から離れるにつれその成分が弱くなり、下向きになって行く様子がこの再構成データから分かる。(b)は試料から離れた断面であり、磁場の強さが粒子から離れるに従い小さくなっている。このように、電子線ホログラフィーCTにより磁場の3次元的な計測が可能となった。今後、磁気記録材料、磁気デバイスの評価、また超伝導磁束量子観察などへの応用が期待される。

5.5 結言

本章では電子線ホログラフィにCTの手法を導入し、電場・磁場の3次元再構成を行うアルゴリズムを構築したこと、及びそれを用いて得た実験結果について記述した。要点は以下のとおりである。

- (1) 光のホログラフィでは観察物体による光の回折角度が大きく(数度~数十度)、立体情報がホログラムに記録されるが、電子線ホログラフィでは試料による電子線の散乱・回折角度が小さい(1°以下)のために立体情報が記録されない。ゆえに、電子線ホログラムの再生方法をいくら工夫しても立体像は再生されない。
- (2) 既存のCT手法によって可能なことは、「3次元空間に分布する1次元ポテンシャル(スカラー量)の投影データをあらゆる方向から取り、そのデータからもとの3次元空間におけるそのポテンシャルの分布を求める」ことである。電位はスカラー量であるので既存のCT手法が適用できる。しかし、磁場はベクトル量であるので既存のCT手法では3次元再構成はできない。本研究においては、互いに垂直な2つの直線を軸として試料を傾斜させることにより磁場を1成分ずつ再構

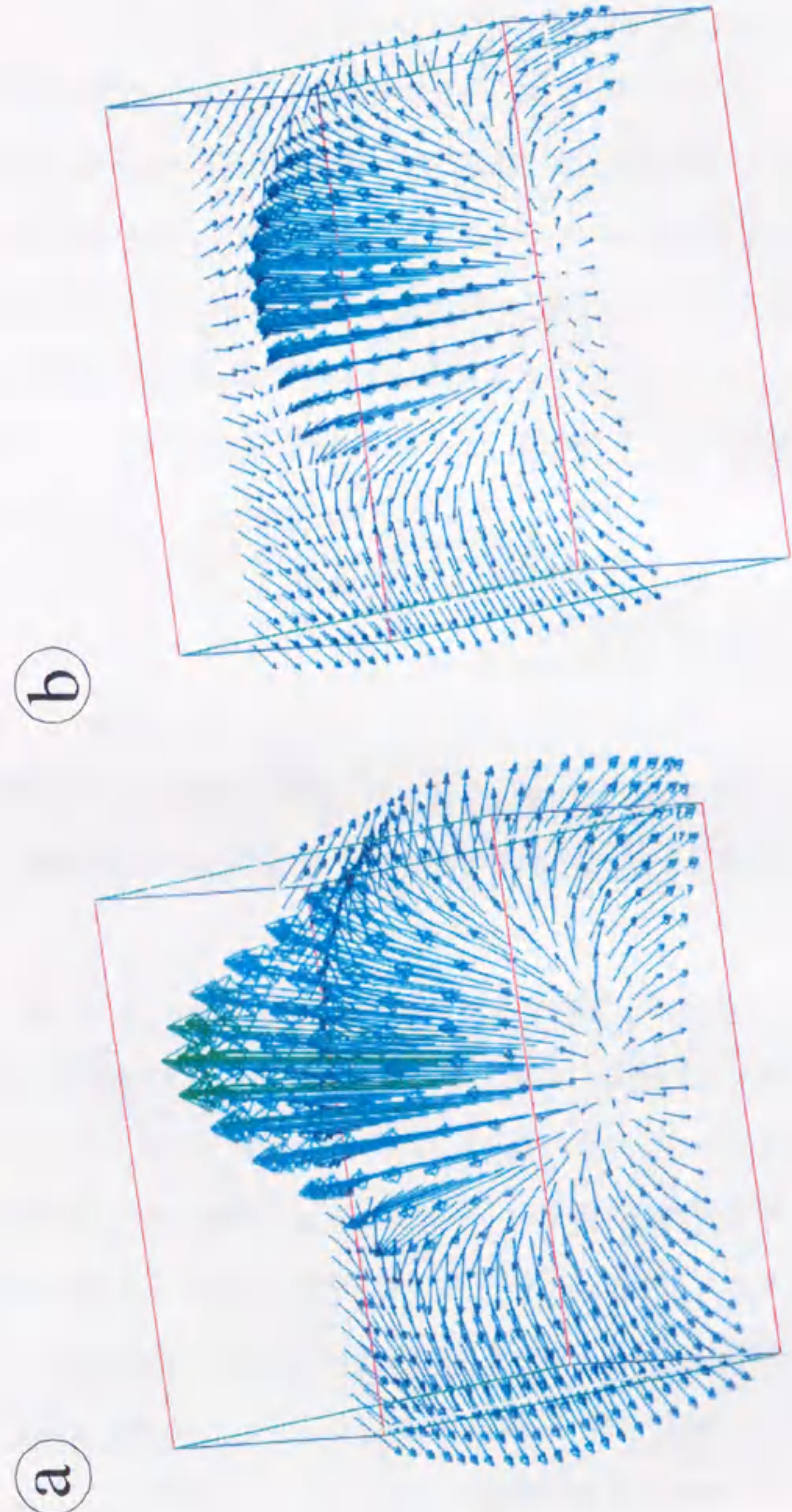


図5-12 3次元再構成された磁場分布
 (a) 図5-10の断面 A における磁束密度分布
 (b) 図5-10の断面 B における磁束密度分布

成できることを見いだした。

- (3) 逐次近似法を用いて、粒径約 0.1 μm のラテックス粒子の内部電位分布の 3 次元再構成を行った。粒子の形状やポテンシャル分布を等高線像や鳥瞰図として表示した。
- (4) 投影切断面定理に基づくフィルター補正逆投影法を基本として磁場を 1 成分ごとに再構成するアルゴリズムを構築した。これを利用してバリウムフェライト単磁区粒子近傍の磁場の 3 次元再構成を行った。観察領域全体のあらゆる位置における磁場が求められた。

以上のように、本研究により電子線ホログラフィ CT により電場・磁場の 3 次元再構成を行うことができるようになった。この手法は磁気記録材料及びデバイスの評価などへの応用が今後期待される。また、超伝導体や一部の生物試料の観察にも利用できると考えられる。

参考文献

- 1) H. W. Fink, W. Stocker and H. Schmid, Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 1204.
- 2) H. W. Fink, H. Schmid, H. J. Kreuzer and A. Wierzbicki, Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 1543.
- 3) J. C. H. Spence, W. Qian and A. J. Melmed, Ultramicroscopy 52 (1993) 473.
- 4) J. C. H. Spence, Optik 92 (1992) 57.
- 5) J. Radon, Ber. Verh. Hachs. Akad. Wiss. Leipzig Math. Phys. Kl. 69, (1917) 262.
- 6) G.T. Herman, *Image Reconstruction From Projections: Implementation and Applications* (Springer-Verlag, Berlin, Germany, 1979).
- 7) G.T. Herman, *Image Reconstruction from Projections: The Fundamentals of Computerized Tomography* (Academic Press, New York, USA, 1980).
- 8) A. M. Cormack, J. Appl. Phys., 34 (1963) 2722.
- 9) R. Gordon, R. Bender, and G. T. Herman, J. Theor. Biol. 29 (1970) 471.
- 10) G. N. Ramachandran and A. V. Lakshminarayanan, Proc. Nat. Acad. Sci. 68 (9), (1971) 2236.
- 11) M. Vanzì, Optik 68 (1984) 319.
- 12) G. Lai, T. Hirayama, K. Ishizuka, T. Tanji and A. Tonomura, Applied Optics 33 (1994) 829.
- 13) G. Lai, T. Hirayama, A. Fukuhara, K. Ishizuka, T. Tanji and A. Tonomura, J. Appl. Phys. 75 (1994) 4593.

第6章 3波干渉法

6.1 緒言

本研究で主に観察してきた真空中の電場・磁場は、低い空間周波数を持つ典型的な位相物体である。位相コントラスト伝達関数のグラフを見れば明らかなように、低い空間周波数を持つ位相物体に対する透過電子顕微鏡の結像能力は低い。このため、電場・磁場は普通の透過電子顕微鏡では高いコントラストで観察することはできない。このような場の観察のために、電子線ホログラフィではまず電子線バイプリズムを利用して電子波を波面分割し、その一方を参照波としてもう一つの試料を透過した波を物体波とする。物体波の位相情報は、この2つの波の干渉によって生じた干渉縞の間隔の変調としてホログラムに記録される。さらに、そのホログラムを光学系あるいは計算機で再生し、干渉顕微鏡像として低い空間周波数を持つ位相物体を高コントラストで観察できることを前章までに記述してきた。

電子線ホログラフィは微小領域の電場・磁場定量的かつ視覚的にとらえられる計測・観察手法として極めて有力な手法である。しかし、電子線ホログラフィにも欠点がある。その1つは、ホログラフィが2段階の結像方法であるために、電子顕微鏡観察中にホログラムは観察できるが再生像は観察できないこと、そしてそのために動きを伴う試料の動的直接観察ができないことであった。この問題を解決するために、第4章で記述したように液晶素子を用いてオンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムを作製し磁性体磁区構造の動的観察を実現した¹⁻⁴⁾。しかし、ホログラフィ電子顕微鏡と光学再生系を同時に正確に操作するのは、実際には非常に困難な実験であった。そこで、電子顕微鏡だけでホログラフィのように低い空間周波数を持つ位相物体を可視化する電子波干渉方法を開発することを本章の研究目的とした。

1960年代の初めにBuhl⁵⁾ や Jönsson⁶⁾ らは電子波干渉の基礎実験として3つあるい

はそれ以上の数の電子波の干渉実験を行った。最近になって川崎ら^{7, 8)}は2本のバイプリズムを用いた多波干渉実験を行い、感度の高い電子波位相計測の可能性を指摘した。本研究では1つの物体波に2つの参照波をかさねる3波干渉法^{9, 10)}により、電子線ホログラフィ顕微鏡だけで電場・磁場の可視化を実現した。技術的には電子線ホログラフィと非常に似た手法であるが、光学系やコンピュータによる像再生なしで干渉顕微鏡像に相当する干渉パターンが得られる新しい面を持っている。本章では、まずこの理論と手法について記述する。さらに、電磁場観察の実験例を示す。

6.2 3波干渉法の原理と理論

3つの電子波の干渉により形成される干渉パターンを求めるために、まず完全干渉性を持つ入射平面波を考え、これを

$$\Psi(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) \quad (6 \cdot 1)$$

と表す。 \mathbf{k}_i は波数ベクトル、 \mathbf{r} は位置ベクトルである。今、試料の透過関数を $\exp(i\phi(\mathbf{r}))$ とすれば、この位相物体直下の波動場 Ψ_0 (物体波) は次式で表わされる。

$$\Psi_0(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} + i\phi(\mathbf{r})) \quad (6 \cdot 2)$$

議論を簡単にするために倍率を1とし、電子レンズの収差や焦点はずれを無視すれば、上記の波動場が像面上に形成される。今、像面上で上記の物体波の伝播方向に対して互いに対称な2つの波 Ψ_1 及び Ψ_{-1} を考え、それぞれ次式で表す。

$$\Psi_1(\mathbf{r}) = \exp(i(\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}) \quad (6 \cdot 3)$$

$$\Psi_{-1}(\mathbf{r}) = \exp(i(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}) \quad (6 \cdot 4)$$

ここに、 \mathbf{k}_1 は入射波に加えられた偏向成分の波数ベクトルを示す。これらの2つの波を参照波として物体波と干渉させるのが3波干渉法である。3つの波の干渉による像面での電子の存在確率分布 $|\Psi_3|^2$ は次式で与えられる。

$$|\Psi_3(\mathbf{r})|^2 = |\Psi_0(\mathbf{r}) + \Psi_1(\mathbf{r}) + \Psi_{-1}(\mathbf{r})|^2 \quad (6 \cdot 5)$$

ここで、図6-1に示すように電子線物理の慣習に従い電子波の伝播方向を z 軸方向に取り、像面は $x-y$ 平面上にあると仮定する。さらに、像面の少し上で y 軸方向に張られた2本のバイプリズムによって、物体波の両側の波はそれぞれ $+x$ 方向と $-x$ 方向に偏向されるとする。さて、入射波は現実には部分干渉性を持った波であり位相と振幅に揺らぎがある。そこで、ここからは像面に於ける入射波を解析信号 $u_0(x, y)$ として表現する¹¹⁾。これにより、像面における物体波 Ψ_0 、及び2つの参照波 Ψ_1 と Ψ_{-1} はそれぞれ次式のように書き直すことができる。

$$\Psi_0(x, y) = u_0(x, y) \exp(i\phi(x, y)) \quad (6 \cdot 6)$$

$$\Psi_1(x, y) = u_0(x - d, y) \exp(ik_x x) \quad (6 \cdot 7)$$

$$\Psi_{-1}(x, y) = u_0(x + d, y) \exp(-ik_x x) \quad (6 \cdot 8)$$

ここに、 d は物面上で見た電子線の偏向距離の x 成分であり、 k_x は参照波の波数ベクトルの x 成分である。これらの3つの波の干渉によって形成されるパターンは

$$\begin{aligned} \langle |\Psi_3(x, y)|^2 \rangle &= \langle |\Psi_0(x, y) + \Psi_1(x, y) + \Psi_{-1}(x, y)|^2 \rangle \\ &= \langle |\Psi_0|^2 \rangle + \langle |\Psi_1|^2 \rangle + \langle |\Psi_{-1}|^2 \rangle \\ &\quad + \langle \Psi_{-1} \Psi_0^* + \Psi_{-1}^* \Psi_0 \rangle + \langle \Psi_0 \Psi_1^* + \Psi_0^* \Psi_1 \rangle + \langle \Psi_{-1} \Psi_1^* + \Psi_{-1}^* \Psi_1 \rangle \end{aligned} \quad (6 \cdot 9)$$

となる。ここに、 $\langle \rangle$ は統計的平均 (アンサンブル) を表し、実際に観察される干渉縞

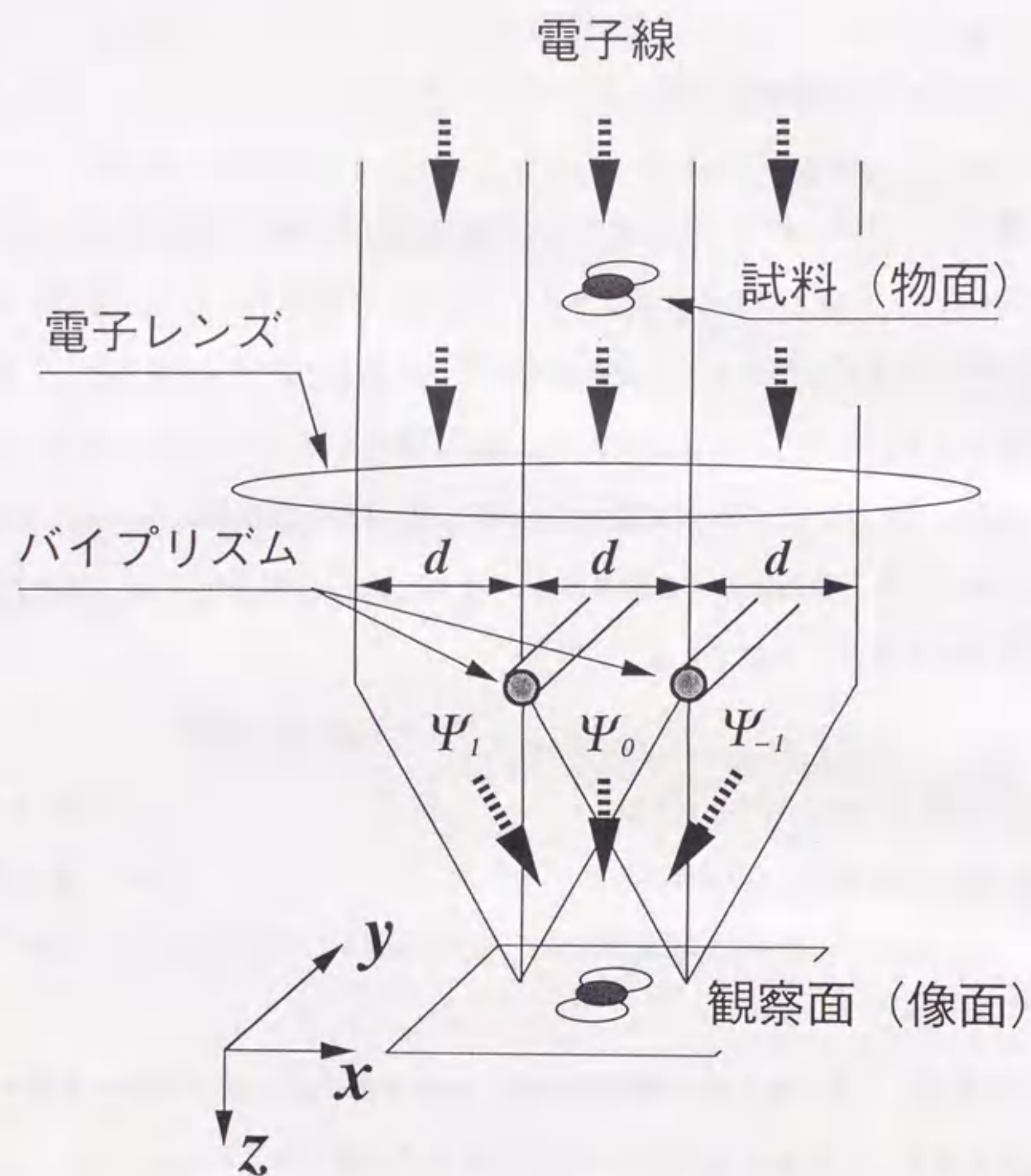


図 6-1 3波干渉法の原理を示す模式図

を与える。ここで、相関関数 $\Gamma(d) = \langle u_0(x, y) \cdot u_0^*(x+d, y) \rangle$ を定義すれば¹¹⁾、

$$\begin{aligned} \langle |\Psi_3(x, y)|^2 \rangle &= 3 + 2\text{Re}\{\Gamma(d)\} \cos(k_x x + \phi) + 2\text{Re}\{\Gamma(d)\} \cos(k_x x - \phi) + 2\text{Re}\{\Gamma(2d)\} \cos 2k_x x \\ &= 3 + 4\text{Re}\{\Gamma(d)\} \cos k_x x \cos \phi + 2\text{Re}\{\Gamma(2d)\} \cos 2k_x x \end{aligned} \quad (6 \cdot 10)$$

のように書き換えることができる。右辺第1項はバックグラウンドである。右辺第2項の $\cos \phi$ は $\cos k_x x$ で表される干渉縞の強度を変化させる形で物体波の位相分布が等位相線として可視化されることを示している。第3項 $2\cos 2k_x x$ は Ψ_1 と Ψ_{-1} によって形成される干渉縞であり、物体波に関する情報は全く含んでいない。

第2項と第3項の強弱は相関関数の値に影響される。第2章図2-2のように光源が明るさの様な円盤状の単色光源であると仮定すれば、一般に相関関数は Van Cittert-Zernike の定理により次式で表される¹²⁾。

$$\Gamma(d) = \exp(-i\psi) \left[2 \frac{J_1\left(\frac{2\pi a}{\lambda z} d\right)}{\left(\frac{2\pi a}{\lambda z} d\right)} \right] \quad (6 \cdot 11)$$

ここに、 a/z は試料上から見た時の光源の見かけの大きさである。今 $X = 2\pi a d / \lambda z$ とおけば相関関数の実数部は次の式で表される。

$$\text{Re}\{\Gamma(X)\} = 2 \frac{J_1(X)}{X} \quad (6 \cdot 12)$$

この関数を図6-2に示す。横軸Xは干渉距離dと光源の見かけの大きさ a/z の関数である。図中の点 X_0 では相関関数が0になり干渉縞は現れない。実験時に、 $2X = X_0$ となるように干渉距離及び光源の見かけの大きさを調節すれば、(6-10)式の第2項の相関関数は十分な大きさがあるが第3項のそれは0であるような干渉条件となる。これが3波干渉法で電場・磁場を観察する時の最適条件である。実験においては干渉距離はバイプリズムに印加する電圧で、光源の見かけの大きさはコンデンサレンズの電流

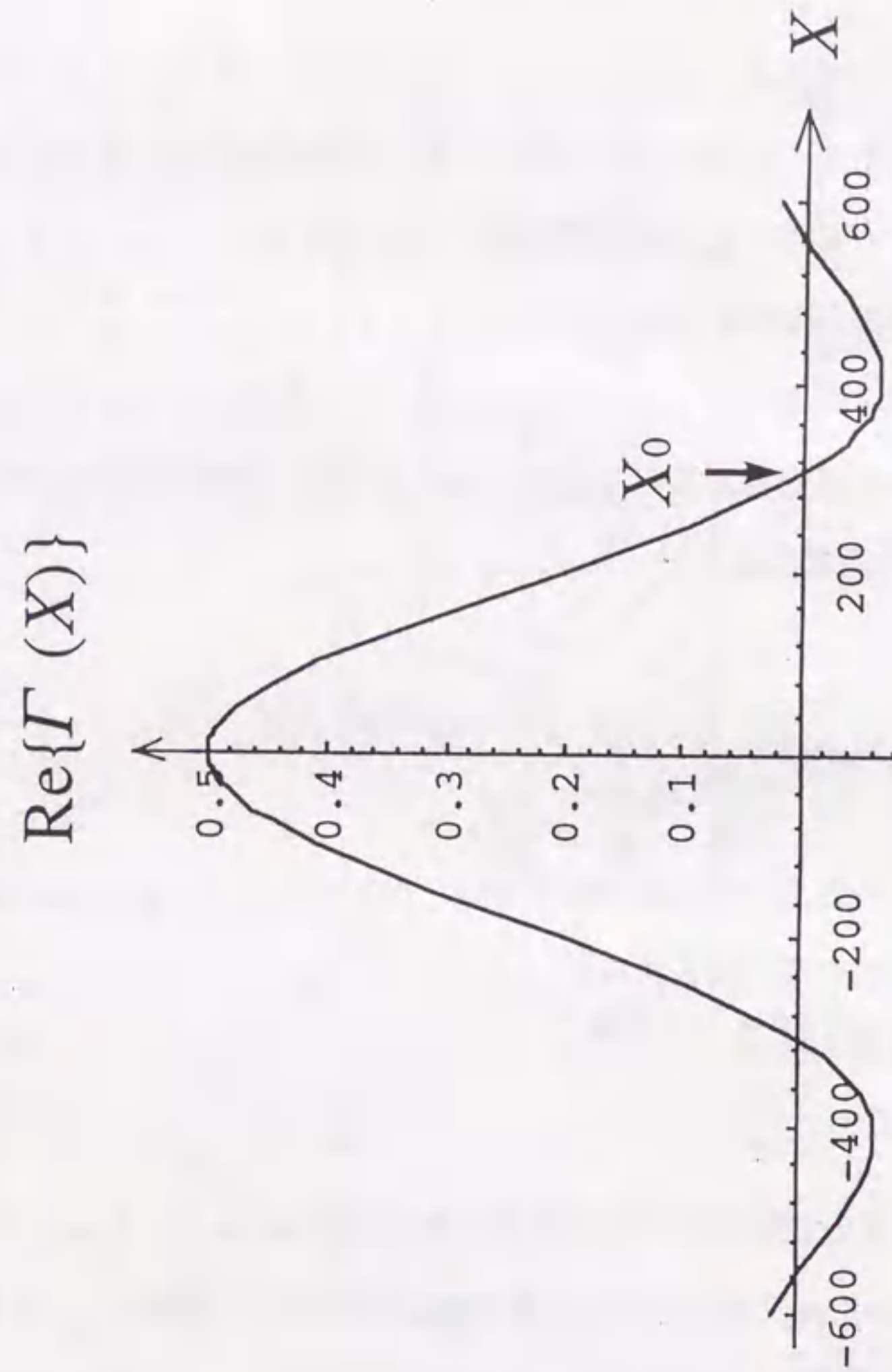


図6-2 相関関数の実数部

で調節できる。 $\cos kx$ で表される干渉縞のコントラストがあまり低下しない範囲で電子ビームをできるだけ集束させ、蛍光板を明るくして撮影すれば、この条件は容易に実現できる。

第2章の式(2・34)で $A(r)=1$ とおけばわかるように電子線ホログラフィで得られる干渉顕微鏡像における電子線強度は、 $(1 + \cos \phi)$ で表される。位相変化量 $\Delta\phi$ が x に比例する場合、これは図6-3(a)に示す様な周期 2π を持つ関数であり、干渉顕微鏡像では図6-3(b)のように表現される。これに対し、3波干渉では $\cos kx$ は $\cos \phi$ より高い周波数で振動する関数であるから、図6-4(a)に示すように $\Delta\phi$ が0から 2π まで変化する間に $1 + \cos kx \cos \phi$ の強度は2回大きな増減を繰り返す。すなわち、周期 π を持つ関数である。観察される干渉パターンは図6-4(b)のようになる。このことは、3波干渉パターンでは電子波の位相変化 2π に対して2本の等位相線が現れることを示しており、電子線ホログラフィにおける2倍位相増幅に相当することを意味している。

図6-4(b)はホログラムの二重露光^{13, 14)}によって得られるパターンとよく似ている。二重露光法も像再生をせずに電場・磁場を可視化する手法である。しかし、二重露光法ではリアルタイムで電場・磁場を直視することができないのに対し、3波干渉ではそれが可能である。また、ローレンツ顕微鏡法はリアルタイムで像が得られる方法であるが、その定量的解釈は容易ではない。リアルタイムで定量的な情報が得られるのが3波干渉法のメリットである。

6.3 3波干渉法の実験方法

図6-1に示した機構を電界放射型電子顕微鏡の中に設置した。ただし、2つのバイプリズムを同一の水平面に設置することは技術的に大変困難であるため、本実験では異なる位置に設置した。一つは通常の制限視野絞りを設置する位置であり、対物レンズと第一中間レンズの間にある。もう一つの位置は第一中間レンズと第二中間レンズの間で

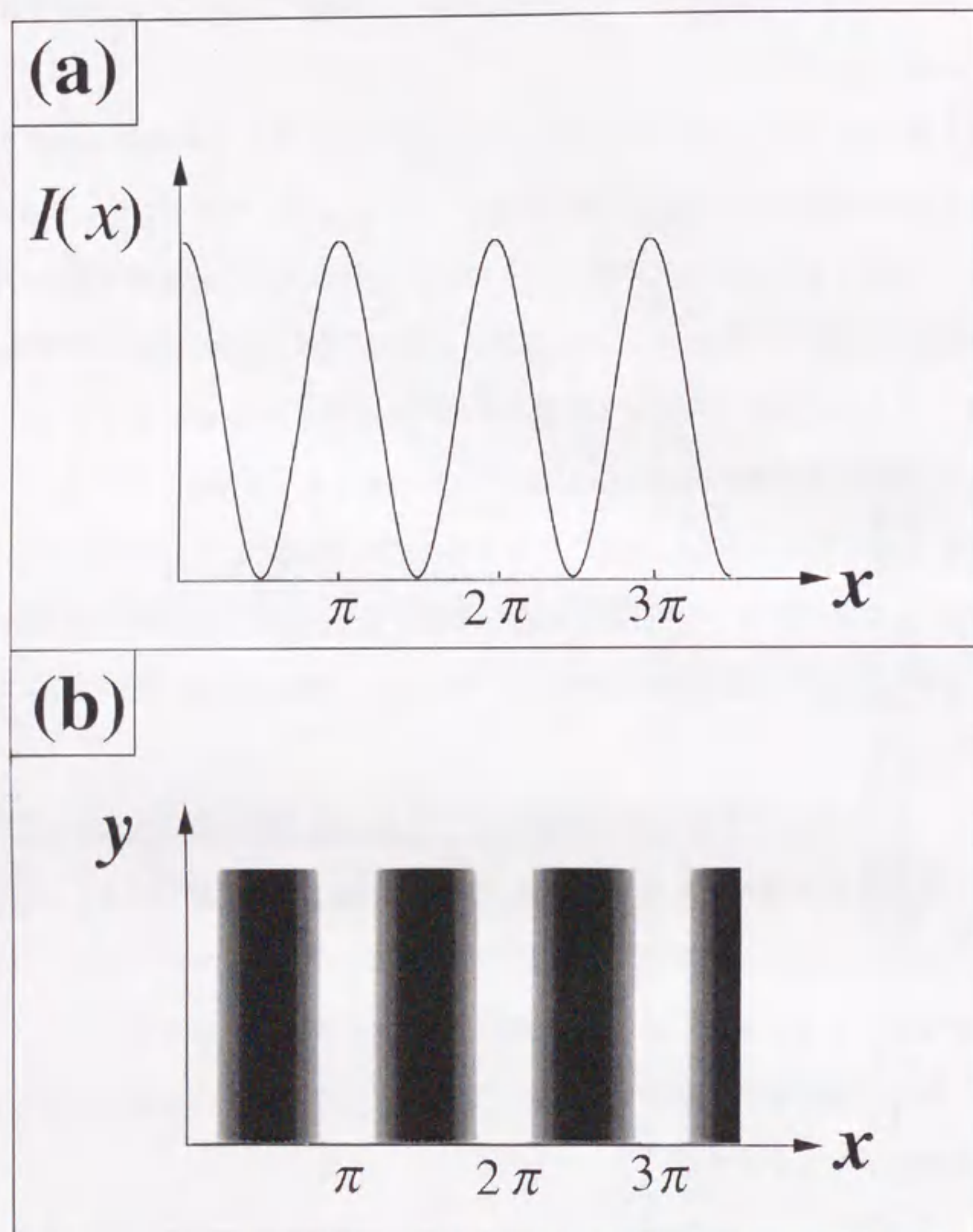


図 6-3
 電子線ホログラフィで得られる干渉顕微鏡像
 (a) 位相と電子波強度の関係、(b) 像の現れ方

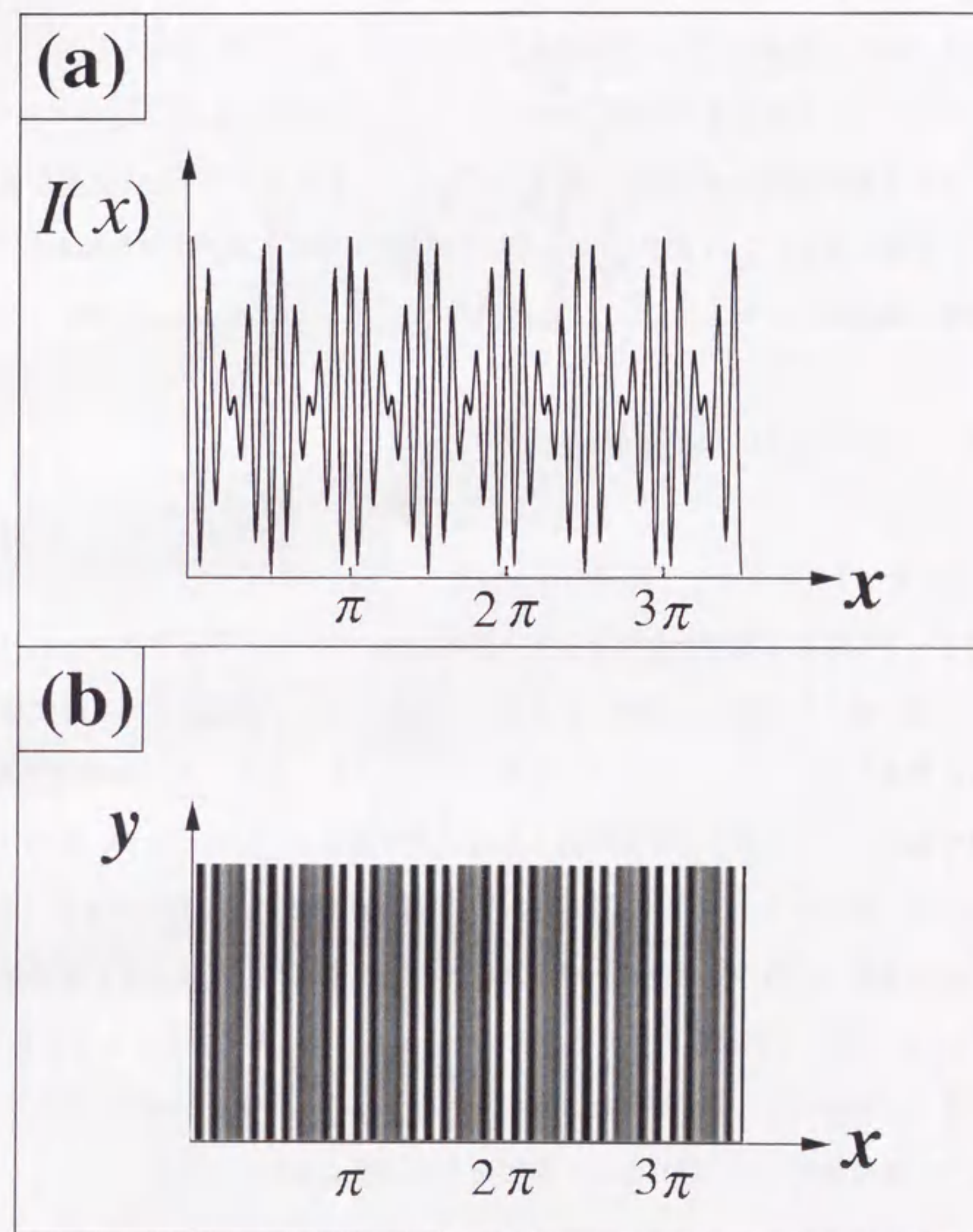


図 6-4 3波干渉パターン
 (a) 位相と電子波強度の関係、(b) 像の現れ方

ある。対物レンズ電流は実験開始の前に切っておいた。第二中間レンズと投影レンズの電流値は最大にし、焦点は第一中間レンズの電流値を調節して合わせた。

図6-5に3波干渉パターンを形成する手順を示す。まず、図6-5(a)のように2本のプリズムを蛍光板上で完全に平行にする。次に、図6-5(b)に示すように2本のプリズムの干渉縞間隔が完全に一致するようにそれぞれのプリズムに適当な電圧を印加する。最後に図6-5(c)及び(d)のように2つの干渉領域を試料上に重ねる。干渉パターンは電子顕微鏡フィルムあるいはGatan社製 Slow Scan CCD Cameraで撮影した。

6.4 3波干渉法の実験結果と考察

6.4.1 ラテックス粒子周辺の電場観察

図6-6に電場を観察した例を示す。試料は薄いカーボン膜にラテックス（高分子材料の一種）粒子を付着させたものである。ラテックスは不良導体であるので電子線を浴びると帯電し、そのまわりの空間に電場分布をつくる。図6-6(a)は通常の電子顕微鏡像である。ここでは粒子が直径約 $0.5\mu\text{m}$ の球であることはわかるが、電場はもちろん見えない。図6-6(b)の3波干渉パターンでは、干渉縞以外に粒子のまわりのほぼ同心円状の電場（電場の等電位線）が干渉縞の強度の変化としてはっきり可視化されている。 $\cos\phi$ の符号の逆転によって干渉縞が等電位線のところでシフトしていることも観察できる。理論のところでも述べたように入射電子波の干渉性を制限したために、ここでは2つの参照波同士の干渉による2倍周期の干渉縞は現れていない。

6.4.2 ラテックス粒子の帯電量の計算

6.2節で記述したように、3波干渉パターンでは電子波の位相変化 2π に対して2本の等位相線が現れる。図6-6(b)には等位相線が2本出ていることから位相変化は約 2π であることがわかる。この位相変化量から以下のように粒子の帯電量を算出することができる。

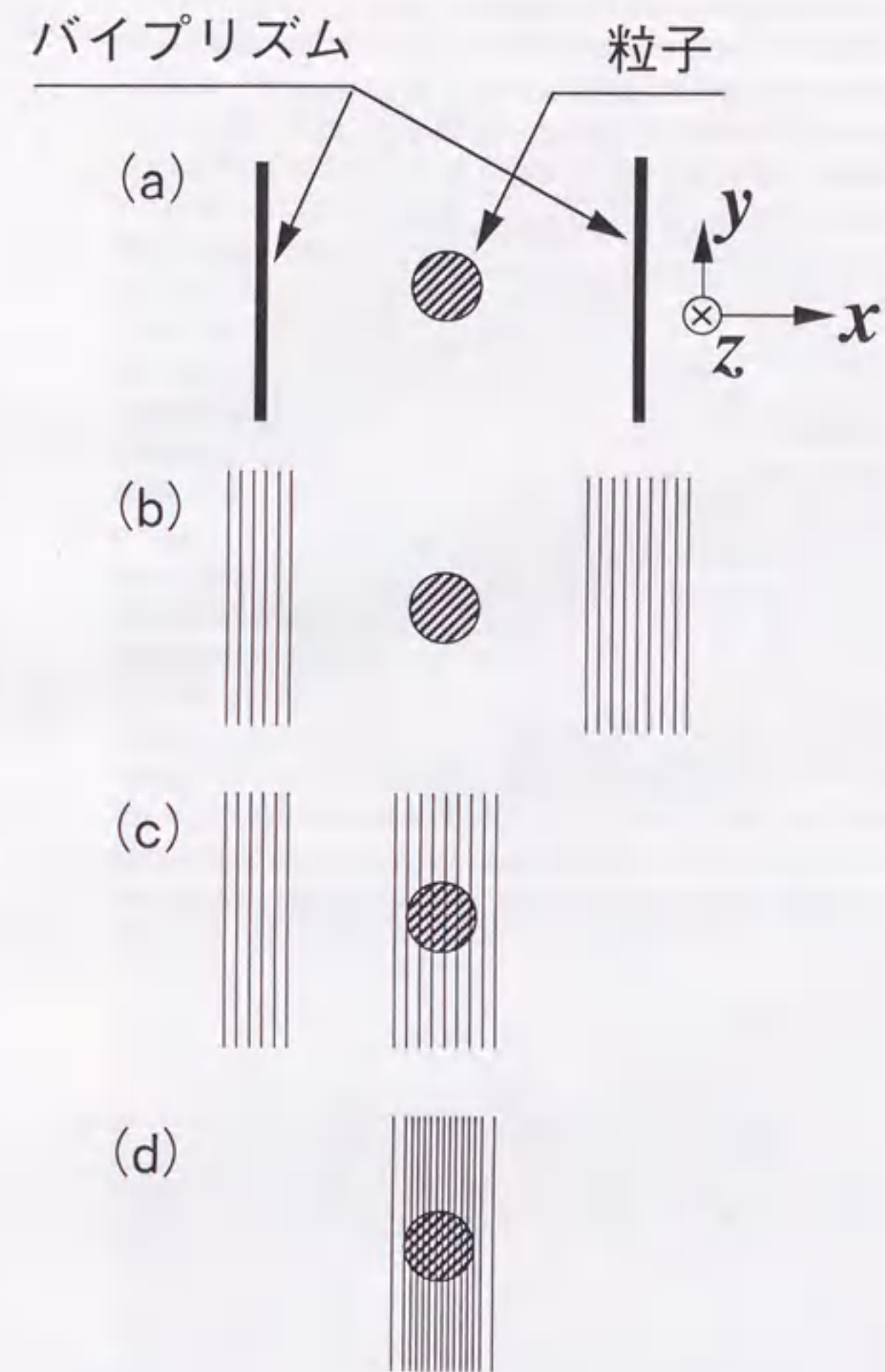


図6-5
3波干渉パターンを得る実験手順

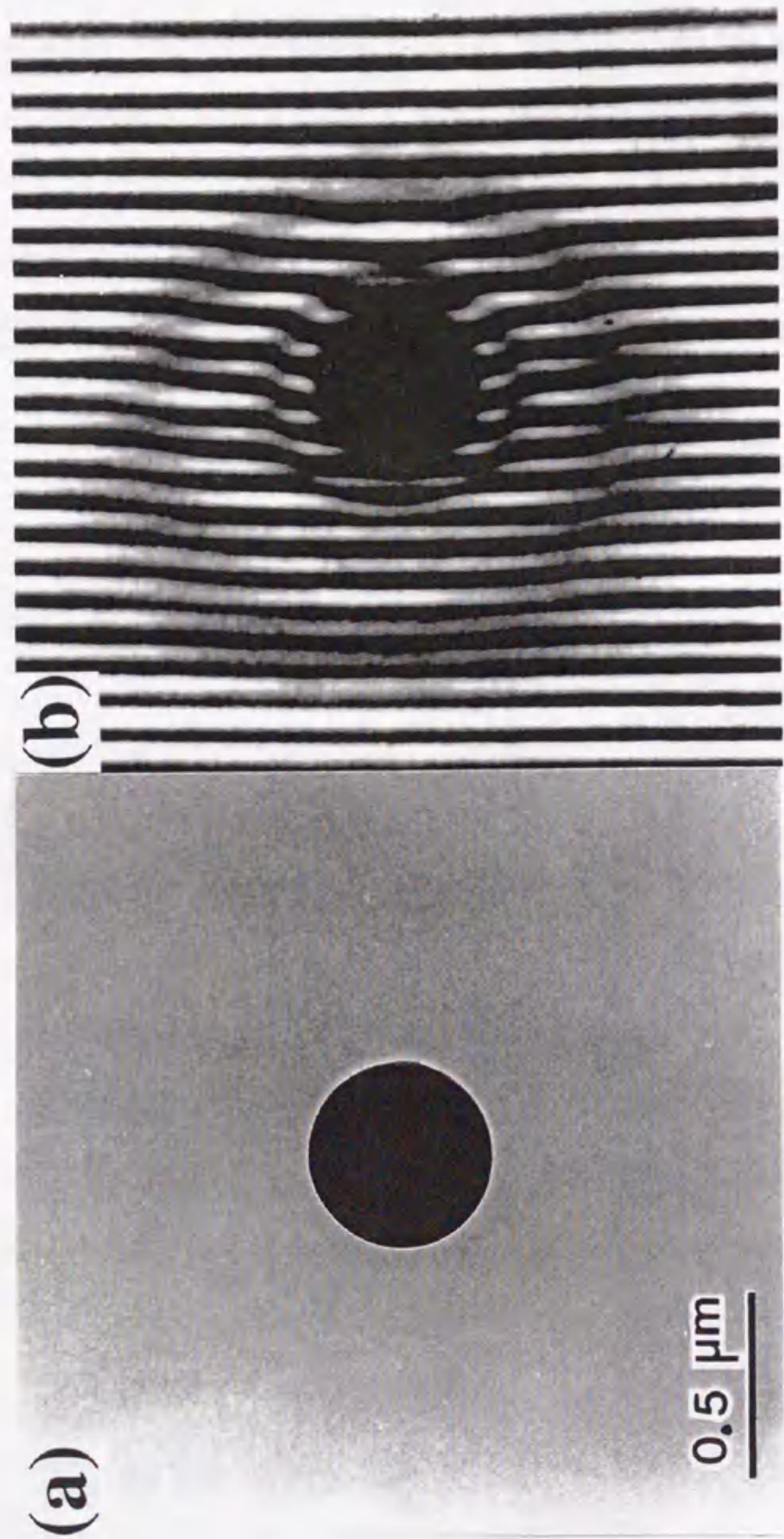


図6-6 ラテックス粒子の観察
(a) 電子顕微鏡像、(b) 3波干渉パターン

図6-7(a)に帯電量算出のための単純化されたモデルを示す。半径 a のラテックス粒子が平面状の導電体であるカーボン膜の上に付着している。まず第一に粒子は均一に帯電しているとし、この粒子の総帯電量を $+q$ とする。この仮定によって、粒子の電荷は粒子中心に存在する $+q$ の点電荷とみなすことができる。次に、カーボン膜は $x-y$ 平面上に存在する面積無限大の膜でありゼロ電位に接地されているとする。これらの仮定のもとでは、カーボン膜の電気遮蔽効果によって電場はカーボン膜より上の半空間にのみ形成される。このような電場は鏡像法によって解析的に求めることができる。図6-7(b)に示すようにカーボン膜を取り除き、 $x-y$ 平面に対して点電荷 $+q$ と対称の位置にもう一つの点電荷 $-q$ を置けば、 $x-y$ 平面より上の半空間における電位分布は図6-7(a)におけるそれと等しくなる。点 $P(x,y,z)$ における電位 V_p は絶対値が等しく符号が逆の2つの点電荷によって形成される電位の合計となる。よって、 V_p は次式で与えられる。

$$V_p(x,y,z) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} \right) \\ = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{\sqrt{x^2+y^2+(z+a)^2}} - \frac{1}{\sqrt{x^2+y^2+(z-a)^2}} \right) \quad (6 \cdot 13)$$

ここに、 r_1 は点 $P(x,y,z)$ と点電荷 $+q$ の距離、 r_2 は点 $P(x,y,z)$ と点電荷 $-q$ の距離を表す。 ϵ_0 は真空の誘電率を表す。

一般に、電位 $V_p(x,y,z)$ による電子波の位相変化 $\Delta\phi$ は次式で求められる¹⁵⁾。

$$\Delta\phi = \frac{\pi}{\lambda E} \int_z V_p(x,y,z) dz \quad (6 \cdot 14)$$

E は電子の加速電圧、 λ は電子の波長である。式(6-12)を式(6-13)に代入すれば次式が得られる¹⁶⁾。

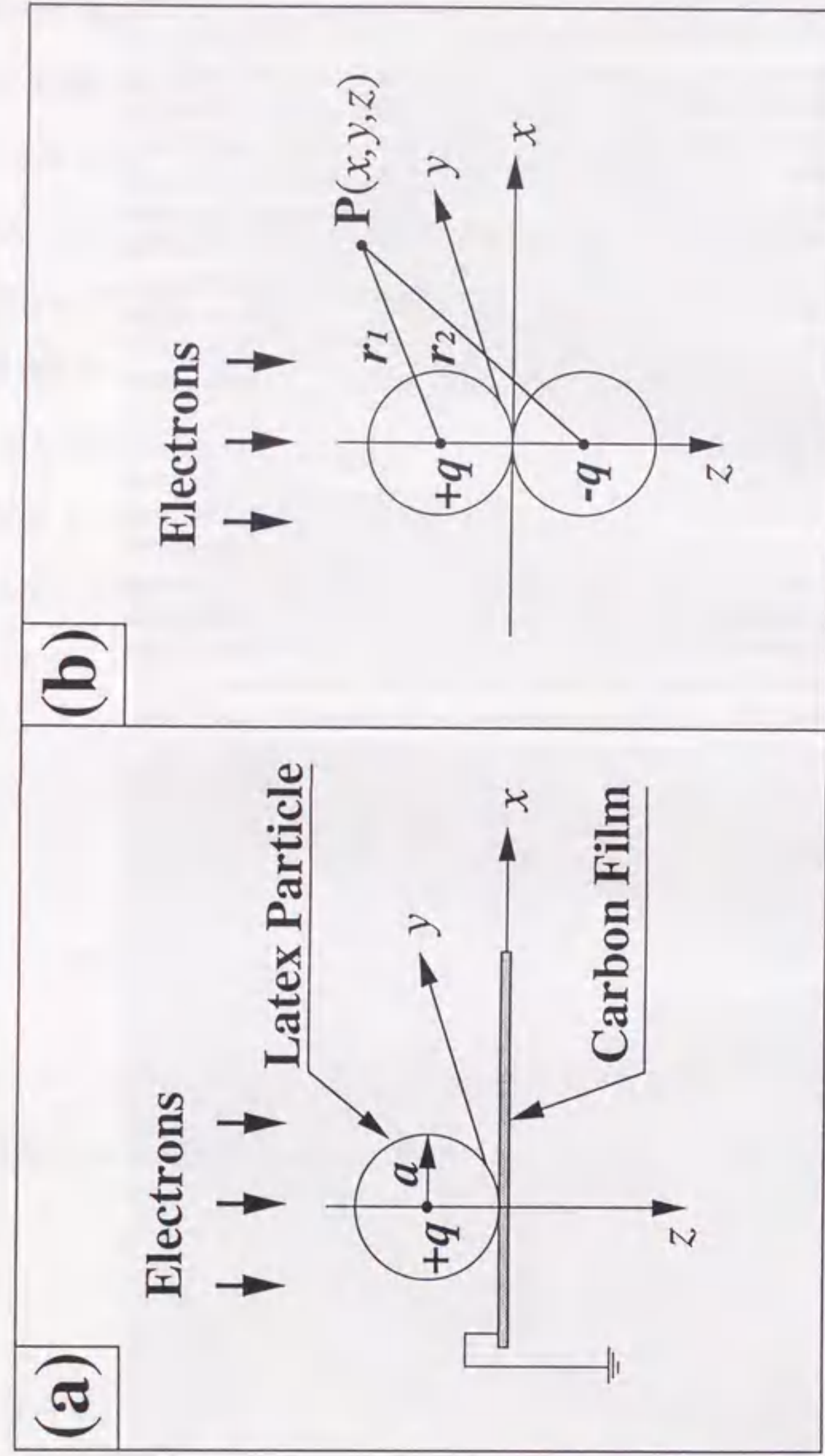


図6-7 帯電量を計算するためのモデル
 (a) カーボン膜上の付着した半径 a のラテックス粒子
 (b) 鏡像法によって得られる (a) と等価な電位分布

$$\Delta\phi = \frac{\pi}{\lambda E} \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \int_0^\infty \left(\frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + (z+a)^2}} - \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + (z-a)^2}} \right) dz$$

$$= \frac{\pi}{\lambda E} \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \ln \left(\frac{+a + \sqrt{a^2 + x^2 + y^2}}{-a + \sqrt{a^2 + x^2 + y^2}} \right) \quad (6 \cdot 15)$$

さて、上式に、 $\epsilon_0 = 8.9 \times 10^{-12} \text{C}^2/\text{N} \cdot \text{m}^2$ 、 $\lambda = 0.0025 \text{nm}$ 、などの物理定数、
 $E = 2.0 \times 10^5 \text{V}$ 、 $a = 250 \text{nm}$ 、 $x = 250 \text{nm}$ 、 $y = 0$ 、など実験条件及び実験結果 $\Delta\phi = 2\pi$ を
 代入すると、帯電量 q は $6.4 \times 10^{-17} \text{C}$ となる。電気素量が $1.6 \times 10^{-19} \text{C}$ であるから、この帯
 電量は電子約 400 個分である。

6.4.3 電場の動的観察

3波干渉法の最も重要な長所は電子波の位相情報がリアルタイムで可視化される点に
 ある。そこで、アルミナ粒子の帯電によって形成される電場の高温での変化をリアルタ
 イムで観察した。本実験では試料位置に裸の細いタングステンワイヤーを張った試料加
 熱ホルダーを使用した。温度はあらかじめ放射温度計によって測定し、電流値と温度の
 関係を求めておいた。アルミナ粉体のエタノール懸濁液を試料加熱ホルダーのタングス
 テンワイヤーに滴下し、乾燥させた後に電子線ホログラフィ顕微鏡に挿入した。アルミ
 ナ粒子はタングステンワイヤーに直接付着しており、ワイヤーに通電することによって
 高温に加熱した。

図6-8(a)、(b)、(c)にアルミナ粒子の一連の3波干渉パターンを示す。図6-8(a)、
 (b)、(c)はそれぞれの模式図である。図6-8(a)は室温における3波干渉パターンで
 ある。粒子は直接ワイヤーに付着しており、視野の下部にその陰が見える。上部空間に
 は約10本の等電位線が現れている。これは、ラテックス粒子の場合と同様に電子線照射
 による帯電で形成された電場である。図6-8(b)は1150℃に加熱した時の同視野の干
 渉パターンである。等電位線の本数は6本に減っている。このことは、帯電量が減少し
 ていることを示唆している。図6-8(c)はさらに1300℃に加熱して撮影したパターン

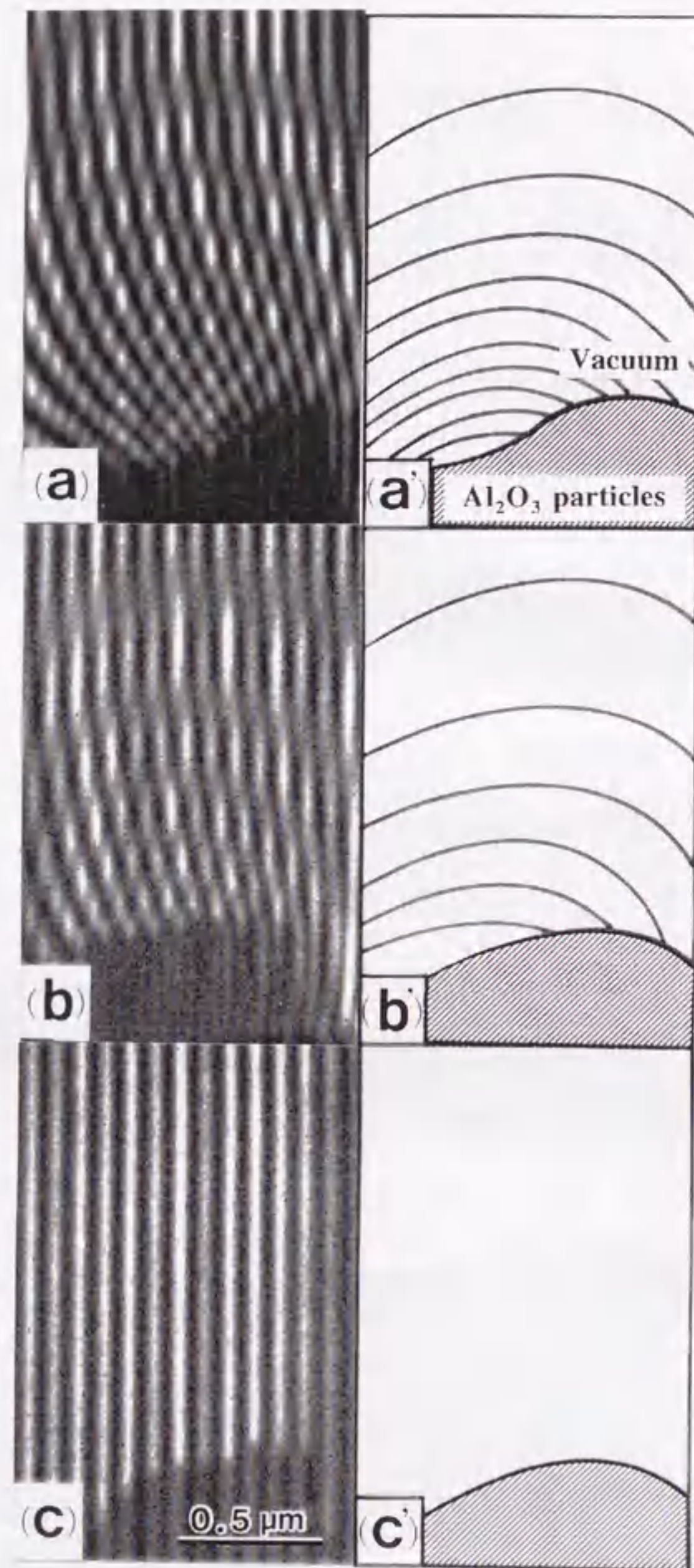


図6-8
 アルミナ粒子帯電状態の3波干渉法によるリアルタイム観察
 (a) 室温、(b) 1150°C、(c) 1300°C

である。ここでは等電位線は見られず、アルミナ粒子が導電体となっていることを意味している。一般に絶縁体は広いバンドギャップを持ち、伝導帯にはほとんど電子が存在しないために導電率が非常に低い。しかし、高温に加熱されると電子はボルツマン定数 $k=1.38 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}$ と絶対温度 T との積、 kT のエネルギーを得る。このため、十分な数の電子が伝導帯に存在するようになり、電気伝導率が増加する。

6.4.4 磁力線観察

第3章で詳しく記述したように、粒径の小さい磁性体粒子は単磁区構造をとる。本実験では3波干渉法でバリウムフェライト単磁区粒子の観察を行った。図6-9(a)にバリウムフェライト単磁区粒子の3波干渉パターンを示す。粒子の一端から出て反対側の一端に入る磁力線が図6-9(b)の模式図に示す様に観察される。

6.5 結言

本章では電場・磁場を透過型電子顕微鏡だけで直視する手法(3波干渉法)について記述した。要点は以下のとおりである。

- (1) 電場・磁場を通り抜けた電子波(物体波)にその両側から2つの平面波(参照波)を干渉させると、干渉縞の強度を変化させる形で物体波の位相分布が等位相線として現れる。これを行うには2本のパイプリズムを同時に使用する。
- (2) 干渉距離と電子源の見かけの干渉性をコントロールすれば、物体波の位相情報を含まない参照波同士の干渉縞は現れない。これが3波干渉法で電場・磁場を観察する最適条件である。
- (3) 3波干渉法を用いて直径約 $0.5 \mu\text{m}$ のラテックス粒子を観察した。電子線照射による粒子の帯電によって形成された空間の電位分布が観察された。また、観察された位相変化量 2π から、その帯電量が電子約400個分であることを算出した。
- (4) 電子線照射により帯電したアルミナ粒子近傍の電場の動的観察を行った。粒子を

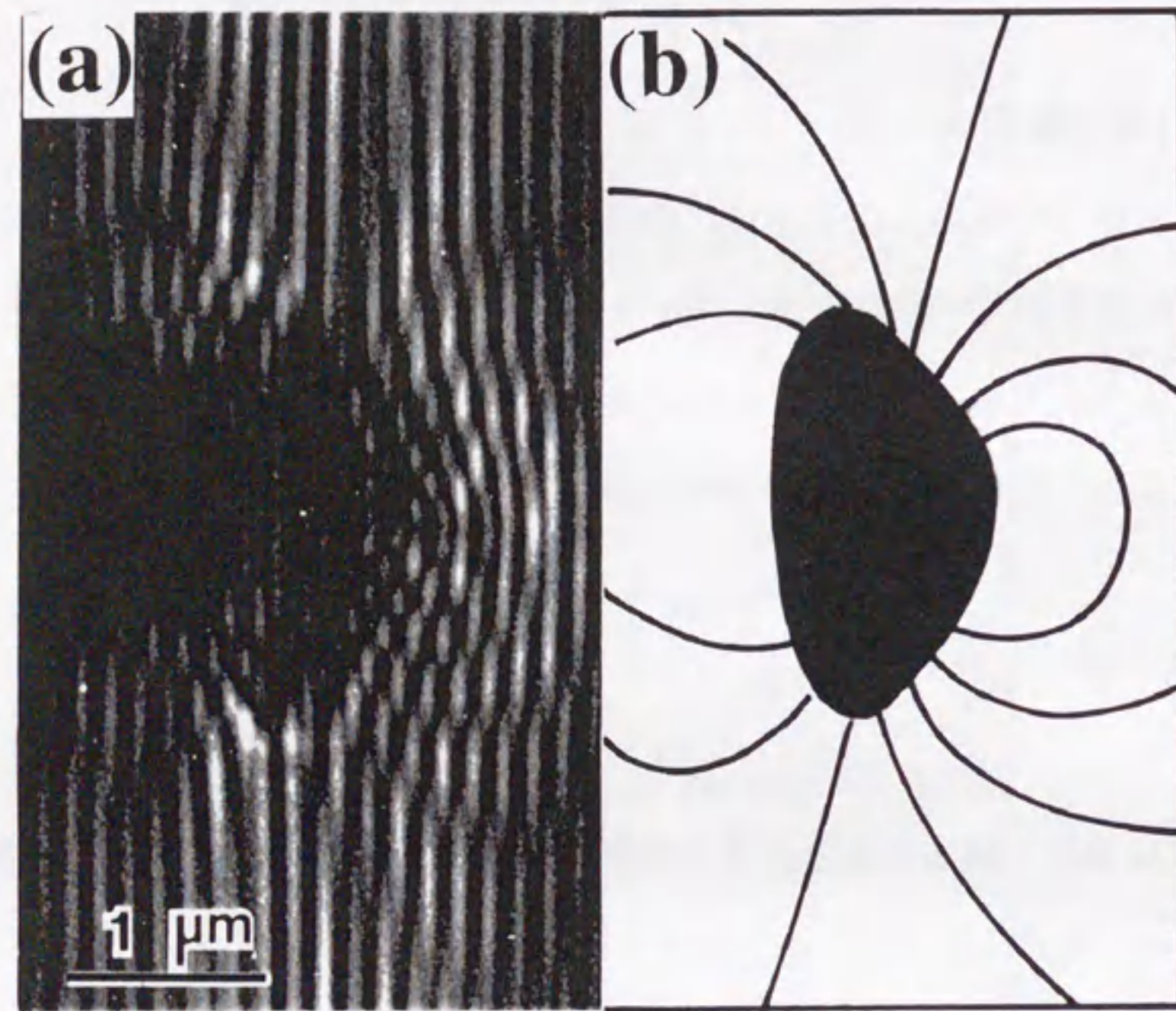


図6-9
3波干渉法によるバリウムフェライト単磁区粒子の観察
(a) 3波干渉パターン、(b) 模式図

加熱するに従って電場が弱くなり、やがて消滅する様子がリアルタイムで捉えられた。

- (5) 3波干渉法を用いてバリウムフェライト単磁区粒子近傍の空間磁場を観察した。
- (6) 本手法は電子顕微鏡だけで低い空間周波数を持つ位相物体を透過した電子波の等位相線を直視する技術である。今後、微小領域の様々な電磁気現象の観察と解明、特にリアルタイム観察が必要な時に大変役立つと考えられる。

参考文献

- 1) J. Chen, T. Hirayama, K. Ishizuka, A. Tonomura, *Opt. Rev.* 1 (1994) 304.
- 2) J. Chen, T. Hirayama, T. Tanji, K. Ishizuka and A. Tonomura, *Opt. Commun.* 110 (1994) 33.
- 3) J. Chen, T. Hirayama, G. Lai, T. Tanji, K. Ishizuka and Akira Tonomura, *Opt. Lett.* 18 (1993) 1887.
- 4) T. Hirayama, J. Chen, T. Tanji and A. Tonomura, *Ultramicroscopy*, 54 (1994) 9.
- 5) R. Buhl, *Die Naturwissenschaften* 48 (1961) 298.
- 6) C. Jösso, *Z. Phys.* 161 (1961) 454.
- 7) T. Kawasaki, G. F. Missiroli, G. Pozzi, and A. Tonomura, *Optik* 92, (1993) 168 .
- 8) T. Kawasaki, G. Pozzi, and A. Tonomura, *EUREM Proc. Granada, Spain* 1 (1992) 651.
- 9) T. Hirayama, T. Tanji and A. Tonomura, *Appl. Phys. Lett.* 67 (1995) 1185.
- 10) T. Hirayama, G. Lai, T. Tanji, N. Tanaka and A. Tonomura, *J. Appl. Phys.* 82 (1997) 522.
- 11) M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford, England, 1980) 6th ed., p. 485.
- 12) J. W. Goodman, *Statistical Optics* (John Wiley & Sons, New York, USA, 1985), p. 212.
- 13) S. Fu, J. Chen, Z. Wang, and H. Cao, *Optik*, 76 (1987) 45 .
- 14) G. Matteucci, G. Missiroli, J. Chen, G. Pozzi, *Appl. Phys. Lett.* 52 (1988) 176 .
- 15) M. Vanzì, *Optik* 68 (1984) 319 .
- 16) B. Frost, L. F. Allard, E. Völkl, and D. C. Joy in *Holography of Electrostatic Fields: Electron Holography*, edited by A. Tonomura, L. F. Allard, G. Pozzi, D. C. Joy, and Y. A. Ono (Proc. of the International Workshop on Electron Holography, Knoxville TN, 1994), p. 169.

第7章 結論

7.1 本研究の成果

電子線ホログラフィによる電子波の位相計測には、通常の透過電子顕微鏡では高いコントラストで結像されない電場・磁場などの低い空間周波数を持つ位相物体を定量的かつトポグラフィックに観察できるメリットがある。このため、AB効果の検証¹⁻⁵⁾のように物理学の基礎的研究において大きな貢献をしたばかりでなく、新しい機能材料の研究や近年益々微小化する半導体素子、磁気記録素子などの研究開発において絶大な威力を発揮するポテンシャルを有している。しかしながら、電子線ホログラフィは透過電子顕微鏡技術を基本的としているにもかかわらず、電場・磁場観察時の実質的空間分解能は透過電子顕微鏡の分解能に比べて2桁以上悪かった。この理由は位相計測の感度が悪い点にあった。この計測技術をより広い分野で利用価値の高いものにするためには、位相計測感度を向上させる必要に迫られていた。本研究の目的の一つは、

- (1) 磁場（磁力線）観察の分解能と計測感度を一層向上させ、微小領域に特別に発現する磁気的現象などを探るとともに、それらの結果を材料科学やデバイス開発などの実用的分野に役立てる

ことであった。

電子線ホログラフィの第2の問題は、ホログラフィが2段階の結像方法であるためにリアルタイム観察が極めて困難なことであった。そこで、本研究の第2の目的を

- (2) 実時間電子線ホログラフィを実現し、動的観察のデモンストレーションをおこなう

こととした。

また、光ホログラフィにおいては1枚のホログラムから立体像が再生されることが常識になっているのに対し、電子線ホログラフィでは立体像が再生された例はなかった。

もし、立体情報が得られれば材料科学、医学など多くの分野で貢献する可能性が非常に高いと考えられた。そこで、本研究の第3目的を

(3) 物質や場の3次元再構成を行う手法(アルゴリズム)を開発し、その有効性を示す

とした。

さらに、

(4) 2段階結像法であるホログラフィの概念を越えて電子顕微鏡だけで可能な電子波位相計測法を開発し、電場・磁場観察に応用する。

ことを第4の目的とした。

以上の目的をもって研究を行った結果、以下に記述する成果を得ることができた。

(1-1) 電子顕微鏡で磁性体を観察しようとする時、対物レンズの強い磁場により試料の磁区構造が変化してしまうことを防ぐために、対物レンズ電流を切って観察する「レンズOFF法」を採用したり、試料位置での磁場が非常に弱い「磁気シールドポールピース」を導入したりして、ホログラム撮影法を改良した。また、像再生においてはバイブリズムのフレネル縞によるノイズや電子レンズの歪みなどのシステムティックエラーを除去する画像解析技術を開発した。

(1-2) 粒径約1 μm のバリウムフェライト単磁区粒子を初めて干渉顕微鏡像で直接観察した。また、この粒子の干渉顕微鏡像を理論的に求めて実験像と比較し、観察された粒子が単磁区であることを証明した。

(1-3) ガス中蒸発法で生成した連鎖状鉄超微粒子の干渉顕微鏡像からこれら粒子が単磁区であることを示した。

(2-1) 液晶素子を用いてホログラフィ電子顕微鏡とマッハツェンダー干渉計を電気

的に結合させ、オンラインリアルタイム電子線ホログラフィシステムを作製した。このシステムによって、実験者はホログラムと干渉顕微鏡像の両方を観察しながら電子顕微鏡を操作することができるようになった。

(2-2) 上記システムにより、パーマロイ薄膜の磁壁や磁区内の磁化方向の変化を実時間で観察した。今まで模式図で説明されていた磁化過程、消磁過程、残留磁化の起源などの基本的な現象が明瞭に観察された。

(2-3) バリウムフェライト単磁区粒子を電子顕微鏡内で加熱し、キュリー点付近で磁力線の様子が変化する様子を実時間観察した。この実験でバリウムフェライト単磁区粒子のフェリ磁性-パラ磁性転移が初めて観察された。

(3-1) 光のホログラフィでは立体情報がホログラムに記録されるが、電子線ホログラフィでは立体情報が記録されない理由を明らかにし、電子線ホログラフィにComputed Tomography (CT) の手法を取り入れて微小領域の電場・磁場の3次元再構成アルゴリズムを構築した。電位はスカラー量であるので既存のCT手法の一種である逐次近似法を用いた。磁場はベクトル量であるので既存のCT手法では3次元再構成はできないが、互いに垂直な2つの直線を軸として試料を傾斜させることにより磁場を1成分ずつ再構成できることを見出した。このことを利用して、投影切断面定理に基づくフィルター補正逆投影法を基本とした磁場の3次元再構成アルゴリズムを構築した。

(3-2) 粒径約0.1 μm のラテックス粒子の内部電位分布の3次元再構成を行った。粒子の形状やポテンシャル分布を等高線像や鳥瞰図として表示した。

(3-3) バリウムフェライト単磁区粒子近傍の磁場の3次元再構成を行った。観察領域全体のあらゆる位置における磁場が求められた。

(4-1) 2段階結像法であるホログラフィの欠点を克服するために、電子顕微鏡だけで電場・磁場を直視する3波干渉法を考案した。この方法においては、物体

波に対しその両側から2つの参照波を2本のバイプリズムを使って導入した。位相情報は干渉縞のコントラストの変化として現れることを数学的に明らかにした。

(4-2) 電子線照射によって帯電した粒径約 $0.5 \mu\text{m}$ のラテックス粒子のまわりの電場分布を3波干渉法を用いて直接観察した。観察された位相変化から粒子の帯電量を算出した。アルミナ粒子近傍の電場の動的観察においては粒子を加熱するに従って電場が弱くなり、やがて消滅する様子がリアルタイムで捉えられた。バリウムフェライト単磁区粒子周辺の磁力線も直接可視化することができた。

以上のように、本研究による電子線ホログラフィ技術の進歩によって微小領域の電場・磁場の計測・観察がより高感度、高精度でできるようになった。また、3次元再構成によってより多くの情報が得られるようになり、3波干渉法によって低い空間周波数を持つ位相物体を電子顕微鏡のみで直接可視化する道が開けた。これら手法は将来多くの材料研究やデバイスの開発評価、さらには一部の生物試料の研究や医学への展開など様々な応用が期待される。

7.2 将来展望

この節では、本研究の成果を考慮し、今後この研究の展開または展望として考えておくべきことをまとめたいと思う。本研究による電子波干渉技術の進歩によって微小領域の電場・磁場を計測する幾つかの新しい道が開け、様々な応用が期待される。この技術をより実りある方向に活用するには、まず、

(1) 材料研究、デバイス開発、生物研究、医療研究など実用的研究開発を行っている

人々と共同で、電子波干渉技術を広く応用する努力を継続すること

である。電子波干渉は電界放射型電子銃や電子線バイプリズムなど特殊な装置や実験技術を必要とするため、研究人口は世界中でもわずか数十人である。その多くの人々は物理学の研究者であり、この実験はまだ実用的分野に大きく貢献しているとはいえない。異分野に飛び込み、この研究分野のすそ野を広げて行けば活用できる場面は無数にあると考えられる。

電子波干渉技術のさらなる進化の方向の一つは、

(2) 位相計測感度をもう1桁向上させ、数 nm レベルの磁性体粒子の磁化状態を観察するレベルに達する

ことである。本研究によって、 μm オーダーから数十 nm オーダーの磁性粒子の磁区観察が可能になったが、数 nm レベルまで可能になれば、超常磁性^{6, 7)} やトンネル効果による磁化反転など⁸⁾ のメゾスコピック物理に役立つ有力な手法となりうる。このためには、縞走査法による電子線ホログラフィ⁹⁻¹²⁾ など高感度位相計測法のさらなる発展が期待される。

電子波干渉技術のもう1つの進化の方向として

(3) 振幅分割型干渉法を利用した電子波位相計測法の発展

を挙げることができる。これまでの電子波の干渉実験で主として行われてきた電子線バイプリズムによる干渉は、波面分割型干渉の1種である。波面分割型干渉では、良く知られているように電子源の高い干渉性が必要である。このために約10年の歳月を費や

して電界放射型電子銃が開発された。いまでは市販機もあり、利用できる研究者の数はかなり増加した。しかし、いまだに大変高価な装置でありその数は限られている。また、 $10\mu\text{m}$ 以上の広い領域の観察を行う場合には干渉性や輝度は十分ではない。このような問題は、振幅分割型干渉においては基本的に解決される。適当な格子定数と適当な厚さの結晶薄膜を電子線に対するビームスプリッターにすれば、透過波と回折波の2つの可干渉な波を容易に作り出すことができ、ホログラフィに利用できる。もともと、格子像とは透過波と回折波の振幅分割型干渉による縞である。この基礎実験は金単結晶膜を使ってすでになされている^{13, 14)}。しかし、薄膜の結晶性はまだまだ改善の余地がある。半導体的手法で高度に制御された結晶薄膜を作製して電子顕微鏡内における干渉方法を工夫すれば、電子波干渉技術がはるかに多くの人々の手に届く技術となろう。

最後に干渉現象を研究対象とする者としての夢についてふれておきたい。今世紀はじめに産声をあげた量子力学の観測問題においては、未だ不確定性の本質に関する議論が続いており、解決の見通しは立っていない。今日の物理学は我々が人間として日常経験することを直感的に理解するレベルを遥かに越え、特別に訓練された人々の理念の奥みに存在する形而上学的法則に昇華してしまった感がある。電子波干渉実験が今後この分野のさらなる発展に貢献できるかは定かでないが、その糸口である「干渉」という不可解な現象の奥に真理が潜んでいることは間違いない。電子波干渉実験を行う理由が物理学であれ材料科学であれ、干渉現象を心の目で見続ける必要がある。考えても考えても解けない問題の答えは、しばしば澄んだ瞳で観察することから得られる。

参 考 文 献

- 1) G. Möllenstedt and W. Buhl, Z. Phys. 169 (1962) 492.
- 2) A. Tonomura, T. Matsuda, R. Suzuki, A. Fukuhara, N. Osakabe, H. Umezaki, J. Endo, K. Shinagawa, Y. Sugita and H. Fujiwara, Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 1443.
- 3) A. Tonomura, H. Umezaki, T. Matsuda, N. Osakabe, J. Endo and Y. Sugita, Phys. Rev. Lett. 51 (1983) 331.
- 4) A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo S. Yano and H. Yamada, Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 792.
- 5) N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, A. Tonomura, S. Yano and H. Yamada, Phys. Rev. A. 34 (1986) 815.
- 6) C. P. Bean, J. Appl. Phys. 26 (1955) 1381.
- 7) E. Kneller, Z. Phys. 152 (1958) 574.
- 8) E. M. Chudnovsky and L. Gunther, Phys. Rev. Lett. 60 (1988) 661.
- 9) Q. Ru, J. Endo, T. Tanji and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett. 59 (1991) 2372.
- 10) Q. Ru, J. Endo, T. Tanji and A. Tonomura, Optik 92 (1992) 51.
- 11) G. Lai, Q. Ru, K. Aoyama and A. Tonomura, J. Appl. Phys. 76 (1994) 39.
- 12) Q. Ru, G. Lai, K. Aoyama, J. Endo and A. Tonomura, Ultramicroscopy 55 (1994) 209.
- 13) Q. Ru, J. Appl. Phys. 77 (1995) 1421.
- 14) 茹 慶新、外村 彰、応用物理 63 (1994) 932.

謝 辞

本論文をまとめるにあたりご指導いただきました名古屋大学工学部、坂田 誠教授、田中信夫助教授、水谷宇一郎教授に厚く御礼申し上げます。筆者の研究活動の初期から研究のご指導激励を頂きました故名古屋大学上田良二名誉教授に深く感謝いたします。本研究を進めるにあたり終始親切なご指導とご助言を賜りました新技術事業団外村位相情報プロジェクト総括責任者、日立製作所基礎研究所主管研究長、外村 彰博士、同プロジェクト計測・観察グループリーダー、丹司敬義博士（現在、名古屋大学理工科学総合研究センター助教授）に深く感謝いたします。同プロジェクトで貴重な助言、研究協力をいただきました石塚和夫博士、遠藤潤二博士（現在、日立製作所基礎研究所主任研究員）、長我部信行博士（現在、日立製作所基礎研究所主任研究員）、茹 慶新博士（現在、真空冶金株式会社）、来 関明博士（現在、静岡大学工学部助教授）、陳 軍博士（現在、科学技術振興事業団山本量子ゆらぎプロジェクト研究員）、Rodney Herring 博士に感謝します。東北大学、後藤公美名誉教授と東北大学科学計測研究所、桜井伴明氏には貴重なバリウムフェライト粒子を提供して頂き、磁性体に関する多くのご助言を頂きました。深く感謝いたします。また、理論に関しては日立製作所基礎研究所、福原 明博士に多くのご示唆をいただきました。厚く御礼申し上げます。磁気シールドポールピースの作製等につきましては、日立製作所計測器事業部の富田正弘氏、佐藤雄司氏には多大なご協力を頂きました。心より御礼申し上げます。（財）ファインセラミックスセンターでは主管主席研究員、幾原雄一博士（現在、東京大学工学部助教授）に貴重な助言をいただきました。深く感謝いたします。

