

報告番号	※ 第 17052 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 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

氏 名 川崎 猛

論 文 内 容 の 要 旨

A.V. Crewe らにより開発された電界放出電子銃 (Field Emission Electron Gun: FE 電子銃) はタングステンチップの先端を電解研磨により先鋭化し、対抗電極との間に電界をかけることにより、チップ先端に高電界を集中し、トンネル効果で電子を真空中に引き出す方式の電子銃である。この電子銃は、従来のフィラメントを加熱して熱電子を引き出す熱電子銃と比べて、輝度が 1000 倍も高く、光源径が 5 nm 程度、エネルギー幅も 0.3 eV 程度と単色性がよい。しかしこの電子銃を安定させて使うには 10^{-8} Pa 程度の超高真空中で動作させなければならない。Crewe らはこの電子銃を用いた電界放出型走査透過電子顕微鏡 (Field Emission Scanning Transmission Electron Microscope: FE-STEM) により 1970 年にはすでにトリウム単原子の観察をおこなっている。現在では FE-STEM を使った電子エネルギー損失分光法 (Electron Energy Loss Spectroscopy: EELS) が盛んにおこなわれており、極微小領域の元素分析、電子状態評価により材料開発等で学術、産業に大きく貢献している。

一方日本では日立製作所が Crewe の技術指導のもと 1972 年に電界放出型走査電子顕微鏡 (Field Emission Scanning Electron Microscope: FE-SEM) を開発した。これはそれまでの熱電子銃をもちいた SEM の分解能が 10 nm 止まりであったのを 5 nm へと飛躍的に向上させた。以後現在まで技術改良が続けられ、特に in-lens 方式の対物レンズの使用により FE-SEM の分解能は加速電圧 30kV で 0.4 nm に達している。

1968 年に透過電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM) を使って電子線ホログラフィーの研究を開始した日立製作所中央研究所の外村らは、この FE 電子銃の輝度の高さに着目して電界放出型透過電子顕微鏡(Field Emission Transmission Electron Microscope: FE-TEM)を開発することにした。Gabor が発明したホログラフィーはレーザーにより光学分野で先に実用化されたが、当初は電子顕微鏡の球面収差を補正し最終的に 0.1nm 以下の高分解能を得ることを目的としていた。電子線ホログラフィーでは試料を透過した電子波と試料近傍の真空中を透過した波を干渉させて電子顕微鏡写真(電子線ホログラム)を撮り、次にこの電子線ホログラムにレーザー光をあて、または計算機処理することにより、試料を透過した電子波の波面を再生する。しかしポイントフィラメントの熱電子銃方式の TEM では、ホログラフィーに必要な電子波の干渉性が不足しており電子線ホログラムが撮影できなかった。これは結局のところ電子源の輝度の高さに帰着する。そこで外村らは 1983 年までに加速電圧 50kV から 200kV まで順次加速電圧の高い FE-TEM を開発し研究を進めた。電子線ホログラフィーでは試料内部および近傍の電磁場分布が電子線ホログラムに干渉縞の曲がりとなって写真に記録されるのでホログラムを再生することにより試料内部および周辺空間の磁場分布、試料厚さなどを可視化することができることがわかり、磁気ヘッドや磁気バブルメモリ、磁気テープに記録された磁化など、サブミクロン領域の磁場分布の可視化を実現、電磁場のベクターポテンシャルの実在を証明する Aharonov-Bohm 効果の実験など成果があがっていた。一方ドイツではチュービンゲン大学の H. Lichte を中心に高分解能ホログラフィーについての研究が行われ、対物レンズの球面収差を補正して 0.1nm 分解能を得るためのホログラムの撮影条件などが明らかにされた。またイタリアのボローニャ大学では G. Pozzi らは半導体の PN 接合の周辺の空間静電場の観察をおこなって、その後のホログラフィーによる半導体観察のさきがけとなった。以上を背景として筆者は外村の研究グループに属して、電子線ホログラフィーの性能向上のために、加速電圧 300kV、1MV の FE-TEM の開発と応用研究を 1985 年から 2000 年にかけておこなった。本論文はこの間の研究をまとめたものである。

300 kV (最高 350kV) FE-TEM 開発では分解能、透過能、輝度をあげて、電子線ホログラフィーによる球面収差補正で電子顕微鏡の従来の限界を超えること、および

超伝導磁束量子をホログラフィー観察することを目的とした。加速電圧が 300 kV になると絶縁距離をとるために加速管を長くすることが必要になる。相対論的加速電圧に比例して輝度（軸上輝度）は増加する。しかし収差の影響も含む平均輝度は、長い加速管の静電レンズとコンデンサーレンズの収差増大で低下する恐れがある。しかし収差を減らすために電子源での取り込み角を小さくするとプローブ電流が減少してしまう。そこで電子源近傍に磁場を重畳してビームを集束し、加速管静電レンズの収差を低減する磁界重畳型電界放出電子銃を開発した。1990 年に装置が完成し、輝度測定、格子分解能測定をおこなって基本性能を確認した。その結果電子源直下で磁界レンズを動作させることにより照射系の収差を低減することができ、 1.4×10^9 A/cm²sr（10μA トータルエミッション）の輝度が得られた。これは従来型の 300kV-FE-TEM にくらべ 4.8 倍の高輝度である。この装置を使って格子分解能の最高記録（55 pm）を得た。さらに五酸化ニオブ(H-Nb₂O₅) とインジウムリン(InP)の高分解能ホログラフィー実験をおこない、原子レベルの位相像、スルーフォーカス像の再生、球面収差補正再生位相像を得た。1 枚の電子顕微鏡写真からでは困難な、インジウムとリンの異種原子カラムの同定が球面収差補正再生位相像の位相ずれを計測することにより可能であることを示した。

1995 年には、高温超伝導体中の磁束量子観察を目的とした科学技術振興事業団の CREST プロジェクト「電子波の位相と振幅の微細空間解像」がスタートし、筆者はこのプロジェクトで 1MV 電子波干渉型電子顕微鏡の開発をおこなった。電子波を干渉させて電子線ホログラフィーをおこなうための電子線バイプリズムという装置が電子顕微鏡に組み込まれているので電子波干渉型電子顕微鏡と命名されている、1MV-FE-TEM をベースとした装置である。この場合も 1MV 加速管が長大であり、加速管静電レンズの収差を抑えるために磁界重畳型電界放出電子銃の使用が必須である。この装置は 3 タンクケーブル結合方式の超高压電子顕微鏡で、耐振動構造大型加速管、超高安定高電圧電源（リップル・安定度 0.5 ppm/min）、磁界重畳型電界放出電子銃による高輝度照射系、空間光伝送による電子銃制御など新規開発技術を使った。2000 年に装置が完成し電子顕微鏡の基本性能評価として輝度と格子分解能測定をおこない、それぞれ 1.8×10^{10} A/cm²sr と 50 pm という世界最高値を達成することができた。筆者が関与したのはここまでであるが、その後この装置で応用研究が行わ

れ、今まで明瞭でなかった高温超伝導体の磁束量子の特異なふるまいが直接観察できるようになった。

第1章の序論では本研究の歴史的背景と研究目的、研究経過を述べ、本論文の概略を説明した。第2章では、第3章以降に述べる技術開発の内容を理解するために電界放出や収差など電子光学の基礎事項をまとめた。第3章では300 kV磁界重畳型電界放出電子顕微鏡の開発について説明した。特に磁界重畳型電界放出電子銃の選択とそれを用いた照射系の収差計算や電子顕微鏡の高圧電源構成などについて詳述した。第4章では第3章で開発した電子顕微鏡の基本性能評価と電子線ホログラフィーでの応用研究の結果を述べた。内容は輝度測定、格子分解能、高分解能電子顕微鏡法および電子線ホログラフィーの概論と高分解能ホログラフィーによるインジウムリンの位相像からの原子種同定などである。第5章では1MV電子波干渉型電子顕微鏡の開発について、その構想から装置の詳細と、完成した電子顕微鏡の基本性能評価について述べた。第6章では結論として本論文の総括を述べ、将来展望を述べた。