

電界放射形電子顕微鏡による電子線ホログラフィー

Electron Holography with a Field Emission Electron Microscope

最近、電子顕微鏡の性能は、原子分子の観察ができるほどに進展したが、技術的限界に突き当たり、ここ10年間分解能向上は見られなかった。日立製作所はこの状況を打破するために、電界放射形電子顕微鏡を開発した。この電子線は干渉性が優れているため、電子レンズの色収差^{*1)}の効果が減少し0.062nmの格子分解能記録が得られ、更に従来に比べ桁違いに多い3,000本のバイプリズム干渉縞が観測されるに至った。これにより電子線ホログラフィーが実用的に使える段階になった。ホログラフィー技術の利用により、電子レンズの球面収差^{*1)}を光学的に補正できることが示され、点分解能向上への道が開けた。次いで干渉顕微鏡も実現され、微粒子の外形決定に有効に使えることが示された。

外村 彰* *Tomomura Akira*
 松田 強** *Matsuda Tsuyoshi*
 遠藤潤二** *Endō Junji*
 菰田 孜* *Komoda Tsutomu*

1 緒 言

電子顕微鏡の分解能は、約10年前までは年々向上を続けていたが、その時点を境に最近では本質的な進展はほとんど見られなくなった。他方、原子の尺度での現象解明の要求は、実現の可能性を示唆する二、三の実験がなされた¹⁾こともあり、生物、物理、化学などのあらゆる分野で増大しつつある。それらの要求を満足させるためには、更にもう一步の装置性能の向上が必要である。しかし、極限に達した状態からのもう一步であるため、従来技術の延長では実現できそうになく、なんらかの新たな技術が生まれなければならないと考える。

日立製作所は、この難関を電子線ホログラフィーと呼ばれる新しい手法の導入によって解決することを目指し、技術飽和の兆しのみられた約10年前からその基礎実験を手がけてきた。すなわち、昭和43年に電子線ホログラフィーに成功した²⁾のを機に、電子顕微鏡の性能の飛躍的向上を図ったが、その再生像の分解能は電子線の干渉性不足のため、電子顕微鏡像にすら及ばなかった。それから約10年を経た今日、新たに試作した電界放射形電子顕微鏡³⁾によって、電子線ホログラフィーが実用的に使える域にまで干渉性を高めることができた。こうして電子顕微鏡の性能を再び向上させる見通しが得られた。更に、それだけにとどまらず、これまでの電子顕微鏡にはなかった新たな機能(立体観察、位相差顕微鏡、干渉顕微鏡など)が実現でき、従来の電子顕微鏡の枠を越えた可能性が開けるものと期待される。

2 電界放射形電子顕微鏡

新たに開発した電子顕微鏡は日立HU-12A形電子顕微鏡を基体として、電界放射形電子銃及び電子線バイプリズム⁴⁾を取り付けたものである。図1にその外観を示す。電界放射形電子銃は、これまでに世界中で何台も試作されてきたが、電

子顕微鏡の性能向上にまで結びついた例はなかった。これは電界放射形電子銃本来の優れた特性を十分に生かしていなかったためと思われる。そこで日立製作所は、特に電子銃と照射系の安定化に意を尽して開発を行なった。図2に電子

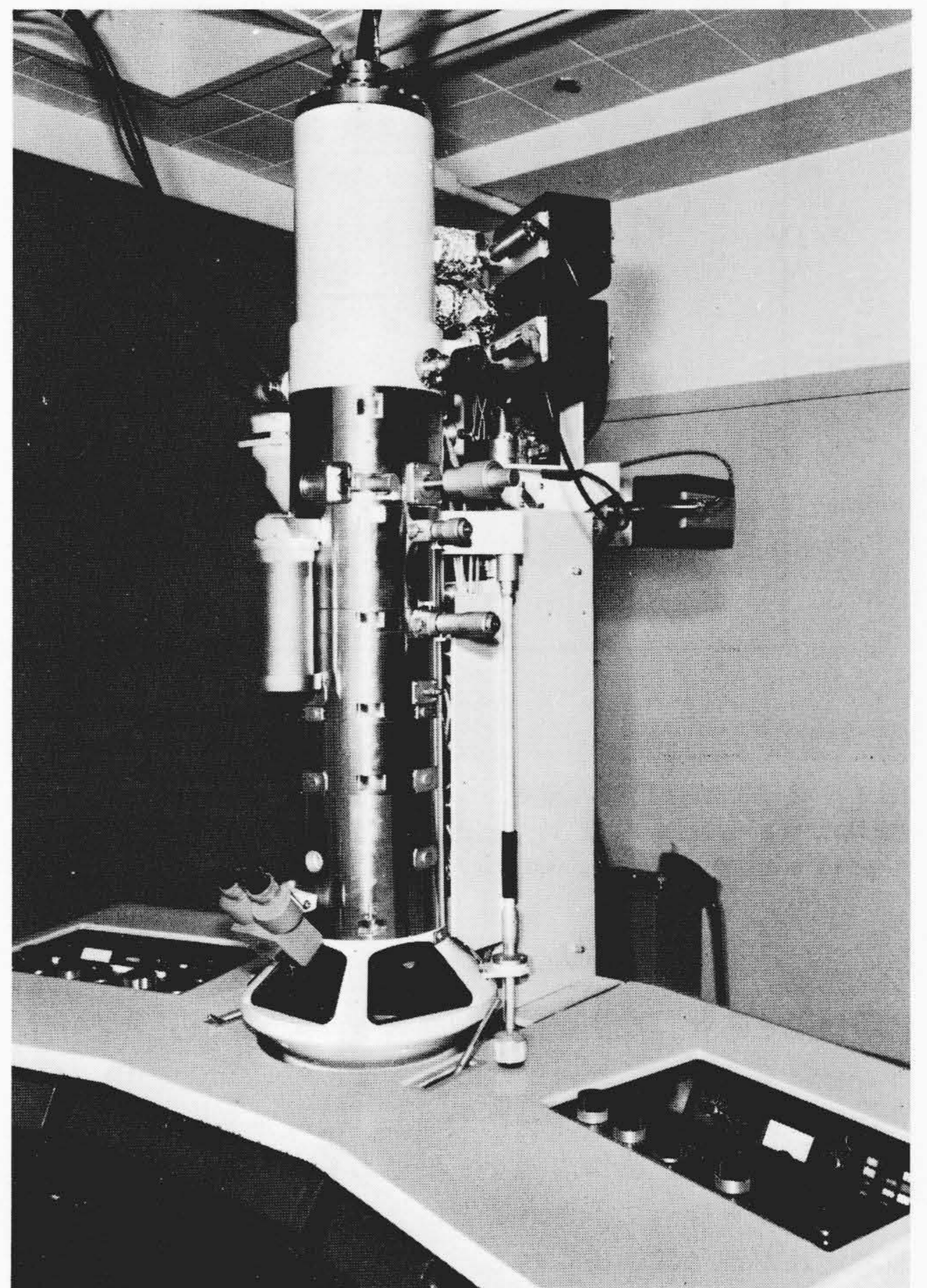


図1 電界放射形電子顕微鏡の外観 日立HU-12A形電子顕微鏡を基体とし、新形の電子銃及び電子線バイプリズムが設置されている。

※1) 理想的な電子レンズでは、一点から出たエネルギーのそろった電子は一点に焦点を結ぶ。しかし、いかに精度よく製作しても実際には焦点にずれを生じ、このずれは光学系同様収差と呼ばれる。電子顕微鏡の場合、光の波長の相違による色収差、レンズ通過部分の相違による球面収差が分解能を決定する要因となっている。

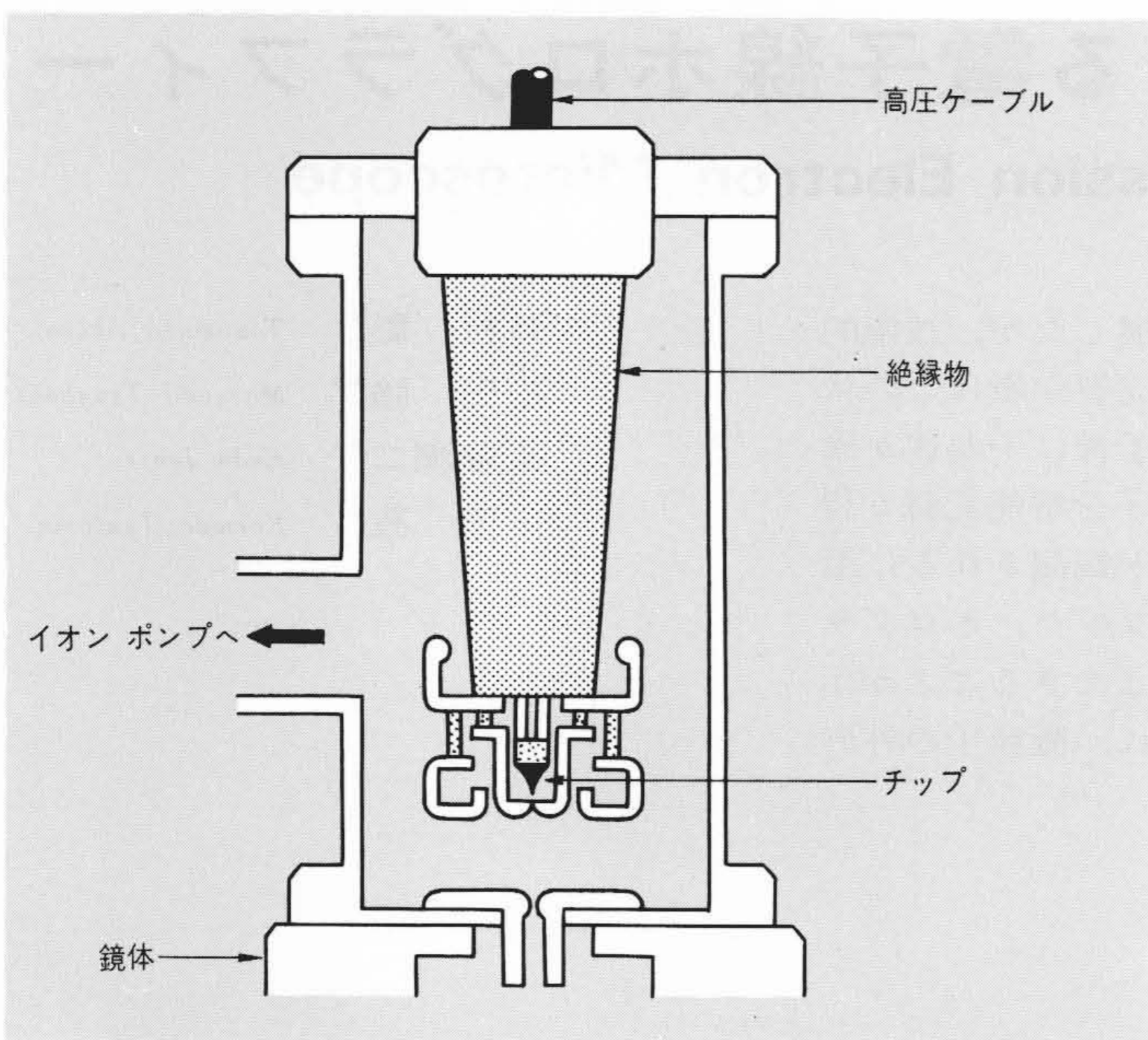


図2 電界放射形電子銃の構造 電子銃室はイオンポンプにより超高真空中に排気される。中央部に設置されたチップに数キロボルトの電圧を印加して、電子線を引き出す。

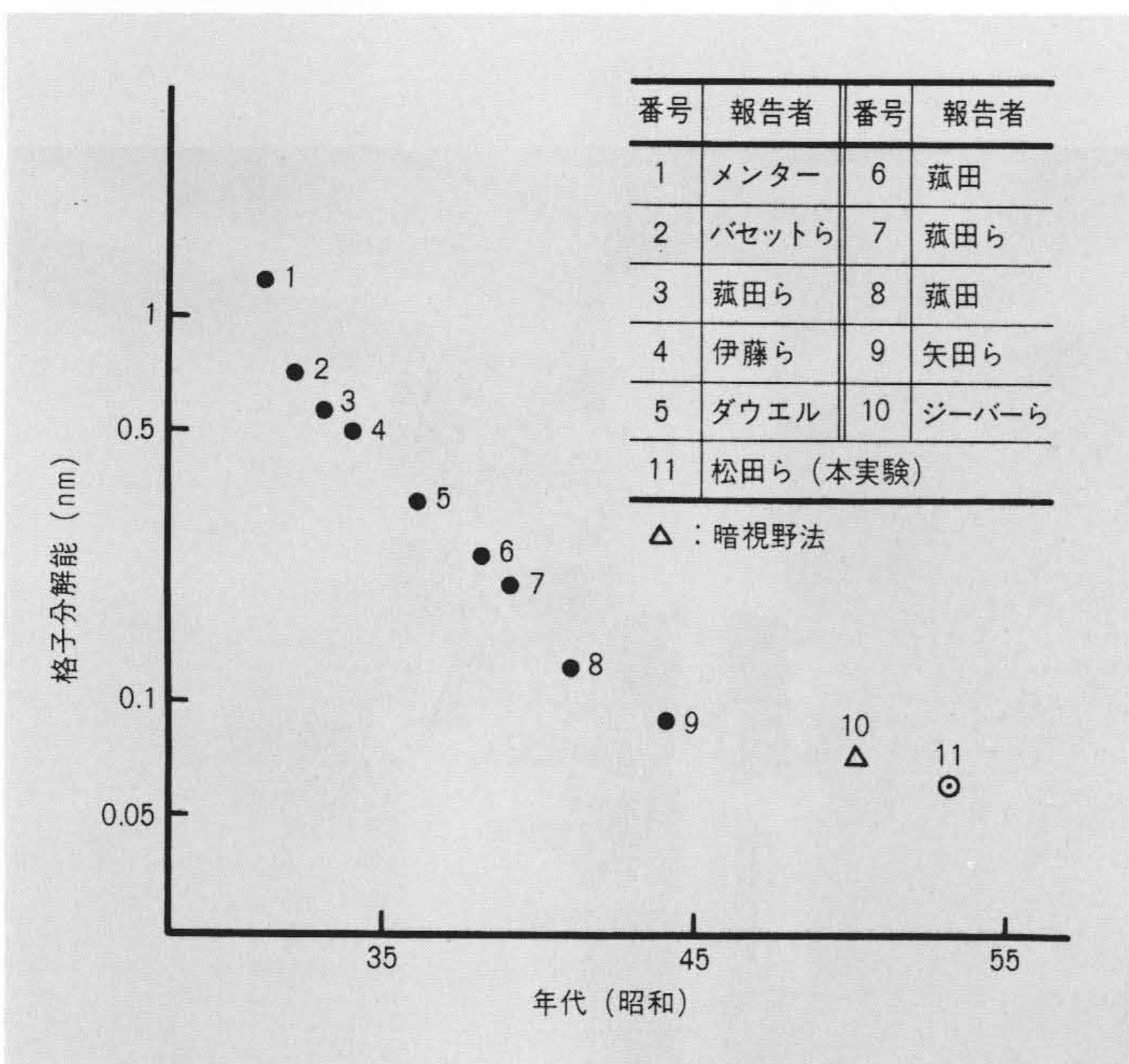


図3 格子分解能記録の歴史 分解能は年々向上を続けてきたが、昭和44年に進展がとだえてしまった。この装置によって、10年ぶりに分解能記録を更新する0.062nmの格子像が得られた。

銃の構造を示す。電子銃室は超高真空中に排気され、その中心部にタングステンのチップが設置されている。このチップに高電圧をかけ、そのとがった先端部に強電界を集中させて電子線を引き出す。動作温度が室温であることと、光源が数ナノメートルと極めて小さいことにより、単色性・高輝度性の面で優れた電子線が得られる。

この電子線が、電子顕微鏡の性能に与える影響について次のように考察した。電子顕微鏡の性能は約10年前までは年々向上を続け、このままいけば近い将来、分子内の原子配置までが観察できるような期待を抱かせた。ところが、図3に示したように、昭和44年に0.1nmをわずかにきる格子分解能記録

が得られて⁵⁾以来、ここ10年間格子分解能の更新はなされなかった。これは、レンズ収差がほぼ技術的限界に達したことが原因である。この格子分解能の限界は、電子線のエネルギー幅に基づく色収差によって抑えられている。今回開発した電子顕微鏡では、エネルギー幅が0.3eVと従来の $\frac{1}{3}$ に小さくなったため、金の{2 2 0}面の $\frac{1}{2}$ 間隔格子像($\frac{d}{2}=0.072\text{nm}$)やニッケル{2 2 0}面の $\frac{1}{2}$ 間隔格子像($\frac{d}{2}=0.062\text{nm}$)を解像できるようになった。図4に0.062nmのニッケル格子像を示した。0.062nmは電子顕微鏡で観察できた最も小さな距離である。このようにして、色収差の減少によって格子分解能の向上が果たされたが、点分解能を改善するためには、もう一つの収差である球面収差を除く必要がある。そのための最も有力な手法として、日立製作所は電子線ホログラフィーを選んだ。この手法を実現するためには、光レーザのように干渉性の良い電子線が必要である。電子線で干渉縞を観察するのは容易なことではない。それでも、特殊な技術を駆使し、全体で200本ほどのパイプリズム干渉縞が撮影されている⁴⁾。電界放射形電子顕微鏡を用いると、これまでと桁違いに多い3,000本の干渉縞が得られるまでに干渉性が向上した。これにより、電子線ホログラフィーに必要な基盤技術がほぼ達成された。

3 電子線ホログラフィー

電子線ホログラフィーは、電子線でホログラムと呼ばれる干渉模様を乾板上に記録し、それにレーザ光をあてて拡大立体像を再現する結像手法である。電子顕微鏡でのホログラムの作り方を図5に示す。対物レンズと中間レンズの間に、電子線パイプリズムを設ける。これは、中心の細いワイヤと両側のアース電極から構成されているが、この片側を通るビームを参照波とし、他方に物体波を通す。ワイヤに印加された正の電位によって両側を通る電子線は引き寄せられ、下方で重畳して干渉模様を生ずる。これを拡大してフィルムに撮影しホログラムとする。実際のホログラムを図6に示す。試料はMgO(酸化マグネシウム)微粒子である。ホログラムの一部を拡大すると、干渉縞から成っていることが分かる。このホログラムにレーザ光をあてると、回折光の中に再生像が浮かび上がってくる。このホログラフィーの手法を使うと、点分

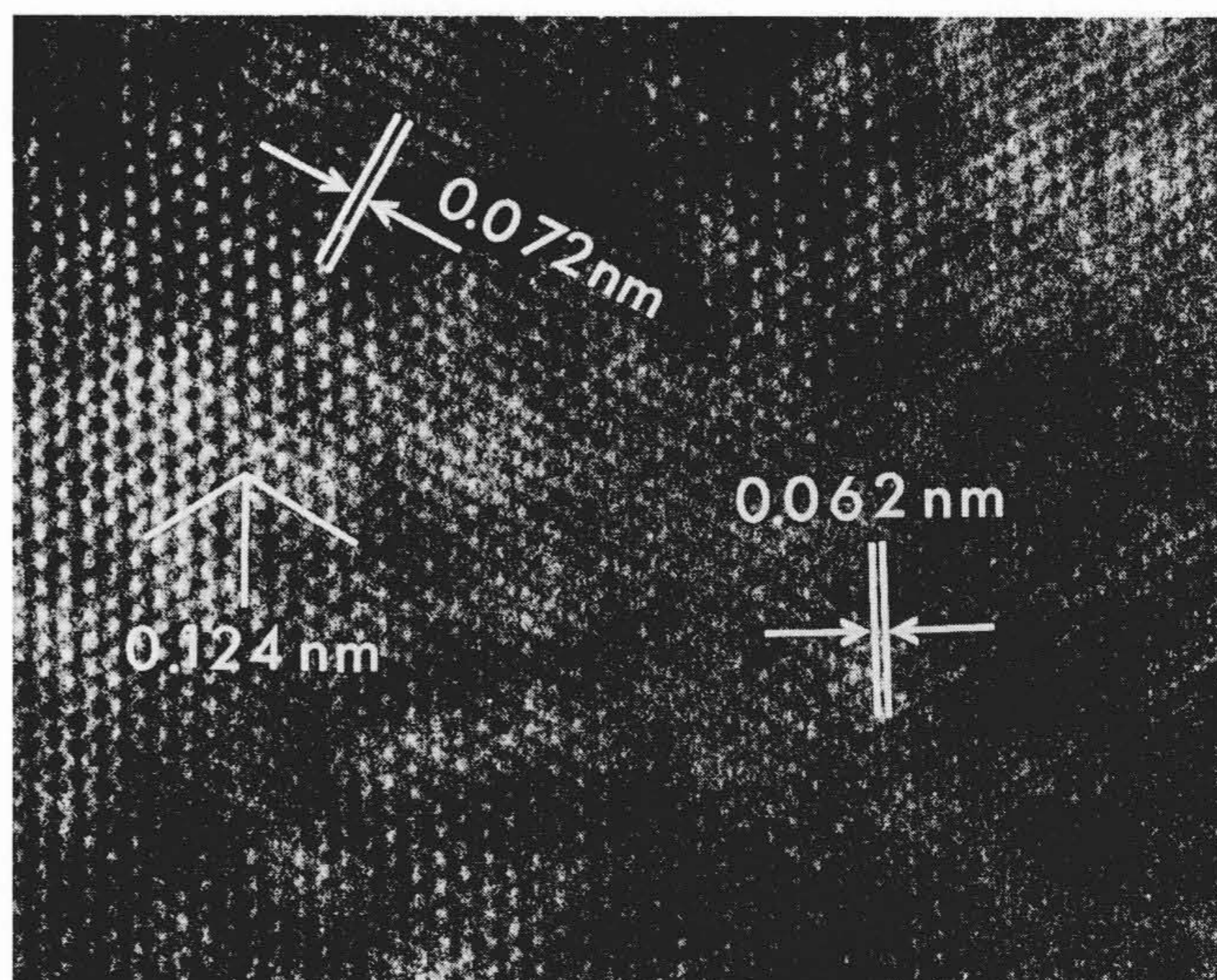


図4 ニッケル薄膜の格子像 電子線の単色性の向上により、電子レンズの色収差によるぼけが減少し、0.062nmのニッケル{2 2 0}面の $\frac{1}{2}$ 間隔格子像が観察できた。

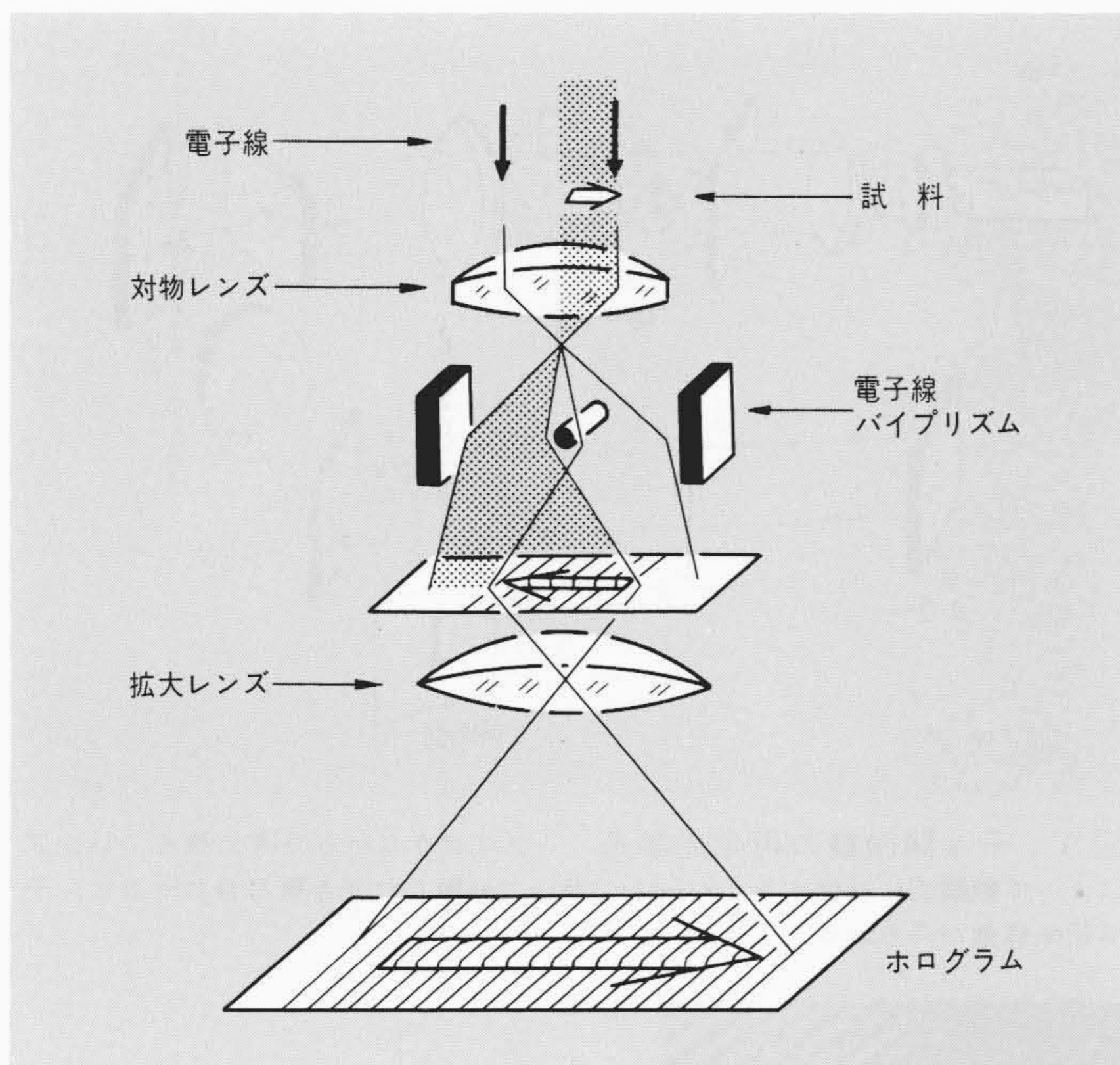


図5 電子線ホログラムの作り方 電子顕微鏡の対物レンズの下に設けた電子線バイプリズムを使って、ホログラムを作る。

解能を制限してきた電子レンズの球面収差を、光再生段階で逆の収差を導入して取り除くことが可能になる。図7は金の蒸着微粒子の再生像である。粒子像の左右にある縦縞の像は、粒子の上半分の領域でBragg反射を起こした電子線がレンズの周辺部を通り、球面収差の影響を大きく受けて本来の位置から離れた箇所に結像したものである。この0.24nmの格子像は実体のないイメージを与えており、そこに結晶性の物体が

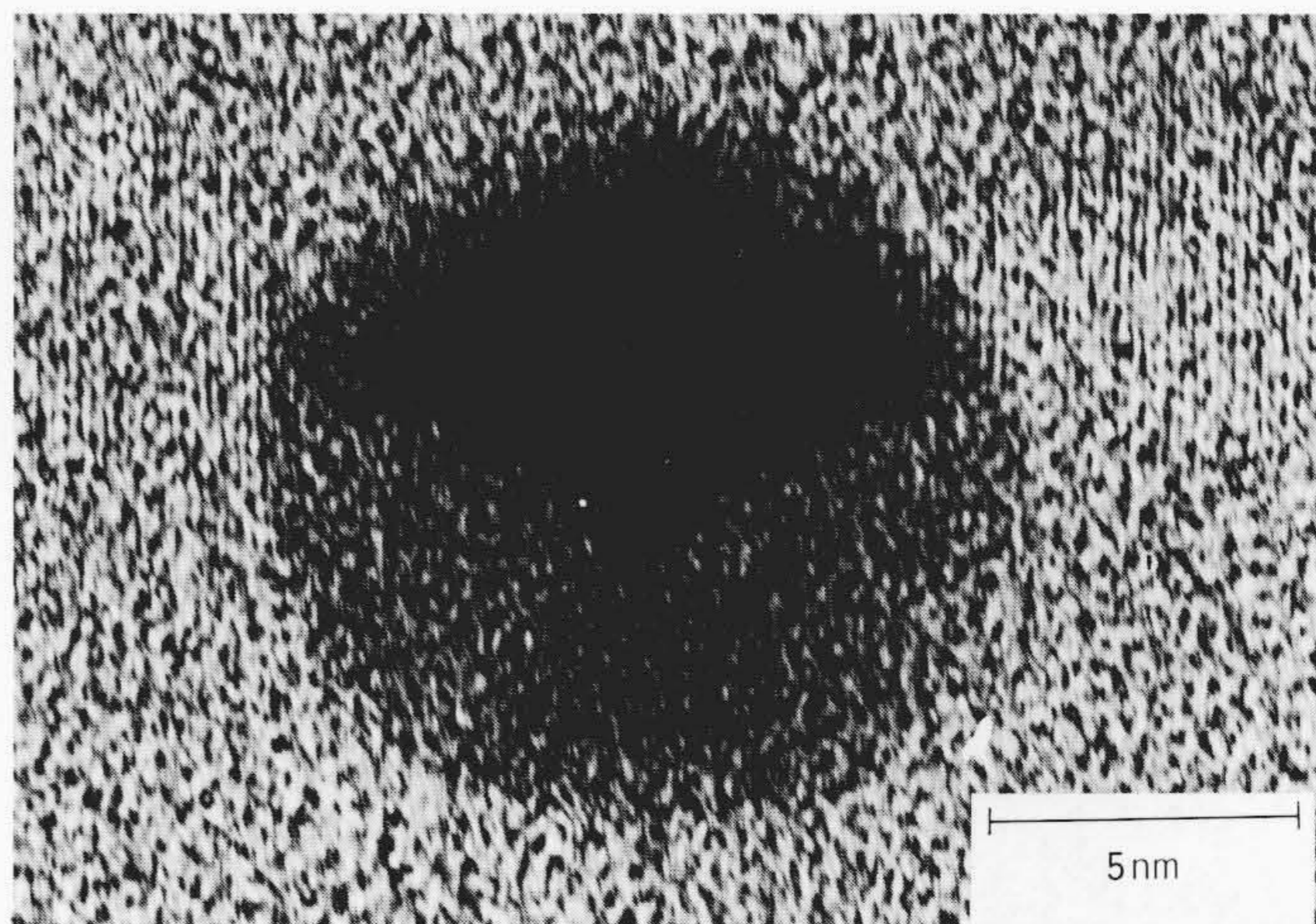


図7 金の蒸着微粒子の再生像 粒子像の左右に格子像が観察できる。これは、電子レンズの球面収差によって、粒子の外にはみ出したものである。

あるわけではない。このように、本来1点から出た電子線はすべて1点に収束すべきものが、レンズの球面収差のために大きくぼけてしまう。このような現象は、高倍率で電子顕微鏡観察を行なうときしばしば見受けられるが、このようにぼけてしまった像を本来の位置に結像するのが球面収差補正である。光学的に球面収差を補償した像を図8に示す。補正前には粒子の外側に生じていた格子像は粒子内部に結像され、金の結晶格子の正しい情報を与えるようになった。この例で示したように、補正前には大きくぼけていた像の1点1点の情報、本来の位置に正しく結像されるようになった。金の{1 1 1}面の $\frac{1}{2}$ 間隔格子像($\frac{d}{2}=0.12\text{nm}$)の縞が再生されている。この結果、球面収差量は $\frac{1}{10}$ まで小さくなることが実証され、

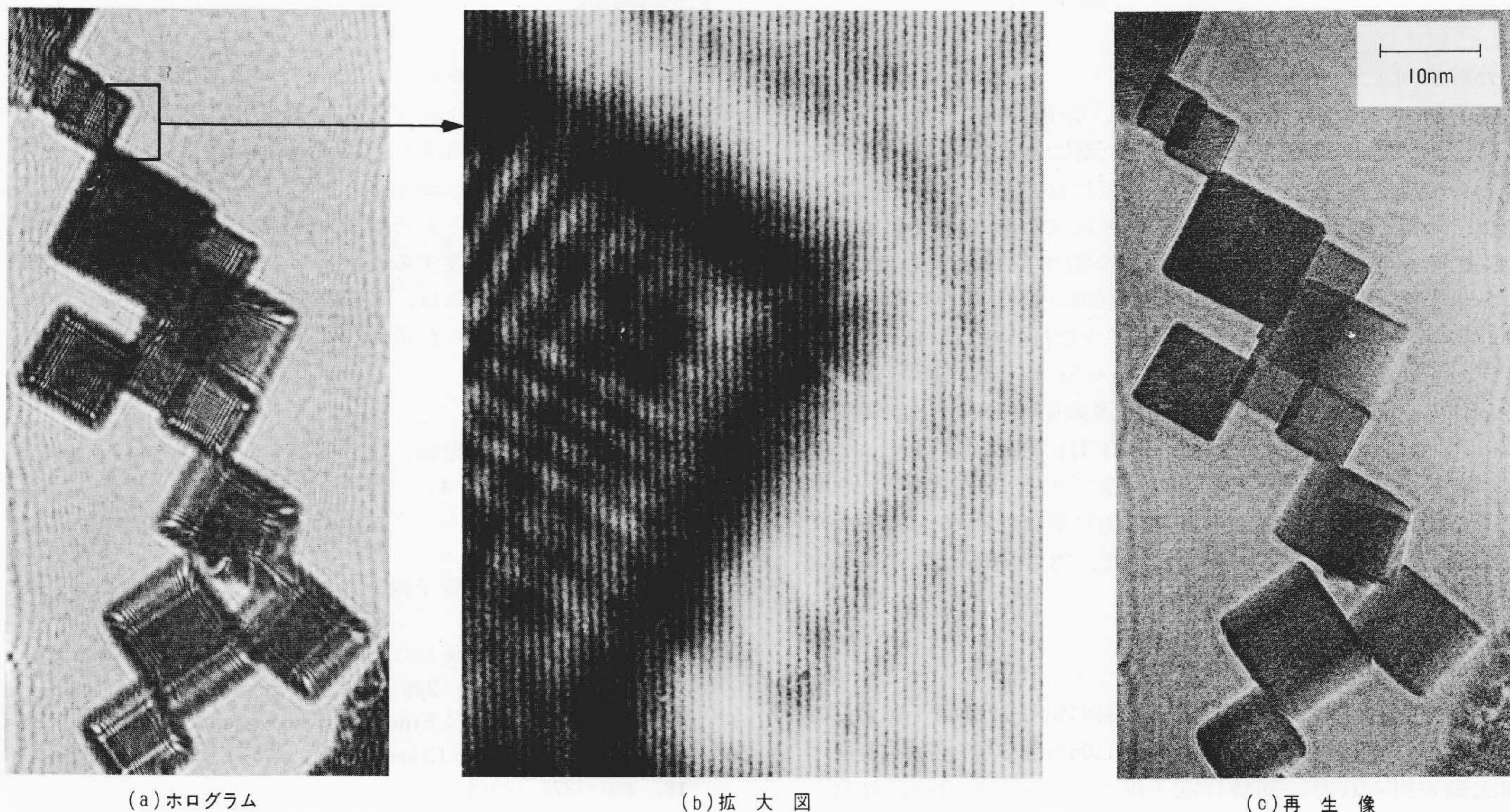


図6 MgO(酸化マグネシウム)微粒子の再生 ホログラムは拡大してみると小さな干渉縞から成っている。このため、物体波のすべての情報を含んでおり、レーザー光をあてると物体が再生される。

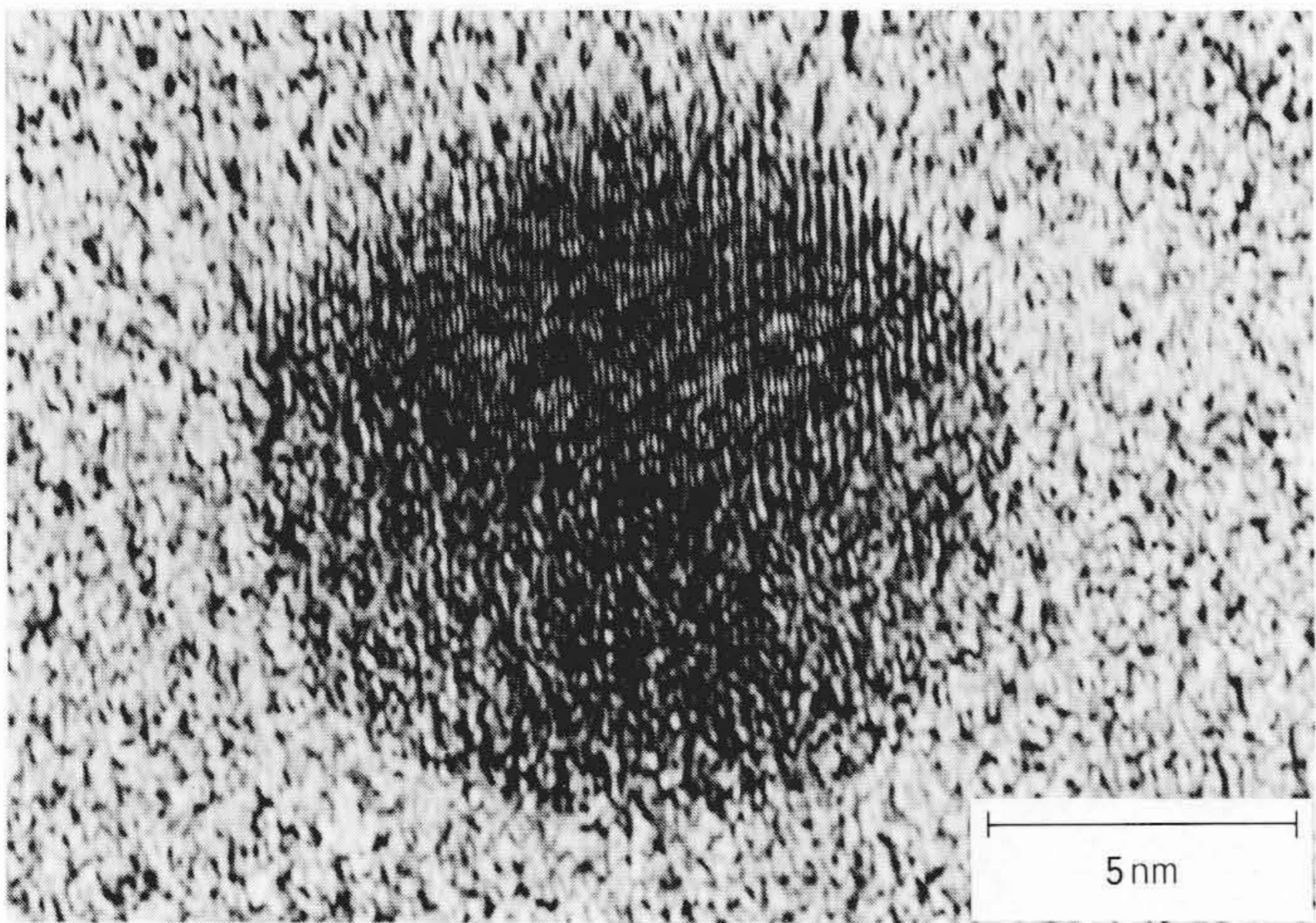


図8 金の蒸着微粒子の球面収差補正像 補正前には、粒子の外にはみ出していた格子像は、収差補正により粒子内部の正しい位置に結像されるようになった。

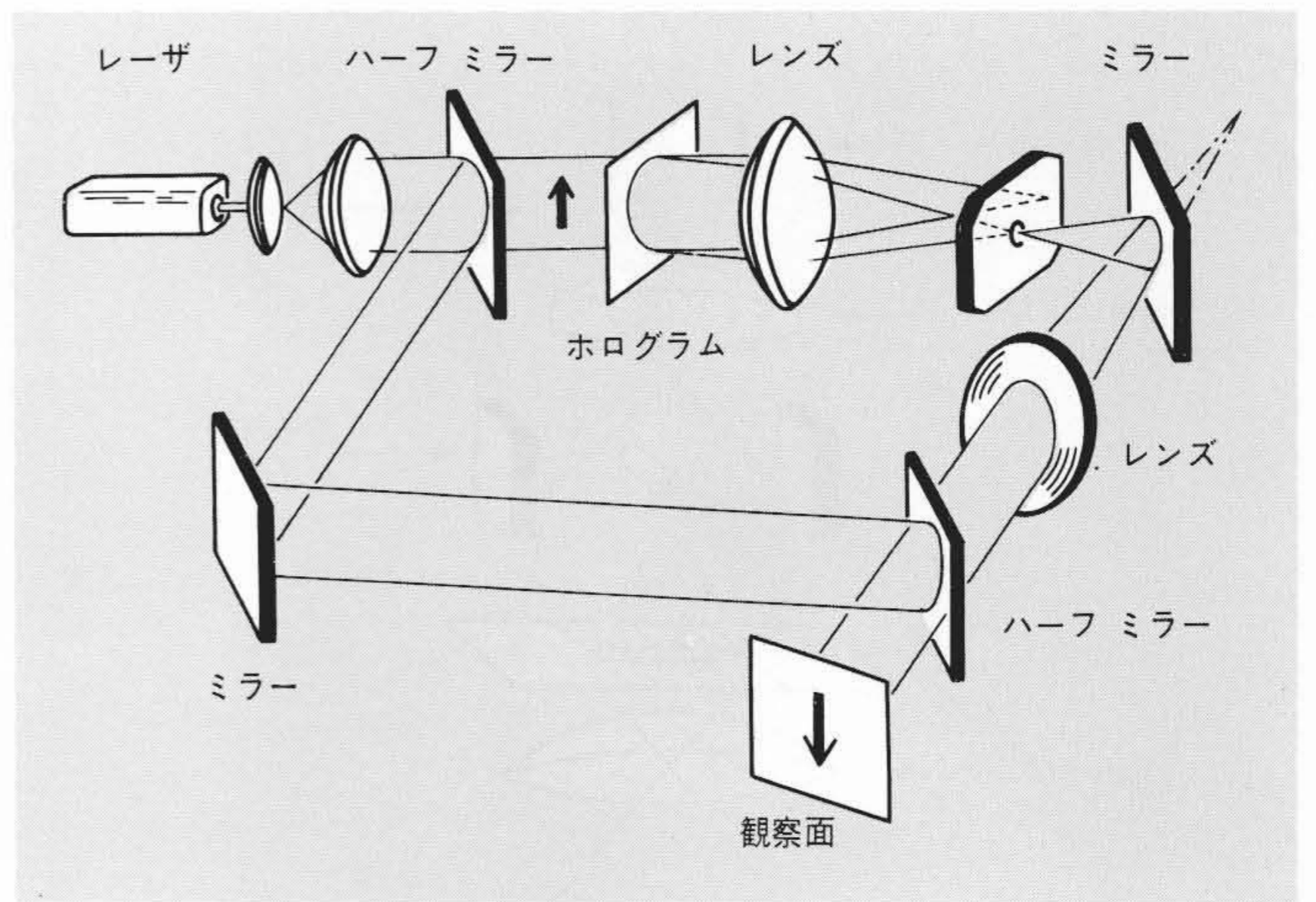
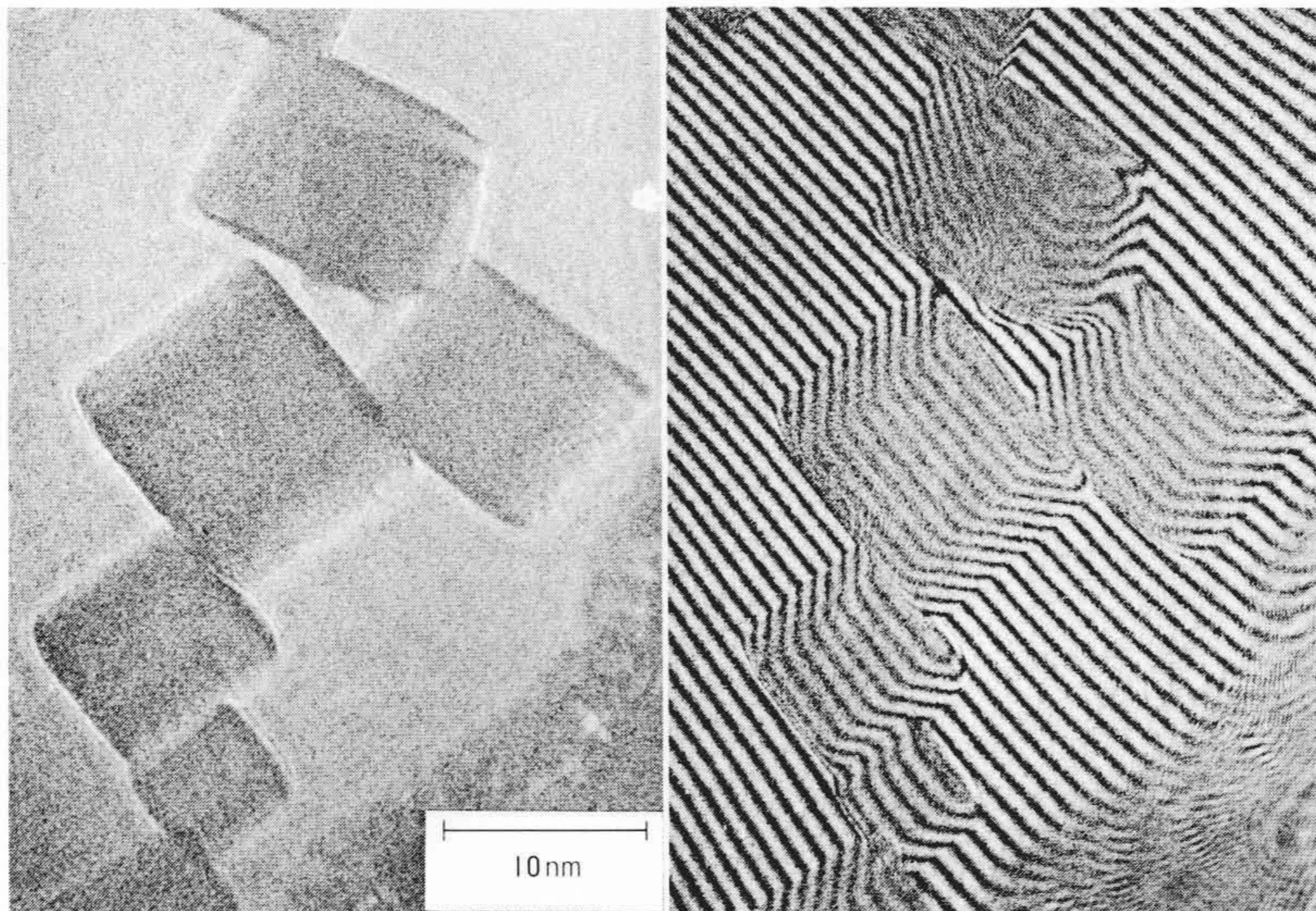


図9 干渉顕微鏡の再生光学系 ホログラムからの再生像を、レンズによって観察面に結像する。ハーフミラーで分離した光を重ね合わせると、干渉顕微鏡像が得られる。



(a)再生像

(b)干渉顕微鏡像

図10 MgO微粒子の干渉顕微鏡像 電子顕微鏡像[(a)と同一]では、3次元形状が分からないが、干渉顕微鏡像(b)では厚さ分布が読み取れる。

点分解能向上への道が開けた。

電子線ホログラフィーを用いると、分解能向上だけでなく、これまでの電子顕微鏡にはなかった新たな結像手法が可能になる。ホログラフィーによる再生像には、単に強度分布だけでなく、電子線の位相情報も再生されているはずである。この位相情報を像の上に読み出す干渉顕微鏡を実現した⁶⁾。その再生光学系を図9に示す。この原理は簡単である。すなわち、ホログラムから再生された像を観察面に結像する。ハーフミラーで分離した光を重ね合わせると、干渉顕微鏡像が得られる。図10にMgO微粒子の干渉顕微鏡像を示す。電子顕微鏡像では、このような多面体の3次元形状を決定することは非常に困難である。干渉顕微鏡像にすると、厚さに比例して干渉縞がシフトするため、立体的に見えてくる。これは立方体粒子であるが、このようにして、3次元形状を決めることが可能になった。

4 結 言

このたび日立製作所は、電界放射形電子顕微鏡を開発した。電子線の単色性が向上したため、0.062nmの格子分解能の世界記録が得られた。同時に電子線の干渉性が桁違いに向上し、電子線ホログラフィーが実用的に使えるまでになった。これにより、点分解能を制約していた電子レンズの球面収差を

小さくすることが示され、0.1nmの点分解能達成の見通しが得られた。また、これまでの電子顕微鏡にはなかった機能である干渉顕微鏡が実現され、多面体粒子の3次元形状の決定などに有効であることが示された。

電子線ホログラフィーがその究極目標、すなわち分子内原子の立体観察にまで到達するかどうかは、今後に待たねばならないが、実現した暁には、科学・産業上に極めて多大の効果が期待できると考えられる。

参考文献

- 1) 橋本：レンズ結像型電顕による原子分子の観察，応用物理，42，330～346（1973-4）
- 2) 外村，渡辺：電子線ホログラフィー，日本物理学会誌，23，683～684（1968-9）
- 3) 外村，松田，遠藤：電子線ホログラフィー，電子顕微鏡，14，47～52（1979-1）
- 4) 矢田：電子顕微鏡とそれによるMean Inner Potentialの測定，日本結晶学会誌，17，226～237（1975-4）
- 5) K. Yada and T. Hibi：Fine Lattice Fringes around 1 Å Resolved by the Axial Illumination，J. Electron Microsc., 18，266～271（1969-4）
- 6) 外村，松田，遠藤：電子線ホログラフィーの最近の進歩，応用物理，48，1094～1100（1979-11）