

「物質現象の解明と応用に資する新しい計測・分析基盤技術」

平成 16 年度採択研究代表者

高柳 邦夫

(東京工業大学大学院理工学研究科 教授)

「0.5 Å 分解能物質解析電子顕微鏡基盤技術の研究」

1. 研究実施の概要

本研究では、「水素原子半径に相当する 0.5 Å 分解能をもつ収差補正高分解能電子顕微鏡 国産技術の開発を推進させ、アメリカ、イギリスで推進されている国家的な研究機構を凌ぐ、電子顕微鏡による物質研究の世界中心を我が国に形成させる」ことを目的とする。

本研究では、(a) 0.5 Å 分解能をもつ 300kV 電子顕微鏡の開発、(b) ナノ物質構造を原子レベルで観察する手法の開発、(c) “その場観察”ナノスペースラボ(NSL)の構築、(d) 原子・分子レベルの先端的機能物質の研究を課題とする。

これまでに、研究項目「新世代・透過型 0.5 Å 分解能電子顕微鏡 R005 の開発」を実施した。0.5 Å 分解能を得るための非対称型球面収差補正装置を新たに開発し、300kV 電子顕微鏡装置を製作して性能のテストを行った。その結果、ショットキー型電子銃で 0.63 Å 間隔の Ga 原子列が観察可能であることを確認した。さらに、新規に開発した冷陰極型電子銃によって目標値 0.5 Å を達成する見込みである。一方、物質構造及び試料応答(光・電子伝導など)の性質を探索する“高分解能その場観察”の技術基盤(ナノスペースラボ: NSL)の構築へ向けて、画像記録システムの開発など、必要な技術要素の開発を推進させた。

2. 研究実施内容

① 研究目的

Li, C, N, O, S などの軽い元素を高分解能で解析可能な「加速電圧 300kV 冷陰極型電界放出電子銃を搭載し、照射系、結像系の双方に収差補正装置を組み込んだ、0.5 Å 分解能透過電子顕微鏡・走査透過電子顕微鏡(TEM/STEM) R005」を開発し、さらに、ナノ物質現象を解明するための顕微法・計測法を研究する。

② 研究実施方法

H18 年度に実施した本プロジェクトの基本的な開発実施項目は以下の通りである。

(1) R005 装置の開発

- a) 照射系球面収差補正装置の評価
- b) 結像系収差補正装置の開発・評価

- c) 冷陰極電界放射電子銃の試作・評価
- d) 顕微鏡の機械的安定性向上
- e) 高安定な高電圧と収差補正装置用電源の開発・評価
- (2) 顕微法・計測法開発
 - a) 物質構造を高精細・高感度・高速で記録できる画像記録システムの試作研究
 - b) その場観察における動的画像や観測データの記録・分析システムの試作研究

③研究進捗状況

(1) R005 装置の開発

顕微鏡の構成要素(収差補正装置、冷陰極電界放射型電子銃、安定化架台等)が予定通り完成し、それぞれの要素の評価を完了した。

a) 照射系球面収差補正装置の評価

図1は商用のショットキー型電界放射型電子銃を使用して行った性能テストの結果であるが、GaN結晶の0.063nm原子間隔がSTEM-HAADF法により観察された。この原子間隔を分解観察したのは、世界で初めてである。収差補正の結果、位相が変化していないことを示すRonchigramの中央部の平坦なコントラストを示す部分が半角で50mrad以上まで補正できた(図2)。この値は0.05nmを得るために回折限界の25mradを十分に超えている。収差の新しい評価法として、Ronchigramを局所のフーリエ解析によって収差を求めるSegmental Ronchigram Auto-correlation Matrix (SRAM)法のソフトウェアを開発した。これらの結果は平成18年9月に開催された国際顕微鏡学会(IMC16)にて発表を行った。

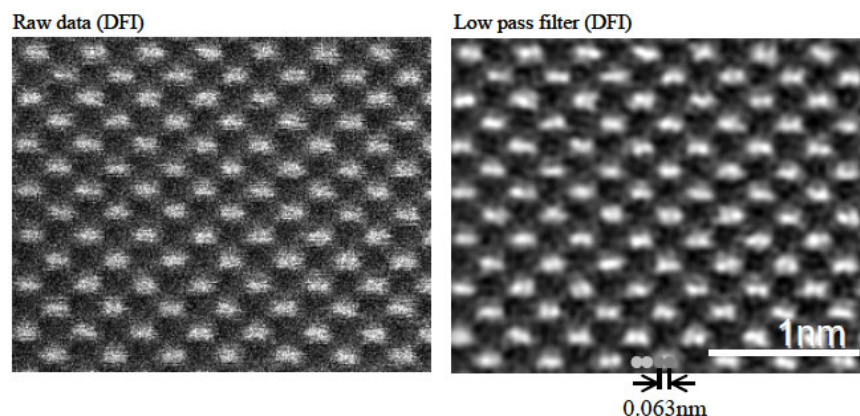


図1 GaN結晶を<112>方向から観察したSTEM-HAADF像
0.063nmの原子間隔が分解された。

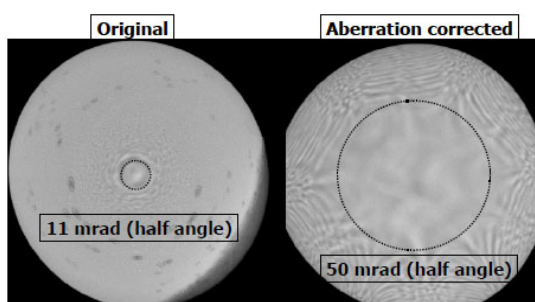


図2 収差補正(a)前(b)後のRonchigram
50mrad(半角)以上の高角までの収差が補正された。

b) 結像系収差補正装置の開発・評価

試作した結像系球面収差補正装置を電子顕微鏡に搭載し、収差補正の動作実験を行った。結像系球面収差補正装置は照射系と同様に非対称型を採用した。評価には市販されているショットキー型の電子銃を使用した。収差補正後の Zemlin Tableau を図 3 に示す。ビーム傾斜をしていない中央部分と傾斜した場合(ここでは、最大 42mrad)の周辺部分での TEM 像のフーリエ変換図形(Diffractogram)がほぼ同じパターンになっており、この角度まで球面収差が取り除かれていることが分かる。

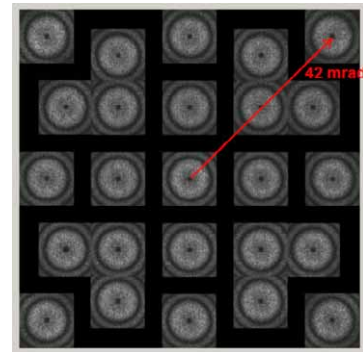


図 3 収差補正後の Zemlin Tableau

c) 冷陰極電界放射電子銃の試作・評価

最高加速電圧 300kV の冷陰極電界放射電子銃(Cold FEG)を単体でテストした後、顕微鏡本体に搭載して性能の評価した(図 4 参照)。高分解能モードで 10-20pA の電流を得た。GaN 試料の STEM 像の FFT には 0.054nm のスポットが観察された。



図 4 冷陰極 FEG

d) 顕微鏡の機械的安定性向上

アクティブ型の除振装置を搭載した架台を設計製作した。床に高圧発生装置を置くことにより実現した冷陰極型電子銃の小型化と合わせ、安定性が向上した。

e) 高安定な高電圧と収差補正装置用電源の開発・評価

試作した高電圧発生装置および収差補正装置用電源では、それぞれ、 $4 \times 10^{-7}/\text{min}$ 、 $2 \times 10^{-7}/\text{min}$ の安定度が得られ、球面収差補正装置の性能を発揮することができた。

(2) 顕微法・計測法開発

a) 物質構造を高精細・高感度・高速で記録できる画像記録システムの試作研究

YAG シンチレーター、実効 F 値が 1 (開口数 NA が 0.5) の大口径光学レンズ、高感度・低ノイズの EM-CCD (電子増倍型 CCD) カメラを組み合わせた動画記録システムを試作し、従来型動画記録カメラの約 2 倍の分解能を実現した。

b) その場観察における動的画像や観測データの記録・分析システムの試作研究

電極間に作製したナノ構造のコンダクタンスと TEM 像を同期計測するシステム (Labview-GATOM) を開発した。コンダクタンスは 3 kHz のサンプリングレートで計測され、計測誤差も 0.1% 以下に抑えられた。このシステムを既存装置で用いることにより、炭素原子鎖に相当のコンダクタンスの計測が行われた。

3. 研究実施体制

(1)「高柳邦夫」グループ

①研究分担グループ長:高柳 邦夫(東京工業大学 教授)

②研究項目

- (a) 0.05nm 分解能をもつ 300kV 電子顕微鏡(R005)のグランドデザイン
- (b) 軽元素を含むナノ物質構造と組成を原子レベルで観察する手法の開発
- (c) “その場観察”ナノスペースラボ(NSL)の構築
 - ・明るい TV レート CCD カメラの試作(画像記録システム)
 - ・ナノ構造を作製できる試料ホルダーの試作(マルチステージ・システム)
- (d) R005 装置の STEM 分解能および TEM 分解能の確認
- (e) 原子・分子レベルの先端的機能物質研究(数人の研究者との共同研究を予定)

(2)「近藤行人」グループ

①研究分担グループ長:近藤 行人((株)日本電子 グループ長)

②研究項目

- (a) 0.05nm 分解能をもつ 300kV 電子顕微鏡(R005)の開発
 - ・照射系球面収差補正レンズの開発、評価
 - ・冷陰極電界放射電子銃の開発、評価
 - ・結像系球面収差補正レンズの開発、評価
 - ・顕微鏡の機械的安定性(耐震性)の評価と改良
 - ・顕微鏡の電氣的安定度を支える基盤技術の確立
 - ・ナノスペースラボを収納するマルチステージの開発
- (b) 収差係数の評価と補正に関する手法の開発
 - ・照射系の収差係数を評価し、自動的に補正する手段及びシステムの製作
 - ・結像系の収差係数を評価し、自動的に補正する手段及びシステムの製作

4. 研究成果の発表等

(1)論文発表(原著論文)

- Y. Oshima, K. Mouri, H. Hirayama, K. Takayanagi: Quantized electrical conductance of gold helical multi-shell nanowires; J. Phys. Soc. Japan **75**[5], 53705 (4 pages) (2006)
- H. Minoda and N. Yamamoto: Study on the origin of the anisotropic dielectric properties of the Au adsorbed Si(001) vicinal surface; Surface and Interface Analysis **38**, 1666-1669 (2006)
- N. Yamamoto, M. Nakano and T. Suzuki: Light emission by surface plasmon on nano-structures of metal surfaces induced by high energy electron beam; Surface and Interface Analysis **38**, 1725-1730 (2006)
- N. Yamamoto, S. Bhunia and Y. Watanabe: Polarized Cathodoluminescence Study of InP

Nanowires by Transmission Electron Microscopy; Appl. Phys. Lett. **88**, 153106 (2006)

- M. Yoshida, Y. Kurui, Y. Oshima, and K. Takayanagi: *In-Situ* Observation of the Fabrication Process of a Single Shell Carbon Fullerene Nano-Contact Using Transmission Electron Microscope–Scanning Tunneling Microscope; Jpn. J. Appl. Phys. **46**[3], L67-L69 (2007)
- H. Sawada, F. Hosokawa, T. Sannomiya, T. Kaneyama, T. Tomita, Y. Kondo, T. Tanaka, Y. Ohshima, Y. Tanishiro and K. Takayanagi: Achieving 63pm resolution in scanning transmission electron microscope with spherical aberration corrector; to be published in Jpn. J. Appl. Phys. (2007)
- 大島義文、谷城 康眞、近藤 行人、高柳 邦夫: ナノ現象の顕微研究; 応用物理 **75**[3], 309-313 (2006)
- 山本直紀: 量子構造の局所発光解析; 応用物理 **75**[1], 41-48 (2006)
- 山本直紀、鈴木喬博、塩川未久: TEM/CL 法による表面プラズモンの解析; 顕微鏡 **41**[2], 138-141 (2006)

(2) 特許出願

平成 18年度特許出願: 5 件 (CREST 研究期間累積件数: 6 件)