

「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わが国に形成させる」ことを目的とする。

これまでに、照射系収差補正装置を開発して、ショットキー型電界放出電子銃による性能試験を行い、0.5 Å を得るために加速電圧 300kV 冷陰極型電子銃(CFEG)の開発をおこなってきた。今年度は、冷陰極型電界放出電子銃を搭載し、照射系と結像系の双方に収差補正レンズを組み込んだ「0.5 Å 分解能透過電子顕微鏡・走査透過電子顕微鏡(TEM/STEM)」装置を組み上げた。照射系球面収差補正レンズについて、収差係数の定量的評価ならびに収差補正の自動システムを開発した。結像系収差補正システムについても補正システムを開発した。STEM 法では、CFEG による半導体試料の 63pm 離れた原子カラムの分離像が初めて得られ、STEM 像のフーリエ変換図形に高次の周波数情報(53pm)が現れることが示された。TEM 法での分解能評価、軽元素の観察法など基盤技術を推進させる。

### 2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1) に対応する)

#### ① 研究目的

加速電圧 300kV 冷陰極型電界放出電子銃を搭載し、照射系と結像系の双方に収差補正レンズを組み込んだ「0.5 Å 分解能透過電子顕微鏡・走査透過電子顕微鏡(TEM/STEM)」を組み上げ、基盤技術の総合的評価を行う。照射系と結像系の球面収差補正レンズによる収差係数計測と収差補正システムを試作して評価すると共に、電子光学系や機械的・電氣的安定度を支える基盤技術を見直して安定な装置を実現する。さらに、分解能ならびに軽元素の観察を進めて電子顕微鏡

の性能を評価する。

② 研究実施の内容と結果、ならびに進捗状況

H19 年度に実施した本プロジェクトの実施項目は以下のとおりである。

- a) 照射系と結像系の双方に収差補正レンズを組み込み、冷陰極型電界放出電子銃(CFEG)を搭載した TEM/STEM 装置の組み上げ、ならびに機械的安定度、電氣的安定度の評価。

収差補正レンズと CFEG を搭載した TEM/STEM 装置を示す(図 1)。CFEG のエネルギー幅(半値全幅)は EELS 計測では 0.32-0.34eV を得た。STEM 像において、GaN 結晶の $\langle 211 \rangle$  結晶軸入射で、63pm の原子カラム間隔を分離した像や 53pm 情報を示すフーリエスポットが認められた。

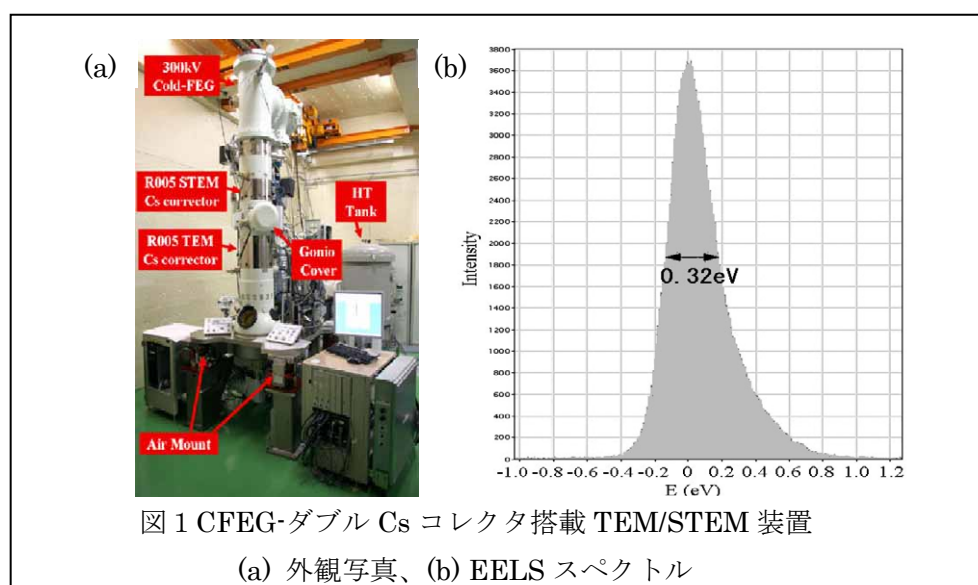
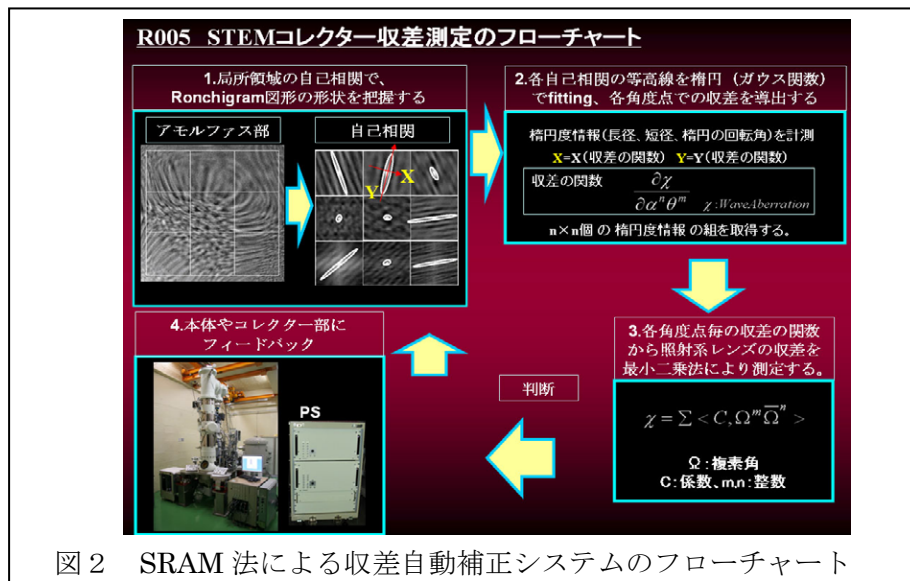


図 1 CFEG-ダブル Cs コレクタ搭載 TEM/STEM 装置

(a) 外観写真、(b) EELS スペクトル

- b) 照射系球面補正レンズによる自動収差補正システムの試作と収差係数評価(論文[4])

照射系収差の補正システムとして、現在、CEOS 社と NION 社の方式が市販装置に使用されている。本研究では、新しい Segmental-Ronchigram-Autocorrelation function-Method (SRAM)を考案した(特許出願中)。その方法では、RonchigramをN分割したそれぞれについて Auto-correlation(AC)像を作成後、各 AC 像に現れる楕円図形について長径、短径、XY 軸からの回転角度を計測した $2 \times 3N$ 組のデータから12個の収差係数を決定する。本方式の特徴は、(1)観察する試料の一部に非晶質膜があれば良い(2)焦点の異なる2枚のRonchigramを撮影するだけで良い(3)Nを増やすだけで、計測できる収差係数の数と精度が上がる。このSRAM法による収差の自動補正システムを完成させた(図2)。詳細は論文[4]を参照。



c) H18 年度に試作した結像系球面収差補正レンズによる結像系収差の評価と、自動補正システムの試作。

結像系収差の補正システムは、Zemlin タブローを基本とする方式を採用した。

d) 冷陰極電界放射型電子銃の評価と改良

冷陰極型電界放射電子銃は、エネルギー幅の目標値 0.3eV にはほぼ近づいた。さらに、明るく安定な電子源で高品位(高い S/N 比)の像や EELS 信号を得るため、エミッター近傍の真空度と電子光学系を改めた電子銃を設計して、製作した。

### 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 電子顕微鏡の開発、(b)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、(d)原子・分子レベルの先端的機能物質研究のうち、東工大は(c)を主務担当する。H19 年度は、軽原子を含む試料の観察を行い、R005 装置の TEM 分解能を確認する。

(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 電子顕微鏡の開発、(b)ナノ物質構造と開発、(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、のうち (a)を主務担当する。今年度も引き続き、以下のテーマ(a)の 5 つのサブテーマを実施する。(a1)照射系球面収差補正レンズの評価、(a2)結像系収差補正レンズの評価、(a3)H18 年度製作された安定化された鏡筒および電源の機械的安定度と電氣的安定度の評価、(a4)冷陰極電界放出形電子銃の評価と改良、(a5)ナノスペースラボ収納マルチステージの設計、試作。

#### 4. 研究成果の発表等

##### (1) 論文発表(原著論文)

- [1] H. Sawada<sup>2,3</sup>, F. Hosokawa<sup>2,3</sup>, T. Kaneyama<sup>2,3</sup>, T. Ishizawa<sup>3</sup>, M. Terao<sup>3</sup>, M. Kawazoe<sup>3</sup>, T. Sannomiya<sup>2,3</sup>, T. Tomita<sup>2,3</sup>, Y. Kondo<sup>2,3</sup>, T. Tanaka<sup>1,2</sup>, Y. Oshima<sup>1,2</sup>, Y. Tanishiro<sup>1,2</sup>, N. Yamamoto<sup>1,2</sup>, K. Takayanagi<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>CREST, Japan Science and Technology Agency, <sup>3</sup>JEOL Ltd.): Achieving 63 pm Resolution in Scanning Transmission Electron Microscope with Spherical Aberration Corrector ; Jpn.J.Appl.Phys. 46 [23] (2007) L568-L570.
- [2] Y. Kurui<sup>1</sup>, Y. Oshima<sup>1,2</sup>, and K. Takayanagi<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>CREST, Japan Science and Technology Agency): One-by-One Evolution of Conductance Channel in Gold [110] Nanowires; J. Phys. Soc. Japan 76 (2007) 123601.
- [3] Y. Kurui<sup>1</sup>, Y. Oshima<sup>1,2</sup> and K. Takayanagi<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>CREST, Japan Science and Technology Agency): Integer conductance quantization of gold atomic sheets; Phys. Rev. B (2008) in press.
- [4] H. Sawada<sup>2,3</sup>, T. Sannomiya<sup>2,3</sup>, F. Hosokawa<sup>2,3</sup>, T. Nakamichi<sup>2,3</sup>, T. Kaneyama<sup>2,3</sup>, T. Tomita<sup>2,3</sup>, Y. Kondo<sup>2,3</sup>, T. Tanaka<sup>1,2</sup>, Y. Oshima<sup>1,2</sup>, Y. Tanishiro<sup>1,2</sup> K. Takayanagi<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>CREST, Japan Science and Technology Agency, <sup>3</sup>JEOL Ltd.): Measurement Method of Aberration from Ronchigram by Autocorrelation Function ; Ultramicroscopy (2008) accepted.
- [5] 大島 義文<sup>2,3</sup>、吉田 誠<sup>1</sup>、久留井 慶彦<sup>1</sup>(<sup>1</sup>東京工業大学院理工、<sup>2</sup>東京工業大学院総理工、<sup>3</sup>JST-CREST) ギャップ間における単一カーボンフラーレン分子の形状変化;表面科学 28 [8] (2007) 428-432.
- [6] 大島 義文<sup>2,3</sup>、久留井 慶彦<sup>1</sup>、高柳邦夫<sup>1,3</sup>(<sup>1</sup>東京工業大学院理工、<sup>2</sup>東京工業大学院総理工、<sup>3</sup>JST-CREST): 透過型電子顕微鏡による金ナノワイヤの電気伝導の研究; J.Vac.Soc.Jpn. (2008) to be published.

(2) 特許出願

平成 19 年度 国内特許出願件数:1 件(CREST 研究期間累積件数:7 件)