

「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 300 kV 電子顕微鏡 R005 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の研究  
を課題とする。

これまでに、国産の収差補正レンズ付き 0.5 Å分解能電子顕微鏡 R005 の早期開発へ向けて、所要の性能を満たす収差補正装置を設計し、それを組み込む 300kV 電子光学系の製作を完了した。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。

今後は、0.5 Å分解能の実証、R005 装置の完成、ナノスペースラボ基盤技術の実現へ向けて研究を推進させる。

### 2. 研究実施内容

H17 年度は、研究項目「新世代・透過型 0.5 Å分解能電子顕微鏡の開発」と「0.5 Å分解能電子顕微鏡法の開発およびナノ物質解析」について実施した。

#### (1) 近藤研究グループ

##### ① 研究実施項目

「新世代・透過型 0.5 Å分解能電子顕微鏡の開発」

##### ② 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、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)」

を開発する。収差補正レンズを組み込む電子光学系のデザインに加え、機械的安定性（耐震性）、電気的安定度を支える基盤技術を見直し、安定した高分解能電子顕微鏡装置を実現する。

### ③研究の経過

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。

- (a) 収差補正レンズを組み込む電子光学系の製作を完了した。
- (b) 0.5Å分解能を安定して実現するための機械的安定性（耐震性）を確保した鏡筒を製作した。
- (c) 300kV冷陰極電界放出型の設計を実施した。

### ④研究の成果

#### (a) 収差補正装置の開発

0.05nm以下のSTEM/TEM像分解能を実現する為に照射系の300kV用の多極子型の球面収差補正装置の電子光学系の検討を行った。結果として、12極の磁極による収差補正方法に決定し、電気系と機械系の設計を開始して平成16年度年内に設計を終了した。

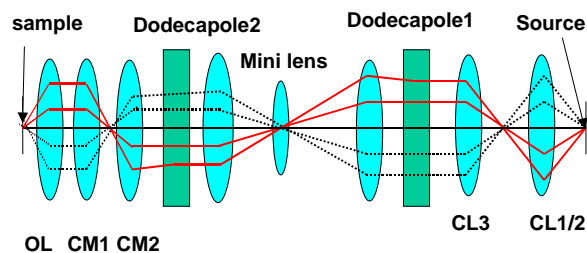


図 1

この設計を基に収差補正装置の製作を平成17年度に行った。

#### (a-1) 本プロジェクトで開発した球面収差補正系の概要（図1参照）

図1に赤の実線で示された光線は収差補正を行った場合であり、黒の破線で表される光線は収差補正装置を動作させない場合の光線図である。光源（Source）から発生した電子は第1の12極子（Dodecapole 1）に入射する。ここで12極子は6極子として働いており、ビームは6極子の強い3回対称場により3回非点成分を持つように曲げられる。同時に、この3回対称場は負の球面収差を持つようにビームに作用する。従って、12極子を通過したビームは3回非点成分と負の球面収差を持つようになる。次の伝達光学系の2枚のレンズにより第1の12極子面上のビームは第2の12極子（Dodecapole 2）の主面上に結像される。第2の12極子は第1の12極子と同じように6極子として動作し、第1の6極子で発生した3回非点成分をキャンセルするように働かされる。また同時にここでも負の球面収差成分を持つ。第2の12極子を通過したビームは3回非点成分がキャンセルされるため、非点成分のないしかも負の球面収差成分を持ったビームとなる。ここで発生する負の球

面収差成分の量は両方の12極子の励磁によって増減することが出来る。この量を調整し、丁度、対物レンズによって発生する正の球面収差成分をキャンセル（補正）する様に12極子を励磁すれば、球面収差を補正することが可能となる。

結像系収差補正系においては対物レンズを挟んで対称な光学系を構成することによって収差補正を実現することが出来る。

(a-2) 本プロジェクトで開発した収差補正装置の特長

6極子場による球面収差補正効果はV. Beck (Optik 53 (1979) 241) 及びA. V. Crewe (Optik 60(1982)271) によって提唱された。その後、H. Rose (Optik 85(1990) 19) によって伝達光学系を組み合わせて実用化された。概要で説明されたように本プロジェクトではRoseによって提唱された6極子場と伝達光学系を使用した球面収差補正系を基本に開発された。本プロジェクトで開発された収差補正系の特長を下記にまとめる。

(i) 伝達光学系の倍率を試料面に対して1以上とした。

(ii) (i)により照射系では収差を補正しかつプローブを縮小、結像系では像を拡大することが可能となった。

(iii) (i)により対物レンズ以外で発生する高次の寄生収差を圧縮することが可能となった。

(a-3) 本プロジェクトで開発した収差補正装置による性能

(i) 照射系  $E=300\text{ kV}$ 、 $\Delta E=0.3\text{ eV}$ 、 $\alpha=40\text{ mrad}$ 、 $C_s=0.002\text{ mm}$ 、 $C_c=1.5\text{ mm}$ 、の条件下で、ビームの半値幅  $0.05\text{ nm}$  の結果をシミュレーションによって得た。

(ii) 結像系  $E=300\text{ kV}$ 、 $C_s=0.002\text{ mm}$ 、 $C_c=1.5\text{ mm}$ 、 $\Delta E=0.3\text{ eV}$ 、 $\Delta f=2.4\text{ nm}$  の条件下で分解能  $0.05\text{ nm}$  の結果をシミュレーションで得た。

(b) 機械的安定性（耐震性）を確保した鏡筒の開発

$0.5\text{ \AA}$ 分解能を安定して実現するための機械的安定性（耐震性）を確保した鏡筒を製作した。鏡筒の強度は直径の4乗に比例するとして、鏡筒径を従来よりも太くして剛性を3倍に高めた。また、鏡筒を支えるベース架台の強度も見直し、強度を向上するためのビームを補強し剛性を高めた。

(c) CRESTで開発する300kV冷陰極電界放出型の設計

分解能  $0.5\text{ \AA}$ を達成するには電子線のエネルギー巾を  $0.3\text{ eV}$ 程度に抑える必要がある。そのために、冷陰極型電界放出型電子銃（CFE）を採用する。電子銃、加速管、電子銃電源と分離した高圧タンク、CFE電子銃と高電圧発生タンクをつなぐフレキシブル  $300\text{ kV}$ 用高圧ケーブルの設計を新たに行った。さらに、加速電圧の安定度を  $0.3\text{ ppm}$ 以下に制御できる  $300\text{ kV}$  高安定高電圧制御システムの設計を行った。

## ⑤今後の見通し

平成 18 年度に平成 17 年度に製作された収差補正装置を組み込んだ 0.5 Å 分解能電子顕微鏡のテストを完了し、成果 3 件を平成 18 年 9/3～9/8 に札幌で開催される国際顕微鏡学会で発表予定している。

平成 19 年度には試料ステージ関連の改造を実施予定している。

## (2) 高柳研究グループ

## ① 研究実施項目

「0.5 分解能電子顕微鏡法の開発およびナノ物質解析」

## ② 研究目的

Li, C, N, O, S などの軽い元素を高分解能で解析できる国産の収差補正付き高分解能電子顕微鏡 R005 によって物質現象を解明するための顕微法・計測法を研究する。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）を構築する。

## ③ 研究の経過

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。

- (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) ナノスペースラボ・システムの構築へ向けた、物質構造及び試料応答（光・電子伝導など）を観察・計測するための試料ホルダーの試作研究。
- (c) 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。

(注) ナノスペースラボ・システム (NSL) は、画像記録システム (イメージ・リコーディング・システム: IRS)、データ記録・分析システム (データアキュジション&アナリシス・システム: DAS)、マルチステージ・システム (MSS) の 3 要素で構成される。

## ④ 研究の成果

- (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。

電子顕微鏡用に市販されている CCD カメラは、大画素化・高画質化が進んできたが、感度が低く、動画記録には不適である。YAG シンチレーター、EM-CCD (増倍型 CCD の一種)、レンズカップリングを組み合わせた動画記録システムを試作し、現在、動画記録に使われている Lhesa 社の SIT カメラ、Gatan 社の I-CCD カメラに比べて、約 2 倍の分解能を得た。

- (b) 物質構造及び試料応答を観察・計測するための試料ホルダーの試作研究。

収差補正電子顕微鏡によって表面(近傍)の軽元素を捉え、同時に、その原子からの STM/STS (走査型トンネル顕微鏡像/スペクトル像) を得る方法を開発するため、STM 組み込みの試料ホルダーを試作した。標準型の STM を小型化した試作機で動作テス

トを行い、R005 用試料ホルダーに組み込み可能な超小型 STM を試作した。

(c) 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

MCBJ 組み込み型電子顕微鏡試料ホルダーを用いて原子鎖やナノワイヤの“その場観察”を行う際、原子鎖の構造変化に 1 対 1 に対応してコンダクタンスが変化する様子を明らかにする必要がある。本研究では、コンダクタンスと TEM 像同期計測システム (LabView-GATOM) を開発した。TEM 像から同期信号を得て、コンダクタンス計測が開始される。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、計測精度も 0.1% 以下に抑えられた。

#### ⑤今後の見通し

H17 年度に試作した画像記録システム、ナノスペースラボ・システム、データ記録・分析システムによる実績を得る。さらに H18 年度に遂行される 0.5 Å 分解能電子顕微鏡の分解能テストを完了し、H19 年度に予定の R005 装置試料ステージ関連の改造を実施した後、H20 年には 0.5 Å 分解能のナノスペースラボ構築を完成させる予定である。

### 3. 研究実施体制

#### 高柳研究グループ

- 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：研究課題「0.5 Å 分解能電子顕微鏡と顕微法の開発及びナノ物質解析の研究」を推進し、研究大項目 (a) 0.05nm 分解能をもつ 300 kV 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の研究のうち、(c) を主務担当する。

H17 年度研究項目は、

- (1) 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.
- (2) ナノスペースラボ・システムの構築へ向けた、物質構造及び試料応答（光・電子伝導など）を観察・計測するための試料ホルダーの試作研究.
- (3) 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.

#### 近藤研究グループ

- ① 研究分担グループ長：近藤 行人（日本電子株式会社、グループ長）
- ② 研究項目：研究課題「新世代・透過型 0.5 Å 分解能電子顕微鏡の開発」を推進し、

研究大項目 (a) 0.05 Å 分解能をもつ 300 kV 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の研究、のうち (a) を主務担当する。

H17 年度研究項目は、

- (1) 収差補正レンズを組み込む電子光学系の製作.
- (2) 0.5 Å 分解能を安定して実現するための機械的安定性 (耐震性) を確保した鏡筒の製作.
- (3) 300kV 冷陰極電界放出型的设计.

#### 4. 主な研究成果の発表

##### (1) 論文 (原著論文) 発表

- Hiroki Minoda and Naoki Yamamoto: Anomalous Enhancement of Light by Au Adsorption on a Si(001) Vicinal Surface; Journal of the Physical Society of Japan Vol. 74 No. 7, July, 2005 pp. 1914-1917
- Makoto Yoshida, Yoshifumi Oshima, and Kunio Takayanagi: Nonlinear Current-Voltage Curves of Nobel Metal Quantum Point Contacts; Japanese Journal of Applied Physics Vol. 44, No. 37, 2005 pp. L1178-L1180
- M. Yoshida, Y. Oshima, and K. Takayanagi: Nonlinear current-voltage curves of gold quantum point contacts; Appl. Phys. Lett. 87, 103104 (2005)
- 大島義文 (東工大 総理工)、谷城康真 (東工大 理工)、近藤行人 (日本電子株式会社)、高柳邦夫 (東工大 理工): ナノ現象の顕微研究; 応用物理 Vol. 75, No. 3 309-313 (2006)
- Hidetaka Sawada, Takumi Sannomiya, Fumio Hosokawa, Toshikatsu Kaneyama, Yukihiro Kondo, Kunio Takayanagi: Method to Measure Aberrations from Ronchigram by Auto-Correlation Function; Proc. The 16<sup>th</sup> International Microscopy Congress, Sep. 3-8 2006, Sapporo, Japan
- Toshikatsu Kaneyama, Fumio Hosokawa, Takumi Sannomiya, Hidetaka Sawada, Yukihiro Kondo, Yasumasa Tanishiro, Naoki Yamamoto and Kunio Takayanagi: Design and Development of 300 kV High Resolution FETEM R005; Proc. The 16<sup>th</sup> International Microscopy Congress, Sep. 3-8 2006, Sapporo, Japan
- Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, Takumi Sannomiya, Toshikatsu Kaneyama, Yukihiro Kondo, Madoka Hori, Shyuichi Yuasa, Muneyuki Kawazoe, Tomonori, Nakamichi, Yasumasa Tanishiro, Naoki Yamamoto and Kunio Takayanagi: Design and Development of Cs corrector for a 300 kV TEM and STEM; Proc. The 16<sup>th</sup> International Microscopy Congress, Sep. 3-8 2006, Sapporo, Japan