

未来社会創造事業 探索加速型  
「共通基盤」領域  
終了報告書(探索研究)

令和2年度  
終了報告書

平成30年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:桑原 真人]

[東海国立大学機構 名古屋大学 未来材料・システム研究所・准教授]

[研究開発課題名:コヒーレント超短パルス電子線発生装置を活用した超時空間分解  
電子顕微鏡]

実施期間 : 平成30年11月15日～令和3年3月31日

## § 1. 研究実施体制

(1)「名古屋大学」グループ(東海国立大学機構 名古屋大学)

① 研究開発代表者: 桑原 真人(東海国立大学機構 名古屋大学 未来材料・システム研究所、准教授)

② 研究項目

- ・高密度パルス電子源の開発(設計・シミュレーション・実証)
- ・高精度同期パルスシステムの構築
- ・時間分解計測実験および時間分解計測用ソフトウェアの検討

(2)「日立ハイテク」グループ(株式会社日立ハイテク)

① 主たる共同研究者: 揚村 寿英(株式会社日立ハイテク ナノテクノロジーソリューション事業統括本部 評価解析システム製品本部、部長)

② 研究項目

- ・高密度パルス電子源用収差補正 TEM 光学設計
- ・インターフェイス開発の検討(装置インテグレーション)

## § 2. 研究実施の概要

**目的:** コヒーレント超短パルス電子線発生装置と収差補正電子顕微鏡を組み合わせた“超時空間分解電子顕微鏡の実現“

負の電子親和性(NEA)表面をもつ半導体を電子源とするコヒーレント超短パルス電子線発生装置と収差補正技術を組み合わせた透過電子顕微鏡(TEM)を世界に先駆けて実現する。これにより、電子線プローブを用いる超高速時間分解測定において、従来の光励起に伴う高速現象に限らず、電気的刺激に誘発される現象や化学的反応を含む非可逆過程を原子オーダーで捉え得る分析装置を創出する。この超時空間分解電子顕微鏡の実現により、次世代の材料・生体解析手法として電子顕微鏡市場を席捲し、我が国の産業競争力強化へ貢献する。さらに、省エネルギーデバイス開発や化学合成・創薬開発の加速、生体環境下でのウィルスの動作解明や病理解析の迅速化等により、日本の研究力強化へ貢献する。

**探索研究における成果:** 超時空間分解電子顕微鏡の実現のために、本探索研究期間では①高密度なコヒーレントパルス電子線発生を可能にする電子銃構造の決定、②電子パルス列の時間安定性の向上、③時間分解測定に適した試料の探索、④収差補正電子顕微鏡への搭載検討を進めた。

高密度コヒーレントパルス電子銃構造は、設計・製作を実施し、当該構造において加速電場 21 MV/m、真空度  $3 \times 10^{-9}$  Pa、真空中の放電暗電流 5~50 nA @200 kV を達成し、いずれも目標値を超える性能を達成することに成功した。また、シミュレーションにより達成可能輝度は 200 mC/cm<sup>2</sup>sr と見積もられ、高密度パルス電子発生が可能であることを示唆する結果を得た<sup>[1]</sup>。つぎに、周波数安定化ファイバーレーザーを用いることで電子パルス列の時間安定性を 204 fs @rms まで向上することに成功した。これを用いることで、システム全体の電気的な時間安定性に関連するトリガースIGNAL時間安定性は 8 ps 以下を実現するに至った。これにより電気的刺激によるデバイスの動的反応を高い時間精度で捉え得る手段を得ることに成功した。

本研究で創出される超時空間分解電子顕微鏡による高速時間分解測定の有効性を示すため、本研究期間では時間分解 TEM 像取得に適した試料の検討を並行して進めた。次世代磁性デバイスとして注目されるスキルミオン材の TEM 観測用試料作成を進め、その TEM 観察に成功した(既報2報)<sup>[2]</sup>。また電子線に対してダメージを受けやすい試料として、カタラーゼ、バクテリオロドプシンを用いて電子線損傷効果を観察し、高速シングルショットの必要性と必要となるパルス幅・電子線量を見出すことに成功した。さらに、金ナノ粒子を用いた時間分解電子エネルギー損失分光(時間分解 EELS)を実施し、時間分解計測の材料開発への有効性を示す結果を得た。これら時間分解 TEM 像や時間分解 EELS の時間情報に多変量解析、主成分分析の適応を試みノイズ低減や時間に対して変化する情報を抽出することに成功し、実際の実験データへの適応が可能であること、低電子線量のデータへの応用による時間分解能の向上が可能であることが示された。また量子干渉実験への適応も可能であることを示すことができた<sup>[3]</sup>。

開発に成功した高密度パルス電子発生装置を実際の収差補正 TEM に実装するため、構造から制御ソフトウェアまで包括的な実装検討を実施した。構造設計や電子光学からの検討の結果、本研究機関に実現した電子銃を収差補正 TEM へ搭載可能な方式を決定し、複雑なパルス電子線発生ならびに時間分解測定を全自動化できるシーケンスを創出することに成功した。

本成果により、負の電子親和性 (NEA) 表面をもつ半導体を電子源とするコヒーレント超短パルス電子線発生装置と収差補正技術を組み合わせた透過電子顕微鏡(TEM)が作成可能であることを証明するに至った。本研究により、世界に先駆けて実現が可能であること、超高速時間分解測定において従来の光励起に伴う高速現象に限らない高い時間・空間分解を併せ持つ分析装置の創出が可能となった。

1. “パルス電子波を用いた時間分解透過電子顕微鏡”, 桑原真人, 横井里奈, 水野りら, 富樫将孝, 吉田優也, 永田渉, 古井雅人, 中蔵虎二郎, 石田高史, 顕微鏡 **55** 131 (2020)
2. “Smectic Liquid-Crystalline Structure of Skyrmions in Chiral Magnet  $\text{Co}_{8.5}\text{Zn}_{7.5}\text{Mn}_4(110)$  Thin Film”, T. Nagase, M. Komatsu, Y. G. So, T. Ishida, H. Yoshida, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, K. Saitoh, N. Ikarashi, M. Kuwahara, M. Nagao, Phys. Rev. Lett. **123** 137203 (2019)
3. “Intensity Interference in a Coherent Spin-Polarized Electron Beam”, M. Kuwahara, Y. Yoshida, W. Nagata, K. Nakakura, M. Furui, T. Ishida, K. Saitoh, T. Ujihara, N. Tanaka, Phys. Rev. Lett. **126** 125501 (2021)