OUKA
Osaka University Knowledge Archive

Title	超電子顕微鏡
Author(s)	高井, 義造
Citation	大阪大学低温センターだより. 2002, 118, p. 2-6
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/11624
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

研究ノート

超電子顕微鏡

工学研究科　高　井　義　造（内線7842）
E-mail: takai @ap.eng.osaka-u.ac.jp

1．はじめに

透過型電子顕微鏡は、発明されてすでに70年近くが経過し、今や原子・分子のレベルでの評価技術として物質科学と生命科学の両分野で確固たる位置を占めているのは周知の通りである。しかしながら技術的に一見成熟した感がある電子顕微鏡においても、いまだに解決されていない２つの大きな問題がある。１つは電子顕微鏡のレンズには球面収差が残存することである。光学顕微鏡では凸レンズと凹レンズの組み合わせレンズにより球面収差を除去し、光の波長に匹敵する空間分解能を実現できているが、電子顕微鏡に用いる電子レンズには凸レンズしかなく球面収差が残存する。そのため200 kV の電子顕微鏡の空間分解能は、原子や分子をかろうじて解像できる0.27 nm 程度にとどまっているのが現状である（電子の波長は0.0025 nm）。もう一つは電子波に対する理想的な位相板がないことである。光学顕微鏡の場合は、透過光もしくは散乱光に対して位相板を挿入することで、屈折率の変化に対応したコントラスト（厳密には位相変化量に対応したコントラスト、すなわち位相像）を観察することができる。電子波に対して、原子や分子は理想的に位相を変化させる究極の粒子である。すなわち原子や分子が存在する位置と存在しない位置では、電子波に対する屈折率が変化している。電子顕微鏡で原子や分子を観察するためには、電子波が原子や分子を通過する時に受けるこのわずかな位相変化を利用するため、電子波に対する理想的な位相板があることやわずかな位相変化を球面収差の影響なしに結像することこそ電子顕微鏡による原子・分子レベルの評価を行うための最大の課題となるわけである。

Gabor [1]はこれらの問題を解決しようとしてホログラフィーを発明したことは有名である。また多くの研究者によって球面収差補正位相像観察のための様々な方法が提案されてきた[2-5]。Ikuta は焦点位置を変化させて撮影した複数枚画像に対し、結像特性を反映した重み関数をかけて重ね合わせることで上記の２つの問題を同時に解決できる焦点位置変調法[6-10]を提案した。この方法は、すべての処理が画像空間で行われるという他にはない特徴をもっており、実時間処理を実現することができる。我々は日本学術振興会の援助を受けて平成８年度より５カ年計画でこの方式を組み込んだ超電子顕微鏡（無収差位相差電子顕微鏡）の開発[11,12]にとり組み完成させた。この新しい電子顕微鏡では、８マイクロ秒毎に次々に変わっていく加速電圧の下で得られる顕微鏡像を高速に撮影し演算処理する事で球面収差の影響が補正された位相像を原子レベルで動的に観察することが可能である。

本報告では、開発した電子顕微鏡を用いて表面原子構造や単原子の挙動を観察した結果を解説し、今後の低温技術との関わりについて述べる。

2．超電子顕微鏡の開発

図１は今回開発した超電子顕微鏡の外観図である。顕微鏡本体は、加速電圧200 kVの電界放出型透過電子顕微鏡(HF-2000F)をプラットホームにして開発されている。顕微鏡本体には、加速電圧を高精度で高速変調するために新しく開発された浮遊型加速電源と変調電源、および１/30秒以内に２枚の画像を撮影し両者の差分像をテレビ信号として出力できるCCDカメラ[13]が取り付けられている。またシステム全体は変調制御部でコントロールされている。変調制御部はCCDカメラからの出力映像信号を取り込むと同時に、変調電源部へ変調電圧データと変調同期信号を送信する。変調電源は送られてきた変調同期信号にタイミングを合わせて変調データに基づいて加速電圧変調を実行する。このサイクルを繰り返すことにより、１/30秒の時間分解能で球面収差補正した位相像が連続的にテレビモニター上に映し出される。

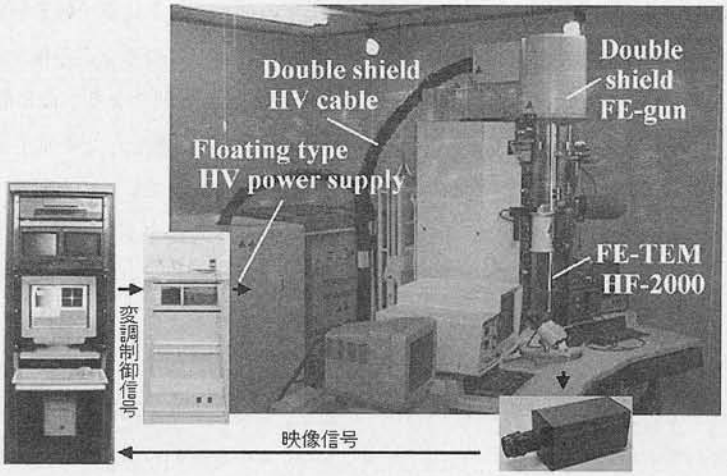

図１　超電子顕微鏡の外観図

新しい電子顕微鏡では、球面収差の補正効果により分解能が２倍近く向上し、200kVの電子顕微鏡において空間分解能0.14 nmが得られる。また、振幅像と分離された位相像のみの観察を実現し、究極の位相物体である単一原子や分子を高コントラストで観察することが可能となる。実時間観察の特徴を生かせば、個々の原子・分子を直視してその運動を論じる単原子ダイナミズムの研究を展開できると期待される。

3．超電子顕微鏡による球面収差補正位相像の観察

図２は通常の透過型電子顕微鏡と超電子顕微鏡を用いて、(110)金結晶と真空領域の境界を観察した結果である。図２(a)に示すように、通常の透過型電子顕微鏡では試料のない領域にも結晶格子の縞がしみだし、また試料のエッジのコントラストが明瞭でないため、正確な原子の位置を決定することは困難である。これに対し、図２(b)は超電子顕微鏡で撮影した同じ領域の球面収差補正位相像である。球面収差の収差補正効果により試料のない領域への干渉縞のしみだしがなくなり、正確に位相変化量を再現することで原子ステップの形状と結晶格子縞の両方が明瞭に観察できている。その結果、観察した$(\bar{1}10)$結晶表面は部分的に２×１原子列欠損型の再構成構造をしていることが確認できる。

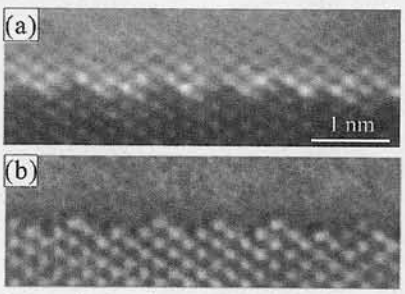

図２　金結晶表面の電子顕微鏡像
(a)従来の電子顕微鏡像（Δf=56nm）と(b)超電子顕微鏡による球面収差補正位相像。

超電子顕微鏡の最大の特徴は、図2(b)に示した球面収差補正位相像を実時間で動的に観察できる点にある。図3は、金単結晶薄膜の隣接した上下の2ポイントに電子線を収束させて孔をあけて原子架橋を形成し、観察時の電子線の照射により金原子架橋が更に細くなる過程を球面収差補正位相像で捉えたシリーズ写真[14]である。結晶変形を起こしながら徐々に細くなり、最終的には1次元の原子鎖が形成されていく過程が鮮明に捉えられている。(a)では双晶構造をした4原子層の厚さの原子架橋が中央にあり、(b)、(c)において電子線の照射と共にさらに細くなっていくのが観察される。ここで特に注目したいのは、球面収差補正位相像観察により単原子レベルのわずかな位相変化でもコントラストよく記録されている点である。(d)では最終的に一次元鎖にまで変化している。(d)−(e)の間では原子鎖と右側の結晶との接続点が1原子間距離移動しているのが観察される。また(a)と(f)の間では中央の格子点が左右にシフトしているのが観察できる。これは左右の完全結晶領域が徐々に離れていく過程において、中央の格子点が左右の結晶と影響を及ぼし合い、バルクとしての原子間距離を保とうとしているために発生した運動と考えられる。そのため、(d)−(f)においては深さ方向に複数の原子が存在することが予想される。切断する直前の金原子鎖を動的に観察することで、1次元状に見えている金原子鎖には更に2つの状態が存在することが判明した。図4は、金原子鎖が切断される直前の2枚の画像と中央の格子点の像強度分布を示している。像コントラストは両者の間でほぼ2倍の差がある。また(a)は結晶の投影原子間距離（0.25 nm）を示しているが、(b)の格子点間距離は最近接原子間距離（0.29 nm）になっている。我々は像強度分布（位相変化量に相当する）や格子点間距離、そして何よりも動的な観察を通じて、(b)で捉えた状態が単一原子鎖であろうと推定している。

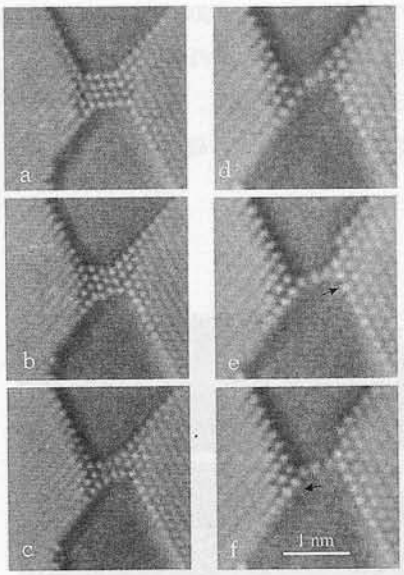

図3　原子架橋の動的観察
((a)0.00s, (b)2.27s, (c)6.27s, (d)6.80s, (e)7.47s, (f)7.60s)

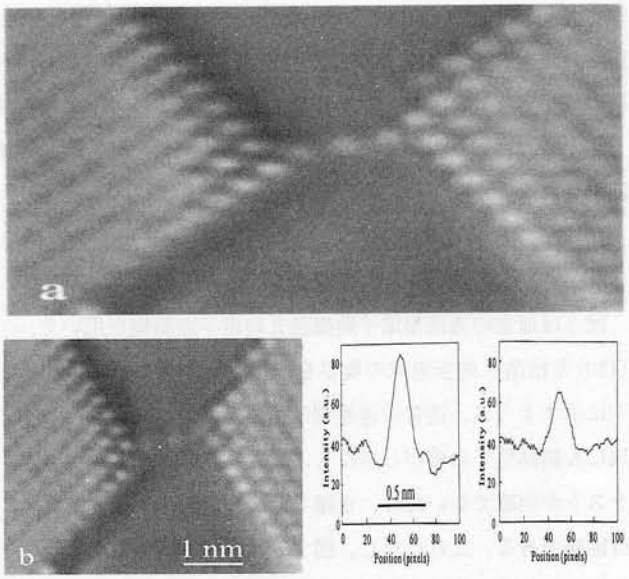

図4　金原子鎖の2つの状態

図5は直径2－3 nmのサイズのカーボン・ナノファイバーの通常の電子顕微鏡像と超電子顕微鏡像である。通常の電子顕微鏡像ではほとんどコントラストが消失しているが、超電子顕微鏡像では微細な

形状や組織構造が観察できる。光学分野における位相差顕微鏡（位相板を用いた顕微鏡）が生体組織観察に大きな貢献をしたように、超電子顕微鏡による位相差電子顕微鏡観察により軽元素を主とする物質の研究や生体組織の分子レベルでの研究を進めることを現在計画している。

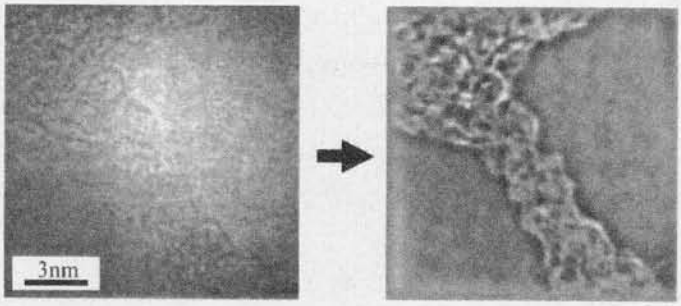

図5　カーボン・ナノファイバーの(a)通常の電子顕微鏡像と(b)超電子顕微鏡像

4．むすび

超電子顕微鏡の開発により、球面収差による像のボケや歪みを解消して原子や分子を通過するときに発生したわずかな位相変化量を鮮明なコントラストで再現することが可能になった。しかもリアルタイムで動的に観察できることから単原子・単分子のダイナミズムの研究が展開できると考えている。また位相像観察は生体高分子などの分子レベルの研究にも応用が期待される。生体高分子を観察する場合の最大の課題は電子線照射損傷をいかに抑えるかにあるように思われる。生体高分子に対する電子線照射損傷はサンプルを極低温に保持することで2桁近く抑えられることが知られている。我々は生体試料を液体ヘリウム温度に保持しながら超電子顕微鏡観察する準備を整え現在実験を開始している。

本手法は電子顕微鏡にとどまらず結像光学系を有する荷電ビームシステム全般に適用することができる。本手法を応用した種々の新しい荷電ビーム工学装置の誕生がナノテクノロジーに新しい飛躍と発展をもたらすことを期待している。

謝　辞

本研究は日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業の援助を受けて行われたものである。浮遊型電源の開発に対しては㈱日立製作所、演算機能を有するCCDカメラの開発に対しては㈱新日本電工、制御システムの開発に対しては㈱CEDシステムの技術者の方々に多大のご協力をいただきました。ここに深甚の謝意を表します。

参考文献

[1] D. Gabor : Nature **161**, 777, (1948).

[2] P. Schiske : In: Image Processing and Computer-Aided Design in Electron Optics. Hawkes PW (ed). Academic Press, London. pp 82, (1973).

[3] W. O. Saxton : In: Advances in Electronics and Electron Physics. Marton L (ed). Academic Press, New York. pp 289, (1978).

[4] P. W. Hawkes : In: Computer Processing of Electron Microscope Images. Hawkes PW (ed). Springer, Berlin. pp 1, (1980).

[5] M. Op de Beek, D. Van Dyck and W. Coene : Ultramicroscopy, **64**, 167, (1996).

[6] T. Ikuta : J. Electron Microsc., **38**, 415, (1989).

[7] Y. Taniguchi, Y. Takai, T. Ikuta and R. Shimizu : J. Electron Microsc., **41**, 21, (1992).

[8] Y. Taniguchi, T. Ikuta and R. Shimizu, Optik **96**, (1994)129-135

[9] T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu and T. Ikuta : Ultramicroscopy, **54**, 261, (1994).

[10] T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu and T. Ikuta : J. Electron Microsc., **43**, 10, (1994).

[11] Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi : J. Electron Microsc., **48**, 873, (1999).

[12] Y. Takai, Y. Kimura, T. Ikuta, R. Shimizu, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi : J. Electron Microsc., **48**, 879, (1999).

[13] K. Nishikata, Y. Kimura, Y. Takai, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Fujimoto, S. Yumen and Y. Hashimoto : Optik, **112(3)**, 97, (2001).

[14] Y. Takai T. Kawasaki, Y. Kimura, T. Ikuta, and R. Shimizu : Phys. Rev. Let. **87**, No.10, 106105, (2001).

用語説明

超電子顕微鏡：従来の電子顕微鏡の機能を越えているという意味で名付けられた。球面収差によって制限された解像度を超える位相像観察が実現できるという意味で超解像位相差電子顕微鏡と呼んだり、焦点位置を変調しながら球面収差補正位相像観察を実現するという意味で、実時間焦点位置変調電子顕微鏡と呼ぶ場合もある。

球面収差：光軸上の１点からでた光線がレンズを通った後、光軸上の１点に集まらないで前後にずれる収差をいう。電子顕微鏡の分解能を制限する最も重要な収差である。

位相像と振幅像：入射光（入射電子波）が物体を通過する際に受ける振幅や位相量をコントラストとして再現した像をそれぞれ位相像、振幅像と呼ぶ。一般の物体はその両方の成分を持っている。電子顕微鏡において、試料が極めて薄い場合は入射電子波の振幅はほとんど変化せず、位相のみがわずかに変化する。位相変化量は原子の個数や種類によって決まるため、球面収差を補正した歪みのない位相像を再現することで結晶の原子構造を解明することが可能になる。