

Title	電子線ホログラフィー顕微鏡法の開発
Author(s)	原田, 研
Citation	大阪大学, 1991, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.11501/3085231">https://doi.org/10.11501/3085231</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

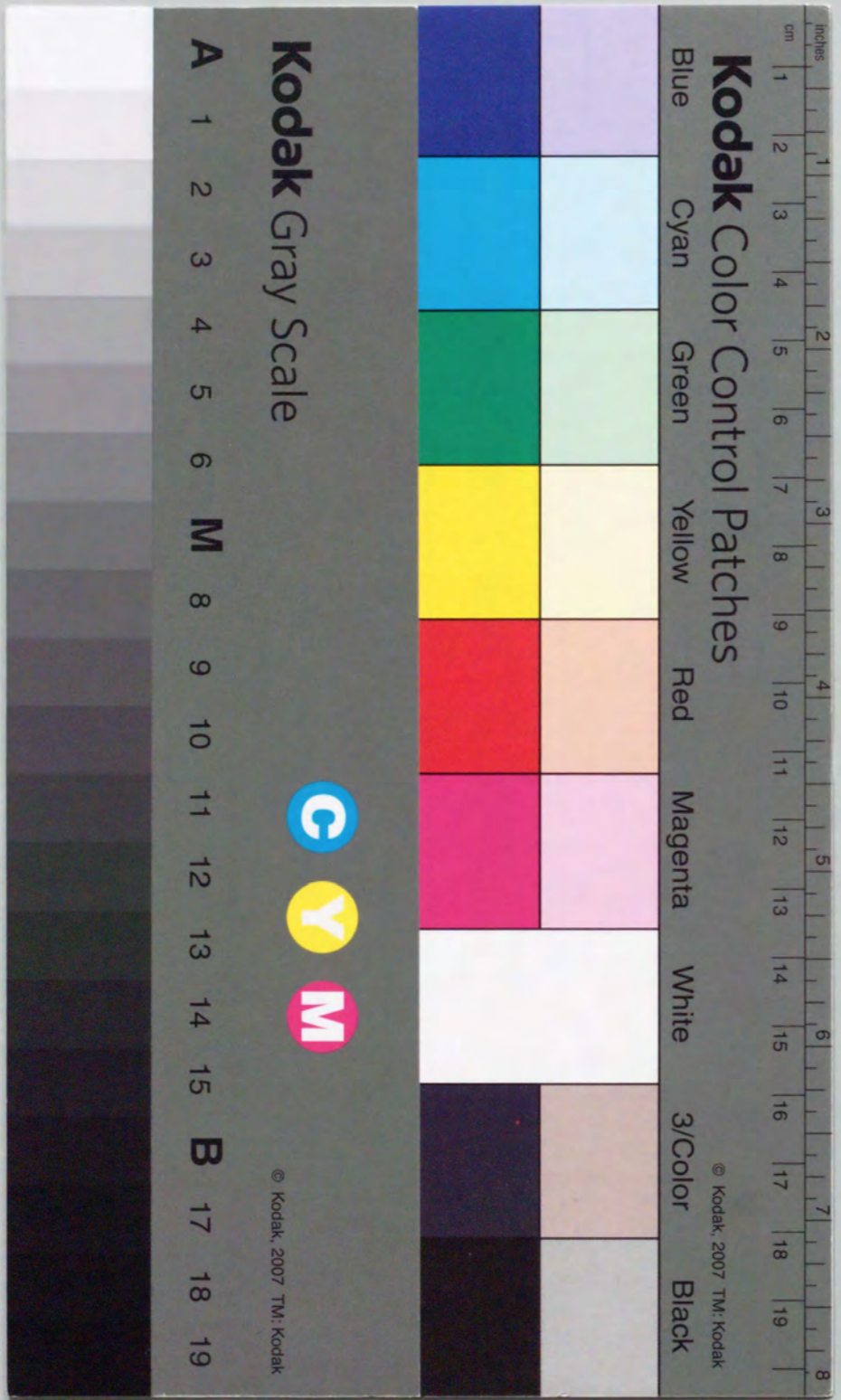
<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

電子線ホログラフィー顕微鏡法の開発

1990

原田研



①

電子線ホログラフィー顕微鏡法の開発

1990

原 田 研

緒論	1
第1章 電子線ホログラフィー	
1-1 緒言	4
1-2 電子線ホログラフィー開発の歴史及び過程	4
1-2-1 電子線ホログラフィーの発明	4
1-2-2 電子線バイプリズムの発明	5
1-2-3 高輝度電子銃の開発	6
1-3 電子線ホログラフィー	8
1-3-1 一光束フラウンホーファーホログラフィー	8
1-3-2 二光束電子線ホログラフィー	10
1-3-3 その他の電子線ホログラフィー	14
1-4 位相分布再生法概説	17
1-4-1 光学再生法	17
1-4-2 デジタル画像処理による再生法 1 (フーリエ変換再生法)	21
1-4-3 デジタル画像処理による再生法 2 (縞走査再生法)	23
1-4-4 二重露光法	25
1-5 フーリエ変換再生法とその応用	26
1-5-1 物体波の再生	26
1-5-2 干渉顕微鏡像の作成	30
1-5-3 位相差増幅法	32
1-6 電子線ホログラフィーの現状	34
1-7 結言	35
第2章 高輝度電子銃の開発と輝度測定	
2-1 緒言	36
2-2 電子線の可干渉性と輝度	37
2-2-1 輝度	37
2-2-2 輝度と波面の広がり	39

2-2-3	コヒーレンス度と有効光源	41
2-3	LaBe 単結晶陰極のエミッションパターン観察による熱電界放射特性	47
2-3-1	装置及び実験方法	47
2-3-2	熱電界蒸発法	50
2-3-3	4回対称クリーンパターン	52
2-3-4	4回対称クリーンパターンの形状変化	53
2-3-5	熱電界放射の電流特性	56
2-4	ショットキープロットによる特性評価	57
2-5	LaBe 単結晶陰極の電界放射特性	60
2-6	透過型電子顕微鏡による輝度測定法	61
2-6-1	電流密度と開き角より求める方法 1	61
2-6-2	電流密度と開き角より求める方法 2	63
2-6-3	電流密度と開き角より求める方法 3	64
2-6-4	単位立体角当りの電流量と光源の大きさより測定する方法	67
2-7	LaBe 熱電界放射陰極の輝度測定	69
2-7-1	JEM-100CX-FEG、電子銃部分の構造	69
2-7-2	実験方法	70
2-7-3	結果	71
2-8	結言	74
第3章 電子線バイプリズムの開発		
3-1	緒言	75
3-2	電子線バイプリズム	75
3-3	電子線バイプリズムの屈折効果	77
3-4	電子線バイプリズムの干渉縞間隔及び干渉領域	79
3-5	電子線バイプリズム中央極細線電極作製法	81
3-5-1	石英ガラス極細線取扱法	82
3-5-2	石英ガラスフィラメントによる干渉縞の作成	85
3-5-3	白金極細線取扱法	87
3-5-4	加熱清浄型電子線バイプリズム	89
3-5-5	通電加熱	90

3-5-6	白金フィラメントによる干渉縞の作成	93
3-6	電子線の非対称偏向によるホログラムの変化の観察	97
3-7	電子線ホログラフィーによる金微粒子の観察	100
3-7-1	演算処理による再生像の観察	101
3-7-2	二重露光法による位相分布の観察	102
3-8	他の透過型電子顕微鏡による干渉縞の観察	104
3-8-1	JEM-4000EX による干渉縞の観察	104
3-8-2	JEM-100C-FEG による干渉縞の観察	107
3-9	結言	109
第4章 空間周波数拡張再生法		
4-1	緒言	110
4-2	原理	111
4-2-1	再生像の分解能	111
4-2-2	空間周波数拡張再生法の原理	114
4-3	実験装置	115
4-4	結果及び考察	118
4-4-1	MgO 微結晶の観察	118
4-4-2	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 微粒子の観察	122
4-4-3	考察	125
4-5	結言	127
第5章 縞走査再生法		
5-1	緒言	128
5-2	原理	129
5-2-1	モアレトポグラフィーの応用による干渉顕微鏡像の作成	129
5-2-2	縞走査再生法の原理	132
5-3	実験装置及び方法	133
5-4	結果及び考察	135
5-4-1	オフライン縞走査再生法による再生結果	135
5-4-2	フーリエ変換再生法との比較	139

5-4-3 オフライン縞走査実時間再生法について	142
5-5 格子移動再生法	144
5-6 結言	147
<b>第6章 電子線ホログラフィーによる収差補正</b>	
6-1 緒言	148
6-2 原理	150
6-2-1 収差補正の原理	150
6-2-2 波面収差関数	152
6-2-3 波面収差関数読解法	156
6-3 実験方法	159
6-4 結果及び考察	160
6-4-1 Scherzer の式による収差補正	160
6-4-2 波面収差関数読解法の困難さと可能性について	165
6-5 結言	168
<b>第7章 干渉縞形成に関するシミュレーション</b>	
7-1 緒言	169
7-2 干渉縞強度分布の導出	169
7-3 結果及び考察	175
7-3-1 実験結果との対応	175
7-3-2 干渉縞コントラストの電子線開き角依存性	177
7-3-3 干渉縞コントラストのフィラメント径依存性	179
7-4 結言	182
<b>総括</b>	183
<b>参考文献</b>	189
<b>謝辞</b>	196

緒論

ホログラフィーは、今日では科学の1分野であるのみならず、芸術や商業にまで使用されるレーザー光を用いた立体映像技術として広く一般に知られるに至っている。しかしながら、その発明の発端は電子線の波面を光の波面で再現し、光学技術の助けを借りて、電子レンズの収差を補正しようという考えに基づくものであった。ホログラフィーを行なうには、光であれ、電子線であれ、何よりもまず位相のそろった可干渉性の良い光源が必要となる。光の分野ではレーザーの発明により、この条件が満たされるや否や、ホログラフィーが急速に発展して言ったことは周知の事実である。

可干渉性の良い電子線源の開発という技術的困難から出遅れた感のある電子線ホログラフィーは、高い輝度を持った電界放射型電子銃の開発によって実用化の域に達した。電子線の波面を光の波面に置換するというアイデアは現実のものとなり、それまではシミュレーションと比較するなどの方法により、間接的にしか知ることのできなかった電子線の位相分布の直接観察を可能にした。電子線の位相分布に変化を与えるものであれば、物質でなくても観察対象となり得るので、従来の電子顕微鏡に新たな観察手段を提供することになった。それが干渉顕微鏡法である。現在までに、枕木磁壁など薄膜中微小磁区の観察、Aharonov-Bohm 効果の検証、超伝導体を貫く磁束量子の観察、p-n 接合における電位分布の観察、表面粗さの測定、表面ステップの観察、そして格子像レベルでの位相分布の観察など多岐に渡った応用が試みられている。

しかしながら、問題点も明らかとなってきている。本質的にホログラフィーはホログラムの記録、ホログラムからの像再生と2段階の写真処理を経なければならず、実時間性に欠ける。また、現在でもなお電子線ホログラムからの像再生はレーザーによる光学再生がほとんどである。この場合、位相分布は不連続な等位相線によって観察することになり、測定法としてあまり高い精度は期待できない。位相分布の検出感度を上げる位相差増幅法を用いた場合でも、空間内に何本の干渉縞を再生できるかという点はその限界を与えている。そして、電子線ホログラフィーの高倍率化、高分解能化が進むにつれて、ホログラムに同時に記録されてしまう電子レンズの球面収差が問題として再び浮かび上がってきている。

本研究では、独自に加熱清浄型電子線バイプリズムを開発し、バイプリズムの寿命延長により実用化を果たすと共に、近年行なわれ始めたフーリエ変換を用いたデジタル画像処

理による像再生、及びその他に電子線ホログラムの実時間性を高めると同時に精度の向上を実現するための新たな2種類の再生方法を開発した。それに関連して、写真処理を全く用いずオンライン処理により像再生を行なうシステムの開発を行なった。また、電子線ホログラフィーに必要な不可欠な高輝度電子銃に関連して、LaBe単結晶陰極の熱電界放射による高輝度化についての基礎的研究を行ない、高輝度電子銃の開発に成功した。

本論文は以上の研究についてまとめられたものであり、全体の構成は下記の7章より成っている。

第1章では、電子線ホログラフィーの歴史的な発展の過程、及び原理について概説している。ホログラムからの位相分布再生法については、観察対象と関連づけながら説明を行ない、特にフーリエ変換再生法に関しては、具体的な例を示しながら光学再生との関係を踏まえて詳述している。そして、電子線ホログラフィーの現状について述べ、本研究の位置づけを行なっている。

第2章では、電子線の可干渉性と輝度の概念について述べ、高輝度電子銃が電子線ホログラフィーにとって必要不可欠であることを説明している。次いで、高輝度電子銃開発のために行なったLaBe単結晶からのエミッションパターン観察と、それによって得られた安定動作条件について述べている。そして、開発したLaBe熱電界放射型電子銃を実際に透過型電子顕微鏡に取り付け、輝度測定を行なった結果について述べている。

第3章では、電子線バイプリズムについてその屈折効果などの一般論から、本研究で開発した加熱清浄型電子線バイプリズムの構造や特徴について、実際に透過型電子顕微鏡に取り付けて行なった基礎実験結果と共に述べている。さらに、金微粒子を試料に用いた電子線ホログラムの記録、及びデジタル画像処理による像再生など、電子線ホログラフィーとしての予備実験について述べている。

第4章では、開発した空間周波数拡張再生法について述べている。これはデジタル画像処理の中では現在最も一般化しているフーリエ変換再生法を改良し、高い空間周波数を持った再生像を得られるようにしたものである。この再生法では、電子線ホログラフィーのオンライン処理システムが必要であり、併せてそのシステムの開発を行なった。そして、予備的な実験により、開発した空間周波数拡張再生法の有効性について確認している。

第5章では、光学における縞解析法とモアレトポグラフィーの技術を応用した縞走査再生法について述べている。この方法は、再生像に含まれる空間周波数を拡張できる利点と共に、像再生にフーリエ変換を必要としないため処理時間が短く、実時間再生像観察への

可能性を持っている。この実時間再生像観察を実現するための具体的な方法についても併せて提案を行なっている。

第6章では、電子線ホログラフィーのデジタル画像処理による像再生の応用例として、電子レンズの収差の補正に関して予備的な実験を行ない、電子線ホログラフィーが電子レンズの球面収差に対しても有効な補正手段となり得る事を結論している。

第7章では、電子線バイプリズムによって干渉縞が形成されていく過程をシミュレーションによって再現し、電子光学系における電子線バイプリズムの位置や、電子線の開き角など、実際には測定困難な種々のパラメーターが定まることを確認している。

最後に、総括において、上記研究成果をまとめ、併せて今後の指針についても触れている。

## 第1章 電子線ホログラフィー

### 1-1 緒言

透過型電子顕微鏡は、試料により散乱を受けた電子線を結像することにより、その試料からの情報を像として目に見える形で検出する装置である。ここでは電子線を波として取り扱っている。電子線ホログラフィーは、この波としての取り扱いをさらに一歩進め、散乱を受けた電子線の位相分布をも観察することによって対象としている物質または現象からの情報を余すところなく利用しようとする技術である。この方法においては、電子線の位相に変化を与えるものならば何でも観察の対象となり得、電界分布、磁界分布の観察はもとより、ベクトルポテンシャルの実証など従来の電子顕微鏡では成し得なかった観察を可能にする新しい観察技術として実用化の段階にさしかかっている。

電子線ホログラフィーもその発展段階においては、一光束ホログラフィーや、フーリエ変換ホログラフィーなども試みられたが、電界放射型電子銃の開発により十分に可干渉な電子線が得られるようになってから後は、二光束イメージホログラフィーが一般的になっている。しかし、二光束イメージホログラフィーであっても観察しようとする対象に応じてその光学系の構成や、再生方法に多種、多様性があり、それぞれの特徴を生かす方法が取られている。

本章では、電子線ホログラフィーの発展してきた過程を概観するとともに、今日までに得られている結果について述べる。また、ホログラムから位相分布を検出する様々な再生方法について、特に光学再生法に変わる、数値演算処理再生法として最も一般化しているフーリエ変換法については、光学再生法との関連についても詳述する。

### 1-2 電子線ホログラフィー開発の歴史及び過程

#### 1-2-1 電子線ホログラフィーの発明

電子線ホログラフィーは電子レンズの球面収差を補正し、電子顕微鏡の分解能を向上させる方法の1つとして Gabor (1948, 1949, 1951) によって提案されたものである。電子

線の振幅位相分布をそっくりそのまま記録しておき、これを光波に置き換えることによって光学ベンチ上で光学技術の助けを借りて電子レンズの収差を補正しようというアイデアであった。これと似た考えには Bragg (1942) によるX線回折顕微鏡がある。これはX線による回折パターンを記録しておき、これを光波により光学技術によってフーリエ変換して元の像を再現しようというものであった。これはバターソン図形の観察などとして現在でも結晶解析に使用される方法であり、試料の持っていた空間周波数を再現できる方法であるが、回折面での位相分布が記録されていないため、完全な元の像の再生はできなかった。この問題は以後、電子顕微鏡における位相問題として、物体像とその回折像を用いる方法 (Gerchberg and Saxton, 1971)、また、2枚のフォーカスの異なる写真を用いる方法 (Misell, 1973)、半円形の相補的な対物絞りをを用いる方法 (Misell et al., 1974) などの新たな提案を生むきっかけとなったがいずれも実用化には至っていない。

Gabor (1948, 1949) の方法は、物体によって散乱を受けた電子線 (物体波) にもう1つ別の電子線 (参照波) を重ね合わせることによって物体波の位相分布を干渉縞として記録するものであった。具体的には物体で散乱を受けた波とその周囲を散乱を受けずに透過した波との干渉を観察するもので、現在一光束ホログラフィーと言われているものである。Gabor は水銀灯を用いて光波による実験を行ない、見事に自分の考えの正しいことを証明してみせたが、電子線でホログラフィーを行なうには当時はまだ技術レベルが低かったようである。すなわち可干渉な電子線を得ることが非常に困難だったのである。この後レーザーが発明されるに至り、ホログラフィーが光の分野で急速に発展して行ったのは周知の通りである。

#### 1-2-2 電子線バイプリズムの発明

電子線ホログラフィーに対する努力はその後も続けられてきたが、初期の頃はホログラフィーとしての像観察よりも電子線干渉計としての開発が先行した。Marton (1952)、及び Marton et al. (1953) は3枚の単結晶薄膜をわずかな間隔をあけて配置し、Bragg 反射によって分割された電子線が、次の薄膜での Bragg 反射によって再び入射方向に戻る際に発生する干渉現象を観察した。これは振幅分割型の干渉計となっており、165 nm の縞間隔で約 154 本の干渉縞を得たがそのコントラストは低いものであった。Möllenstedt and



Düker (1955, 1956) によって発明された電子線バイプリズムは光学における Fresnel の複プリズムに対応するもので、これにより波面分割型干渉計が作製された。電子線バイプリズムを用いると非常にコントラストの高い干渉縞を作ることができ、最高 300 本の干渉縞が報告されている。当時既に 300 本の干渉縞が得られていたということは驚くべきことである。この電子線バイプリズムについては第 3 章にて詳述するが、その構造は中央部に極細線電極（以下フィラメントという）を配し、その両側に平行平板型接地電極を置く極めて簡単なものである。電子線の可干渉領域が小さいことからフィラメントは細いほど良く、発明された当初は、今日主に使用されている石英ガラス線に金を蒸着したもののみならず、タングステン線 (Tomita et al., 1970) や、クモの糸 (Komrska et al., 1964a, 1964b) なども試みられた。また、中央にフィラメントを必要としない磁界型電子線バイプリズムも Krimmel (1960)、及び Boersch et al. (1960) によって相次いで作製されたが、こちらの方は一般化するに至らなかった。Möllenstedt らのグループは、発明した電子線バイプリズムを用い、膜厚差の測定 (Keller, 1961)、平均内部電位の測定 (Kerschbaumer, 1967; Schaal, 1971)、接触電位差の測定 (Krimmel et al, 1964; Brünger, 1972)、Aharonov-Bohm 効果の検証 (Möllenstedt and Bayh, 1962; Bayh, 1962) などそれぞれにすばらしい成果を上げたが、ホログラフィーには至らなかったようである。Möllenstedt and Wohl (1968) により二光束式の電子線ホログラフィーが試みられたのは、Leith and Upatoniek (1962, 1963) による二光束ホログラフィーよりも後年であった。もしも、Gabor による電子線ホログラフィーと Möllenstedt による電子線バイプリズムの発明の順序が逆であったならば、Gabor は二光束式のホログラフィーを考案していたであろうか。

### 1-2-3 高輝度電子銃の開発

Gabor はレーザーのような高い可干渉性を持った光源が存在しなかった当時、波面のそろった光を使用した実験を行なうためにかなり努力を要したようであるが、電子線ではさらに条件が悪かった。それでも可干渉性のよい電子線を作り出し、ホログラフィーを行なう努力は払われていた。Haine and Mulvey (1952) はタングステンヘアピン型熱電子銃の前面に穴径約  $2 \mu\text{m}$  の絞りを配置し、点光源を実現しようとしたが、そもそもタングステ

ンヘアピン型熱電子銃の輝度が不足であった上、得られた再生像には Twin Image の影響が現われていた。

電子線ホログラフィー発展過程の初期にあつては Hibi (1956) の開発によるポイントフィラメントが最も注目に値する。これはタングステンヘアピンに先端を先鋭にした tip を取り付け、この tip 先端のみから発生する熱電子を電子線源として使用するものである。これは電子線源の大きさそのものを小さくすることができ、可干渉な電子線源を作るといふ目的にかなったものであつた。初期の頃の電子線干渉の実験や、電子線ホログラフィーの実験にはすべてこのポイントフィラメントが電子線源として使用されていただけでなく、1970 年代後半に LaB<sub>6</sub> 熱電子銃が実用化されるまでは、高倍率用、高分解能用の電子顕微鏡にはほとんどこのポイントフィラメントが使用されており、たいへん意義深い発明であつた。電子線ホログラフィー実現の可能性については、このポイントフィラメントを用いて Tonomura et al. (1968) による一光束フラウンホーファーホログラフィー、Tomita et al. (1970, 1972) による二光束イメージホログラフィーにおいて実証されたが、電子顕微鏡像より得られる以外の情報を得ることはできず、電子線の可干渉性すなわち電子線源の輝度の不足が明らかであつた。

Crewe et al. (1968) によって電界放射型電子銃が開発されると、電子線の可干渉性が飛躍的に向上する可能性が生まれた。電界放射型電子銃は極めて先鋭にした金属製 tip の先端に強電界を集中させ、加熱することなく電子を引き出すもので、理論的には直径 3 nm 程度の極めて小さな電子線源を作り出すことができる。tip を若干加熱して使用するものを熱電界放射型、加熱を要しないものを電界放射型と区別するが、いずれも輝度に直して 2~5 桁熱電子銃よりも高い値が期待された。そして Tonomura et al. (1978, 1979a) により加速電圧 70 kV において輝度  $2 \times 10^8 \text{ A/cm}^2 \cdot \text{st}$  という従来の熱電子銃よりも 2 桁以上輝度の大きい電界放射型電子銃を備えた電子顕微鏡が開発されるに至り、電子線ホログラフィーは漸く現実のものとなった。

電界放射型電子顕微鏡開発後の電子線ホログラフィー発展には目覚ましいものがある。丁度レーザー開発後のホログラフィーの発展と似ているのではなかろうか。磁性薄膜中の磁界分布や、p-n 接合中の電界分布など電子線の位相分布に変調を与えるのみで、従来の電子顕微鏡では観察が困難であつた物質、及び Aharonov-Bohm 効果の実証に見られるように物質に限らず、現象そのものが電子線の位相変化を直視観察することにより、詳細に、かつ定量的に議論できるようになった意義は大きい。しかしながら、電界放射型電子銃や

電子線バイプリズムの取り扱いに多少の困難が存在するため、広く用いられるには至っていない。また、ホログラフィーとしての観点からもホログラムの記録、ホログラムからの像再生と2段階の手順それぞれに改良の余地が残されているようである。

### 1-3 電子線ホログラフィー

#### 1-3-1 一光束フラウンホーファーホログラフィー

Leith and Upatnieks (1962, 1963) による二光束ホログラフィーは Twin Image の問題をみごとに解決していたが、DeVelis et al. (1966) らによって、一光束ホログラフィーであっても物体にとってフラウンホーファー領域でホログラムの記録を行えば Twin Image の影響のない再生像の得られることが示された。

電子線による一光束フラウンホーファーホログラフィーは Tonomura et al. (1968) によって行われ、Twin Image の影響のない再生像が得られた。実験には、加速電圧 100 kV、ポイントフィラメントを搭載した電子顕微鏡が使用された。電子顕微鏡内でのホログラム記録光学系、及び再生光学系を図 1-1 に示す。

電子線は、第2コンデンサーレンズにて平行にし、試料に  $10^{-12}$  st 程度の開き角にて照射された。試料は、対物レンズの in-focus 面から 2 mm 電子線源側に配置された。電

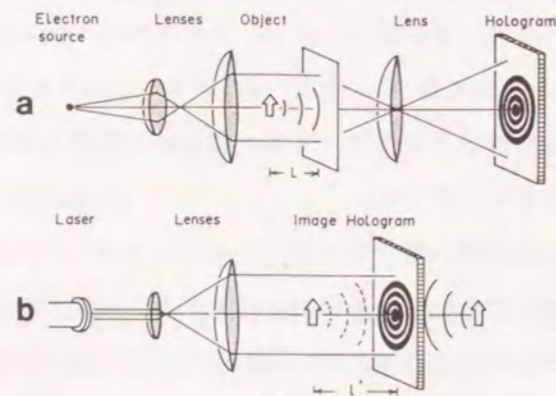


図 1-1 一光束電子線ホログラフィー光学系 (Tonomura et al., 1968)

(a) 記録光学系, (b) 再生光学系

子顕微鏡での直接拡大倍率は 3000 ~ 6000 倍、電子流密度が極めて低いため、ホログラムは 10 分の露光時間を要してフィルムに記録された。実際には一光束ホログラフィーであるのと、コントラスト強調を重ねてフィルムは一度反転処理を行ない、それがホログラムとされた。

像再生には He-Ne レーザーが用いられた。レンズ系により広げられたレーザー光がホログラムに照射され、ホログラム後方に結像する実像の観察が行なわれた。図 1-2 にグラフィット薄膜上の金微粒子についての実験例を示す。(a) が電子顕微鏡像、(b) はホログラム、(c) が再生像である。(a) ではグラフィット上のステップに優先的に金微粒子の付着が観察されているが、(c) の再生像でそれが見事に再生されている。試料と、対物レンズの物面との距離 2 mm は、金微粒子の大きさが約 10 nm であることから十分フラウンホーファー条件を満足する。酸化亜鉛結晶での実験例を図 1-3 に示す。この微結晶は全体の大きさが  $0.5 \mu\text{m}$  であり、フラウンホーファー条件を満足していないが、1本の針状部は十分に細く、おおよそフラウンホーファー条件を満足していると考えてよい。像再生時に針状部の各点に焦点を合わせることができ、立体像の再生されていることが確認されている。

Tonomura らによる一光束フラウンホーファーホログラフィーでは約 2 nm の分解能が報告されていたが、その後 Munch (1975) により電界放射型電子銃を用いて約 1 nm、Bonnet et al. (1978) により約 0.7 nm とそれぞれ向上した値が報告されている。

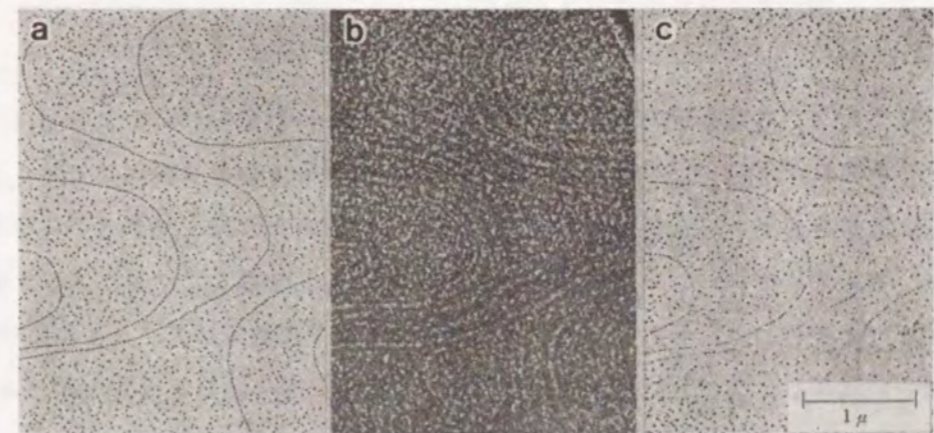


図 1-2 金微粒子についての一光束フラウンホーファーホログラフィー (Tonomura et al., 1968)

(a) 電子顕微鏡像, (b) ホログラム, (c) 再生像

またフラウンホーファーホログラフィーではないが、一光束ホログラフィーを走査透過型電子顕微鏡にて行い、デジタル処理による像再生並びに電子光学系の収差補正の試みが Cowley and Walker (1981)、及び Lin and Cowley (1986) により行なわれている。しかしながら、レーザーの場合と同様に Twin Image の問題が残っており、有用性において二光束ホログラフィーに勝るものではなく一般化するには至っていない。

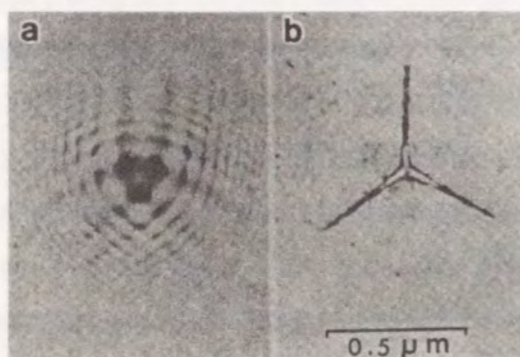


図 1-3 酸化亜鉛結晶の像再生 (Tonomura et al., 1968)  
(a) ホログラム, (b) 再生像

### 1-3-2 二光束電子線ホログラフィー

電子線にて行なわれた最初の二光束ホログラフィーは Möllenstedt and Wahl (1968) によるフレネルホログラフィーであった。図 1-4 (a) にフレネルホログラフィーとしての模式図、(b) にホログラム、及び (c) に再生像を示す。試料としてタングステン極細線が用いられた。像再生にはレーザー光が用いられ、図 1-4 (c) で確かにタングステン線の再生されていることが分かる。しかしながら、使用された電子顕微鏡はスリットにより作られた線光源を円筒型レンズにて結像する構造となっており、電子線は 1 次元方向のみ可干渉性が良くなっており、1 次元のホログラムとその再生像と考えられる。

最初の明瞭な再生像は Tomita et al. (1970, 1972) によってイメージホログラフィーにて得られた。彼らは電子線源にはポイントフィラメントを用い、対物レンズの後焦点面と、像面と間にバイプリズムを配置する今日最も一般的となっている光学系を採用した。

図 1-5 にその光学系を示す。この光学系の構造は、Faget and Fert (1957) によって考案されたもので、像とバイプリズム、及びバイプリズムによる干渉縞を同時に同じ視野の中に観察することができ、Buhl (1959) により干渉顕微鏡として使用されていたものである。電子顕微鏡の光学系の中では最も良く調整された強励磁のレンズである対物レンズの後焦点を光源とするため、可干渉性のよい電子線を作ることが可能であり、コントラストのよい干渉縞を観察することができる、という利点を持っている。図 1-6 に実験結果を示す。(a) は電子顕微鏡像、(b) はホログラム、(c) は He-Ne レーザー光を用いた再生像である。

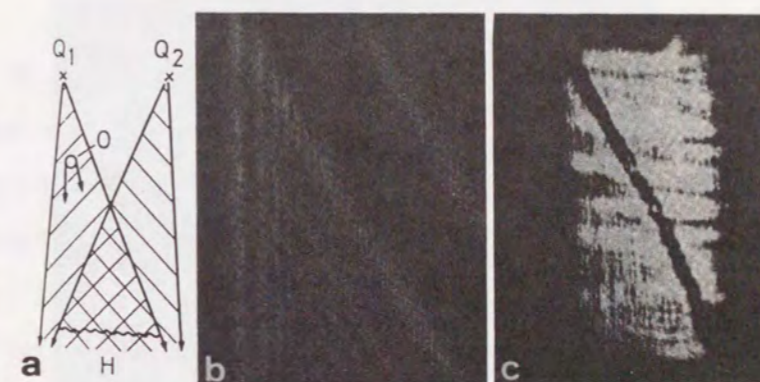


図 1-4 タングステン細線の像再生 (Möllenstedt and Wahl, 1968)  
(a) ホログラム記録系の模式図, (b) ホログラム, (c) 再生像

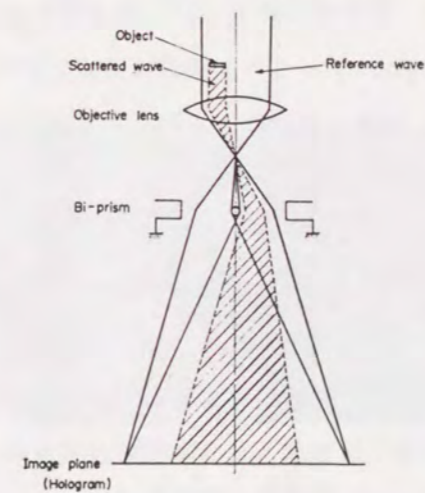


図 1-5 ホログラム記録光学系の模式図 (Tomita et al., 1972)

試料には、MgO 微結晶が用いられ、電子顕微鏡像と対応した再生像が得られている。

電界放射型電子銃を用いた二光束ホログラフィーは Saxon (1972) によるフレネルホログラフィーが初めてである。Saxon は加速電圧 20 kV の電界放射型電子顕微鏡の電子線バイプリズムフィラメントに付着させた MgO 微結晶を試料に、そのフレネル回折波と参照波とを重ね合わせてホログラムを作成した。図 1-7 に実験結果を示すが、図 1-6 のポイントフィラメントによるイメージホログラフィーと比較して改善されているとは言い難い。これは、用いられたバイプリズムフィラメントの直径が 2 ~ 3  $\mu\text{m}$  とかなり大きく波面

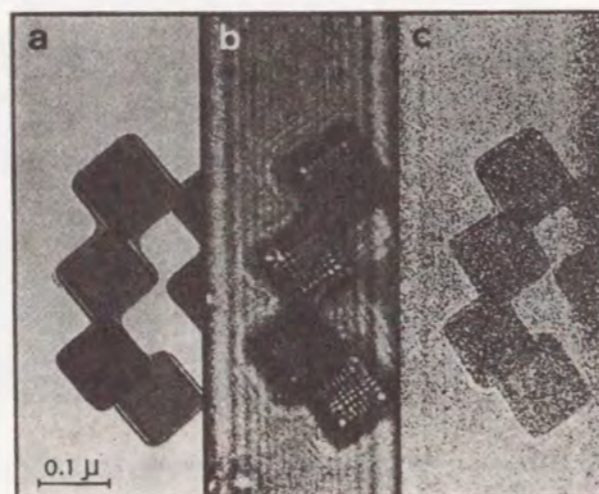


図 1-6 MgO 微結晶の像再生 (Tomita et al., 1972)  
(a) 電子顕微鏡像, (b) ホログラム, (c) 再生像

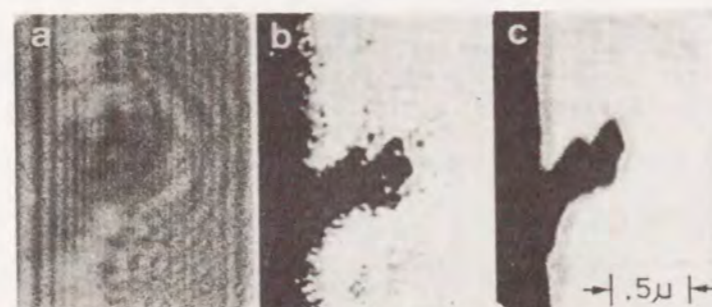


図 1-7 MgO 微結晶の像再生 (Saxon, 1972)  
(a) ホログラム, (b) 再生像, (c) 走査型電子顕微鏡像

の可干渉性の良い領域がフィラメントの陰として使用できていないこと、ホログラムの電子光学系による拡大倍率が 1000 倍と小さく、しかも直接フィルムに露光せず、蛍光板、及び光ファイバーを通じた後にフィルムに記録していることにより、ホログラム上での S/N 比が逆に劣化してしまったためと推定される。しかしながら、今日の電子顕微鏡用高感度 TV カメラシステムでは同様の光ファイバーを用いたシステムとなっており、これを電子線ホログラフィーに使用したという点では先駆的なものである。

以上までの実験により、電子線ホログラフィーが間違いなく可能であることは立証されたが、この時点までの電子線ホログラフィーでは、電子顕微鏡で得られる以上の情報は得られず、電子レンズの球面収差を補正するという当初の目的をはじめ電子線の位相分布より試料の物性に対して新しい知見を得ることはできなかった。

二光束電子線ホログラフィーの分解能については、イメージホログラフィーの場合、干渉縞の間隔が再生像の分解能に対応し、高分解能のホログラム再生像を得るためには、細かい間隔の干渉縞が記録できなければならない。Weingärtner et al. (1969, 1970) により、二光束イメージホログラフィーでは約 0.04 nm の点分解能を達成できる可能性が指摘されていたが、Tomita ら、及び Saxon の結果は 10 ~ 50 nm の分解能であり理論値との隔たりは大きかった。実用に耐える電界放射型電子銃の開発後、Tonomura et al. (1979a) により金微粒子の {111} 結晶格子のホログラム、及び再生像が報告され、結晶での Bragg 反射波がホログラムに記録、そして再生されることが実証された。Lichte (1985) は、0.34 nm のカーボングラファイトの結晶格子、ついで  $\text{Nb}_2\text{O}_3$  の結晶格子のホログラムを記録、再生することに成功した (Lichte, 1986)。特に  $\text{Nb}_2\text{O}_3$  のホログラムでは間隔 0.075 nm の干渉縞を記録し結晶内電位分布の観察を行なっている。さらに、Völkl and Lichte (1990) により 0.032 nm 間隔のホログラムが記録されたが S/N 比は現段階では低く、良好な再生像を得るには至っていないようである。1979 年以後この二光束イメージホログラフィーでは、枕木磁壁など薄膜中、及び微粒子中の微小磁区構造の観察 (Tonomura et al., 1982a; Osakabe et al., 1983)、Aharonov-Bohm 効果の実証 (Tonomura et al., 1982b, 1983a, 1983b, 1986; Osakabe et al., 1986)、超伝導体を貫く磁束量子の観察 (Matsuda et al., 1989)、p-n 接合における電位分布の観察 (Frabboni et al., 1985; Frabboni et al., 1987)、表面粗さの計測など、反射電子を用いた実験 (Möllenstedt and Lichte, 1978; Lichte and Möllenstedt, 1979)、表面ステップの観察 (Tonomura et al., 1985; Osakabe et al., 1988, 1989; Banzhof et al., 1988; Takeguchi et al.,

1990)、そして、格子像レベルでの位相分布の観察 (Lichte, 1986) など多岐に渡った応用が試みられている。

また電子線バイプリズムを用いない振幅分割型の二光束ホログラフィーが, Matteucci et al. (1981, 1982a, 1982b) により行なわれている。これは, Marton et al. (1953) による干渉実験と同様に、単結晶薄膜により透過波と Bragg 反射波とに分割した2波の一方に試料を配置し、電子レンズによって結像された単結晶薄膜の格子像の乱れより試料の情報を得るもので、フレネルホログラムに相当する。

### 1-3-3 その他の電子線ホログラフィー

その他のユニークな電子線ホログラフィーとして、フーリエ変換ホログラフィーと STEM ホログラフィーについて述べる。

フーリエ変換ホログラフィーは、Leith and Upatnieks (1964) により提案されたもので Lauer (1984) により電子顕微鏡において実現されたものである。図 1-8 にホログラムの記録、及び再生の光学系を示す。対物レンズ前面に拡散板として弱散乱薄膜を置き、その

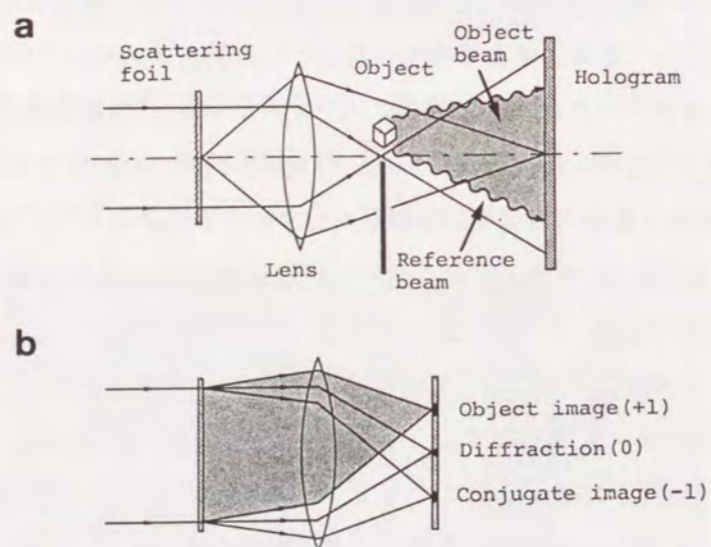


図 1-8 フーリエ変換ホログラフィー光学系の模式図 (Lauer, 1984)

(a) 記録光学系, (b) 再生光学系

像を結ぶ対物レンズの後側焦点面に試料を配置し半面を覆っておく。拡散板で散乱を受けた波が、平面波として試料を照射し物体波となる。散乱を受けなかった透過波は、後側焦点に集まり点光源を形成し、これが参照波となる。電子顕微鏡の場合、対物レンズの後側焦点面と像面の距離は、試料にとってフラウンホーファー領域とみなし得るだけ十分に離れているため、像面には試料のフラウンホーファー回折像と点光源のフラウンホーファー回折像が拡散板の像と共に記録されることになる。像再生にはホログラムを1度フーリエ変換すれば良く、 $\pm 1$  次回折波として物体像とその共役像を同時に観察できる。図 1-9 に再生像を示す。試料は MgO 微結晶である。これは物体の位相分布を観察するために、物体波と平面波そして点光源からの参照波の3波の干渉によるホログラムからの再生像であり、いわば二重露光ホログラフィーに対応している。(b) の像は拡散板に対して in-focus の条件で記録されたホログラムからの再生像である。180° 回転した2つの MgO 微結晶の像が再生されており、位相分布に対応した干渉縞が微結晶内に観察される。(a)、及び (c) の像は、拡散板に対してそれぞれ under-focus、over-focus の条件で記録されたホログラムからの再生像であり、焦点はずれによる収差のため拡散板からの散乱波が後側焦点面で平面波とならず、その位相分布が輪状になって現われている (Krivanek, 1976)。またその位相分布が under-focus と over-focus で逆転していることが分かる。このホログラフィーでの分解能はおよそ 3 nm と報告されている。

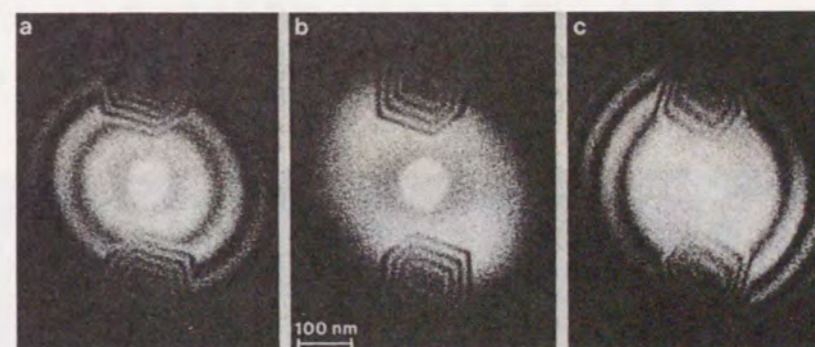


図 1-9 MgO 微結晶の像再生 (Lauer, 1984)

(a) 拡散板に対する Under-focus ホログラムよりの再生像

(b) in-focus ホログラムよりの再生像

(c) over-focus ホログラムよりの再生像

STEM ホログラフィーは、Leuthner et al. (1989, 1990) によって行なわれたものである。光学系の模式図を図 1-10 に示す。対物レンズの前面に電子線バイプリズムを配置し物面に干渉縞を形成すると、対物レンズの後側焦点面には2つの互いに可干渉な点像を結ぶ。片側に試料を配置し SCANNER I にて周期的な偏向を与えると、点像が試料上を走査していくことになるが、試料で与えられる位相差の分だけ像面で観察される干渉縞は横方向に変位する。干渉縞をそれと同じ空間周波数を持った格子縞（参照格子）を通して観察すると試料の位相分布に合わせて濃淡が生じることになり、それを画面に描けば位相分布

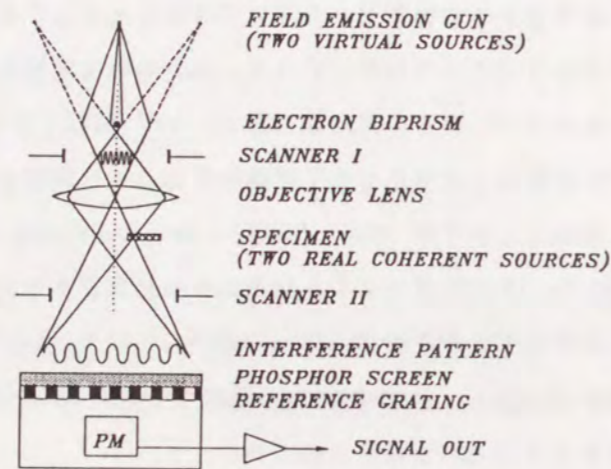


図 1-10 STEM ホログラフィー光学系の模式図 (Leuthner et al., 1990)



図 1-11 MgO 微結晶の像再生 (Leuthner et al., 1990)  
 (a) 走査透過型電子顕微鏡像, (b) 干渉顕微鏡像  
 (c) 波面を斜めより観察した干渉顕微鏡像

を表わす干渉顕微鏡像が得られる。図 1-11 に MgO 微結晶を試料に用いた実験結果を示す。(a) は、参照格子を取り外して記録した走査透過型電子顕微鏡像、(b) は干渉顕微鏡像、(c) は SCANNER II を I と同期させて記録した波面を斜めより観察した干渉顕微鏡像である。このホログラフィーの分解能は現在のところ約 10 nm であるが、最も優れている点はホログラムを必要とせず、約 30 秒で実際に実験を行ないながら干渉顕微鏡像として位相分布の観察が可能な点であり、ホログラフィーの原理的な欠点である非実時間性をほぼ解決している。

#### 1-4 位相分布再生法概説

##### 1-4-1 光学再生法

ホログラムに記録された電子の波面を光の波面で再生する光学再生法は、Gabor のアイデアをそのまま実現したものであり、ホログラムを回折格子とみなし 1 次、または -1 次の回折波を分離し、虚像または実像という形で再生像を得るというものである。しかしながら、光波に置換してもその強度分布を観察するだけでは意義が小さい。本節では位相分布の観察という点を中心に干渉顕微鏡法について述べる。

電子線ホログラムは、 $x, y$  座標をホログラム面上にとり物体波  $\Phi_o(x, y)$ 、参照波  $\Phi_r(x, y)$  をそれぞれ

$$\Phi_o(x, y) = \phi(x, y) \exp[i\eta(x, y)] \quad (1-1)$$

$$\Phi_r(x, y) = \exp[2\pi i R_o x] \quad (1-2)$$

と表わすとき、その干渉強度分布

$$I(x, y) = |\Phi_o(x, y) + \Phi_r(x, y)|^2 \\ = |\phi(x, y)|^2 + 1 + 2\phi(x, y) \cos(\eta(x, y) + 2\pi R_o x) \quad (1-3)$$

によって表わされる。ここで  $\phi(x, y)$ 、 $\eta(x, y)$  はそれぞれ物体波の振幅分布、位相分布

である。搬送空間周波数  $R_0$  は物体波と参照波の成す角を  $\alpha$ 、波長を  $\lambda$  とするとき

$$R_0 = \frac{\sin \alpha}{\lambda} \quad (1-4)$$

にて表わされる。一般にイメージホログラムであるため、 $|\phi(x,y)|^2$  は物体像を表わす。イメージホログラムでは物体の形状をホログラムより直ちに観察できる利点を持つ反面、ホログラムによる結像作用が犠牲になっている。従って、再生にはレンズを含む結像光学系が必要となる。図 1-12 に再生光学系の 1 例を示す (Tonomura, 1984)。通常はこのように Mach-Zehnder 型干渉計を用い、再生された物体波に新たに参照波を重ね、干渉顕微鏡像として物体波の位相分布を得る。物体波が完全に光波に置換されて再生されているとすると、換算座標を用いているとして、

$$\Phi_0(x,y) = \phi(x,y) \exp[i\eta(x,y)] \quad (1-1)$$

であり、ここで干渉顕微鏡法のための参照波を、前述の通り均一な平面波とし、

$$\Phi_r(x,y) = \exp[2\pi i R_{0x} x + 2\pi i R_{0y} y] \quad (1-5)$$

$$R_0^2 = R_{0x}^2 + R_{0y}^2 = \left( \frac{\sin \alpha}{\lambda} \right)^2 \quad (1-6)$$

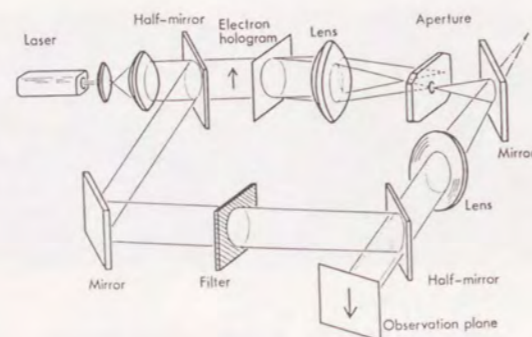


図 1-12 干渉顕微鏡法のための再生光学系 (Tonomura, 1984)

とおくと、得られる干渉顕微鏡像の強度分布は

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_{0x}x + 2\pi R_{0y}y) \quad (1-7)$$

となる。参照波の伝搬方向と物体波のそれとが一致する場合  $R_{0x} = R_{0y} = 0$  となり、干渉顕微鏡像は物体の像  $|\phi(x,y)|^2$  とその位相分布に対応した干渉縞  $\cos(\eta(x,y))$  から形成されていることが分かる。すなわち波面の凹凸に合わせた等位相線が描かれている。また  $R_0 \neq 0$  の場合は、物体波の波面を斜めより観察した像となる。式 (1-7) はホログラムの一般的な強度分布を表わす式でもあることから、イメージホログラムはそのままで干渉顕微鏡像である。図 1-12 の光学系を用いた場合、式 (1-7) に表わされるとおり位相変化  $2\pi$  ごとの等位相線が描かれるが、より微小な位相変化を検出するためには位相差増幅法が用いられる。その光学系を図 1-13 に示す。ホログラムに丁度 1 次回折波と -1 次回折波が同じ方向に伝搬するような角度で可干渉な 2 波を入射させると、

$$I(x,y) = 2|\phi(x,y)|^2 + 2\phi(x,y)\cos(2\eta(x,y)) \quad (1-8)$$

なる強度分布の干渉顕微鏡像を得る。これは位相分布  $\eta(x,y)$  が  $\pi$  変化する度に等位相干渉縞が形成されることを示しており、位相差が 2 倍に増幅されて観察できることになる。さらに増幅する方法は Matsumoto and Takashima (1970) により提案されている。写真処理における  $\gamma$  値が  $\gamma \neq 2$  の場合、再生時に高次回折波が生じる。これにより、例えば  $\pm 2$  次の回折波を用いれば 4 倍に位相差を増幅した干渉顕微鏡像を得ることができる。光のホログラムでは 16 倍、電子線のホログラムでは 10 倍までの位相差増幅が報告されている。

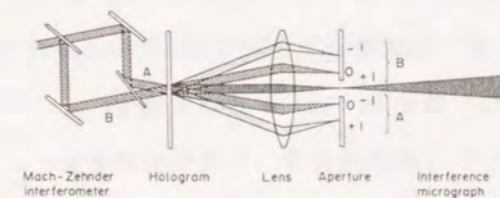


図 1-13 位相差増幅干渉顕微鏡法のための再生光学系 (Tonomura, 1984)

図 1-14 に Tonomura (1984) による実験結果を示す。試料は MgO 微結晶である。(a) は再生像であり、電子顕微鏡像と同じものである。(b) は干涉顕微鏡像、微結晶の厚さに応じた等位相線が描かれている。(c) は 2 倍位相差増幅を行なった干涉顕微鏡像、等位相線の間隔が (b) の  $\frac{1}{2}$  になっている。(d) は波面を斜めより観察した場合の干涉顕微鏡像である。

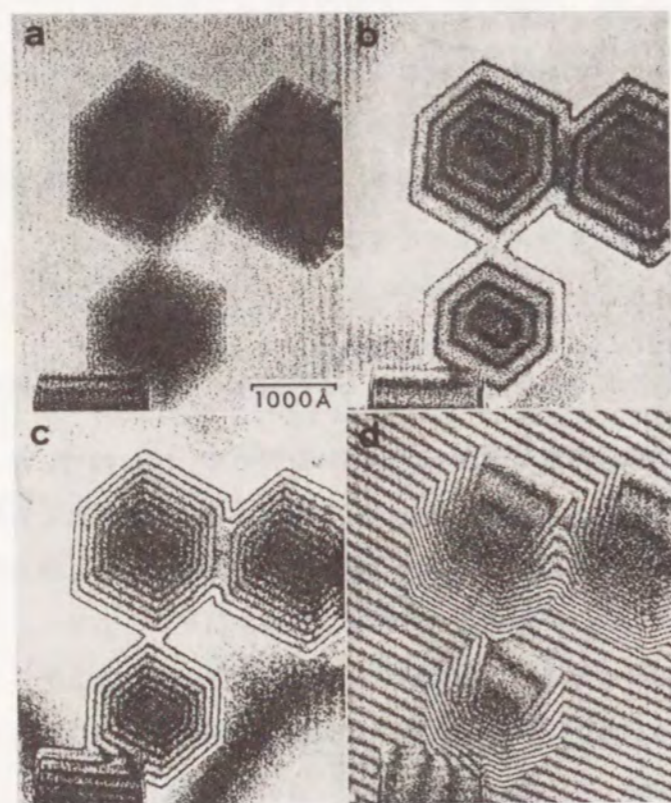


図 1-14 MgO 微結晶の再生像 (Tonomura, 1984)

- (a) 再生像, (b) 干涉顕微鏡像
- (c) 干涉顕微鏡像 (2 倍位相差増幅)
- (d) 波面を斜めより見た干涉顕微鏡像 (2 倍位相差増幅)

#### 1-4-2 デジタル画像処理による再生法 1 (フーリエ変換再生法)

現在のところ最も一般的に行なわれているデジタル画像処理による再生法であり、縞解析におけるフーリエ変換法 (Takeda et al., 1982) を電子線ホログラフィーに用いたものである。原理的には光学再生法の手順をそのまま計算機にて行なうものである。

ホログラム上に記録された強度分布

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x) \quad (1-3)$$

を入力し、フーリエ変換を行なうと、空間周波数スペクトルは、

$$F[I](R_x, R_y) = A(R_x, R_y) + B(R_x - R_0, R_y) + B^*(R_x + R_0, R_y) \quad (1-9)$$

$$A(R_x, R_y) = F[|\phi(x,y)|^2 + 1](R_x, R_y) \quad (1-10)$$

$$B(R_x, R_y) = F[\phi \exp(i\eta)], \quad B^*(R_x, R_y) = F[\phi \exp(-i\eta)]$$

となる。但し、ここでは簡単のため  $R_{0y} = 0$  としている。 $A(R_x, R_y)$ ,  $B(R_x - R_0, R_y)$  及び、 $B^*(R_x + R_0, R_y)$  の 3 つのスペクトルが完全に分離されているとき、例えばスペクトル  $B(R_x - R_0, R_y)$  のみを選び出し、演算処理の原点に空間周波数  $R_0$  だけ移動させフーリエ変換を行なうと、

$$I'(x,y) = \phi(x,y)\exp[i\eta(x,y)] \quad (1-11)$$

を得る。これは物体波に他ならない。スペクトル  $B^*(R_x + R_0, R_y)$  を選んだ場合は、物体波の複素共役像が再生される。計算機内部においては、演算結果は、実数値  $I'_r$  と虚数値  $I'_i$  に分けられており、これより物体波の振幅分布  $\phi(x,y)$ 、位相分布  $\eta(x,y)$  はそれぞれ

$$\phi(x,y) = [I'_r(x,y)^2 + I'_i(x,y)^2]^{1/2} \quad (1-12)$$

$$\eta(x,y) = \text{Tan}^{-1} \frac{I'_i(x,y)}{I'_r(x,y)} \quad (1-13)$$



と個別に得ることができる。

光学再生法では  $\phi \cos(\eta(x,y))$  という振幅分布の含まれた形式で、しかも等位相線として断続的にしか知ることのできなかつた位相分布を、画像処理装置の画素数の範囲内で連続的に再生することができる。図 1-15 に Takeda and Ru (1985) によって行なわれたフーリエ変換再生法による像再生の 1 例を示す。これは Osakabe et al. (1983) によって記録された Co 磁性薄膜とその外部の漏洩磁界のホログラムの位相分布である。(a) は波面として連続的に表わしたものの、(b) は等位相線として表現したもの、(c) は光学再生により 10 倍位相差増幅を行なった干涉顕微鏡像である。(b)、(c) における等位相線は磁力線と一致している。

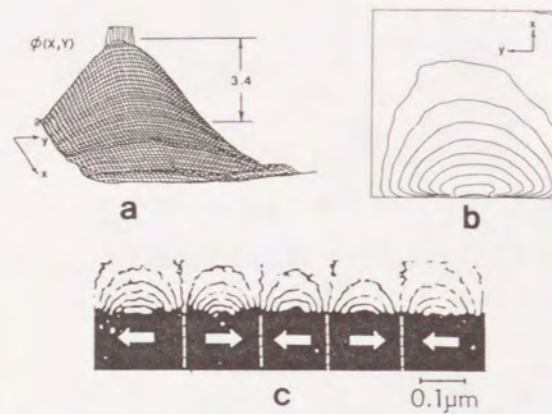


図 1-15 フーリエ変換再生法による再生像  
 (a) 波面として表わした位相分布  
 (b) 等位相線により表現した位相分布  
 (c) 光学再生による干涉顕微鏡像 (10 倍位相差増幅)

1-4-3 デジタル画像処理による再生法 2 (縞走査再生法)

この方法は、高精度光干渉計測法の 1 つである縞走査干渉法 (Yatagai and Kanou, 1984) を電子線ホログラフィーに用いたものである。高精度光干渉計測法では、一般に干渉縞の強度分布を

$$I(x,y,\Delta) = \alpha(x,y) \{1 + \gamma(x,y) \cos(\eta(x,y) - \Delta)\} \quad (1-14)$$

と表わし、バイアス位相項  $\Delta$  を導入する。ここで  $\alpha(x,y)$  は像全体の強度分布、 $\gamma(x,y)$  は干渉縞のコントラストを表わす。このバイアス位相項を変調させて強度分布  $I(x,y,\Delta)$  の変化より位相分布  $\eta(x,y)$  を求める。バイアス位相項を導入する方法により縞走査法、ヘテロダイン干渉法などがある。

縞走査干渉法では、参照波の光路長を変化させてバイアス位相項  $\Delta$  に変調を与える。光学再生による干涉顕微鏡像の強度分布式 (1-7) の  $R_{ox}=R_{oy}=0$  の場合、すなわち等位相線の観察像が式 (1-14) に対応しており、まさに干涉顕微鏡法における参照波に位相変調を与えればよい。図 1-16 にその光学系を示す。Twyman-Green 型干渉計を用い Mirror A を PZT にて微動させ光路長の変化より参照波に位相変調を与える。なお、この光学系では、2 倍の位相差増幅を光学再生時に既に行なっている。

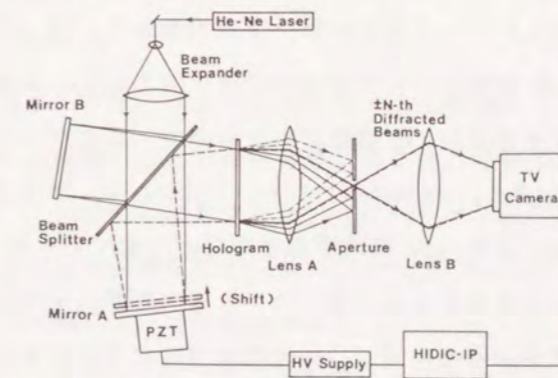


図 1-16 縞走査再生法のための再生光学系 (Hasegawa et al., 1989)

像観察面では、ある1点においては干渉縞の強度分布は正弦的に変化し、その初期位相がその点における位相を与える。この位相を検出するために、N段階に位相を変化させる。

$$\Delta_n = \frac{2\pi n}{N} \quad (n=1, 2, \dots, N-1) \quad (1-15)$$

式(1-14)  $\Delta_n$  についてのフーリエ級数の基本項より、

$$C_1 = \frac{2}{N} \sum_n I(x, y, \Delta) \cos \frac{2\pi n}{N} = \alpha(x, y) \gamma(x, y) \cos \eta(x, y) \quad (1-16)$$

$$S_1 = \frac{2}{N} \sum_n I(x, y, \Delta) \sin \frac{2\pi n}{N} = \alpha(x, y) \gamma(x, y) \sin \eta(x, y)$$

が得られ、ただちに、

$$\eta(x, y) = \tan^{-1} \frac{S_1(x, y)}{C_1(x, y)} \quad (1-17)$$

として位相分布を得る。すなわち、参照波の位相を  $\frac{2\pi}{N}$  きざみでN段階変化させ、その都度、強度分布  $I(x, y, \Delta)$  をN回測定し、式(1-16)に従って  $\cos \frac{2\pi n}{N}$ 、 $\sin \frac{2\pi n}{N}$  の重みを掛けて積算したものの比をとり、これの  $\tan^{-1}$  を求めれば位相分布を得る。

Yatagai et al. (1987) によって行なわれた実験例を示す。図1-17は、 $N=4$  の場合の強度分布の変化、図1-18は得られた位相分布の再生像である。これはCo微粒子の電子線ホログラムに対して縞走査法により再生されたもので、ホログラム自体は Tonomura et al. (1980) によるものである。Hasegawa et al. (1989) は、ホログラムからの再生において、この縞走査再生法により100倍の位相差増幅が可能であったと報告している。

本節では、光学再生による縞走査再生法について述べたが、モアレトポグラフィーを応用することにより干渉顕微鏡像を作成し、縞走査再生法による位相分布の再生も可能である。これについては第5章において詳述する。

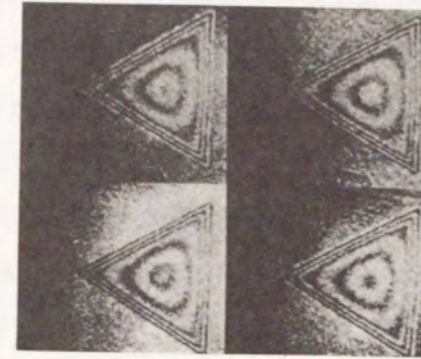


図 1-17 Co 微粒子の干渉顕微鏡像 (Yatagai et al., 1987)



図 1-18 縞走査再生法により得られた位相分布 (Yatagai et al., 1987)

#### 1-4-4 二重露光法

二重露光法は最も基本的なホログラフィー干渉法の1つであり、その原理は、まず物体の状態1のホログラムを記録し、次いで物体の状態2のホログラムを同じフィルムに同じ参照波にて記録する。これは2つの状態をインコヒーレントに二重記録したことになる。この二重露光ホログラムの再生を行なえば2つの波面が同時に再生され、それらの変化が干渉縞として表わされる、というものである。

電子線ホログラフィーにおいては、試料を配置した場合の通常のホログラムと試料を取り除いた干渉縞のみの2つの状態を二重露光によって1枚のフィルムに記録する。ホログラムには物体波の位相変化に対応したモアレ縞が記録され、電子線ホログラフィーは一般にイメージホログラフィーであることから、ホログラムの再生を行なわなくとも物体波の

位相分布を直ちに知ることができる。これはこの方法の大きな利点であるが、例えば位相差増幅法が不可能であるなど、他の応用への発展性に欠ける欠点がある。

電子線ホログラフィーにおける二重露光法は、Fu et al. (1987) によって初めて行なわれ、本研究においても第2章において行なっているが、ここでは Matteucci et al. (1988) によって行なわれた実験結果について示す。図 1-19 は絶縁体球（ラテックスボール）の二重露光ホログラムであり、電子線照射によるチャージアップで生じた電界分布がモアレ縞として現われている。このモアレ縞は等電位面を表わしている。

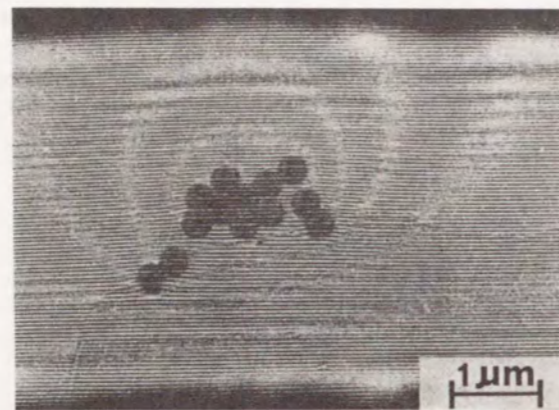


図 1-19 二重露光ホログラム (Matteucci et al., 1988)

## 1-5 フーリエ変換再生法とその応用

### 1-5-1 物体波の再生

ホログラム上に記録された強度分布  $I(x,y)$  とそのフーリエ変換  $F[I](R_x, R_y)$  が、

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x) \quad (1-3)$$

$$F[I](R_x, R_y) = A(R_x, R_y) + B(R_x - R_0, R_y) + B^*(R_x + R_0, R_y) \quad (1-9)$$

$$A(R_x, R_y) = F[|\phi(x,y)|^2 + 1](R_x, R_y) \quad (1-8)$$

$$B(R_x, R_y) = F[\phi \exp(i\eta)], \quad B^*(R_x, R_y) = F[\phi \exp(-i\eta)]$$

と表わされることは既に述べた。実際のホログラム、及びそのフーリエスペクトルを図 1-20、図 1-21 に示す。図 1-20 は MgO 微結晶のホログラムを透過型電子顕微鏡、JEM-100C-FEG にて記録したものであり、図 1-21 (a) はそのフーリエスペクトルである。256 x 256 pixels、256 階調にて演算処理を行なっている。式 (1-9) において A、B、及び  $B^*$  で表わされる 0 次、±1 次スペクトルがバックグラウンドよりも強いコントラストで現われている。0 次及び ±1 次スペクトル間に見られる横方向に伸びたスポットはホログラム上に見られる長周期縞に対応したもので、電子線バイプリズムフィラメントにより生じたフレネル縞の影響である。(b) は再生に用いた +1 次スペクトルのみを抽出し、演算処

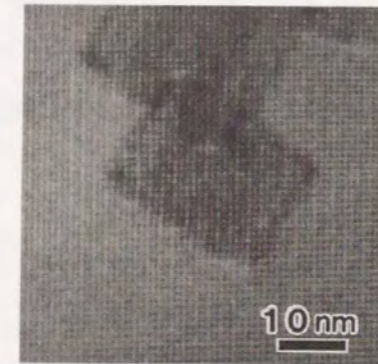


図 1-20 MgO 微結晶の電子線ホログラム

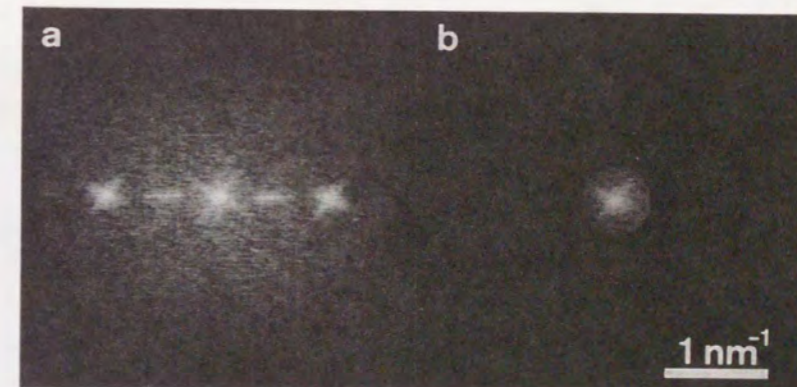


図 1-21 ホログラム (図 1-20) のフーリエ変換像

(a) フーリエスペクトル

(b) 1 次回折スペクトルを原点に移動させたもの

理の原点に移動させた後の像である。再生像に取り込める空間周波数領域の大きさは長周期縞の影響がない場合、 $A(R_x, R_y)$  で表わされる0次スペクトルの広がり依存している。

一般に強度分布のフーリエ変換、 $F[|\phi|^2](R_x, R_y)$  は、

$$F[|\phi|^2](R_x, R_y) = \iint F[\phi](R_x, R_y) F^*[\phi](R'_x - R_x, R'_y - R_y) dR'_x dR'_y \quad (1-18)$$

より物体波の振幅分布のフーリエ変換  $F[\phi](R_x, R_y)$  の自己相関関数で表わされており、回転対称性(回転不変性)を仮定して物体波の振幅分布の空間周波数が  $R_{max}$  まで広がって分布していたとすると、その自己相関関数  $F[|\phi|^2](R_x, R_y)$  は原点  $(R_x, R_y) = (0, 0)$  を中心に  $2R_{max}$  まで広がって分布する。参照波の強度は  $\delta$  関数となり原点にしか値を持たない。一方、第2項、第3項は単純に、 $(R_x, R_y) = (R_0, 0), (-R_0, 0)$  を中心に  $R_{max}$  までの分布となる。結果的に、この物体波を完全に再生するには搬送空間周波数  $R_0$  は

$$R_0 \geq 3R_{max} \quad (1-19)$$

の条件を満たさなければならない。逆に言えば、再生像の分解能を与える空間周波数は  $\frac{R_0}{3}$  である。但し、弱振幅物体の場合、 $F[|\phi|^2]$  の値も  $R > R_{max}$  の範囲では2次の微小項として減衰が早いので搬送空間周波数  $R_0$  は

$$R_0 \geq 2R_{max} \quad (1-20)$$

程度の条件で十分である。図1-21の場合は長周期縞の影響を考えなければ0次スペクトルと、 $\pm 1$ 次スペクトルの広がりと同じ程度であり、試料は弱振幅物体とみなしてよい。一般に  $MgO$  微結晶は弱振幅物体と見なせるようである。なお、振幅分布の無視できる位相物体の場合は、 $F[|\phi|^2](R_x, R_y) = \delta(R_x, R_y)$  となり搬送空間周波数  $R_0$  がそのまま分解能を決定する周波数となる。これに関しては第4章において実例と共に述べる。

上記のような条件にて図1-21(a)の3つのスペクトルが完全に分離されているとき、(b)のように1つのスペクトル、例えばスペクトル  $B(R_x - R_0, R_y)$  のみを抽出し、空間周波数  $R_0$  だけ演算処理の原点に移動させフーリエ逆変換を行なうと

$$I'(x, y) = \phi(x, y) \exp[i\eta(x, y)] \quad (1-11)$$

を得る。これは物体波に他ならない。スペクトル  $B^*(R_x + R_0, R_y)$  を選んだ場合は、位相分布の反転した共役波が得られる。デジタル画像処理においては演算結果は実数値  $I_r$  と虚数値  $I_i$  に分けられており、これより物体波の振幅分布  $\phi(x, y)$ 、位相分布  $\eta(x, y)$  はそれぞれ

$$\phi(x, y) = [I_r(x, y)^2 + I_i(x, y)^2]^{1/2} \quad (1-12)$$

$$\eta(x, y) = \tan^{-1} \frac{I_i(x, y)}{I_r(x, y)} \quad (1-13)$$

により個別に得ることができる。

図1-22に式(1-12)、(1-13)に基づき再生された振幅分布、位相分布を示す。いずれも、 $MgO$  微結晶をよく再生している。振幅分布のコントラストが小さいのはこの試料が弱振幅物体とみなして良いことを示している。また、本来平坦であるべき真空中の位相分布にも凹凸が見られるが、これは再生を行なった範囲外に存在する試料の影響や、パイプリームフィラメント表面の形状などの影響のためと推定される。位相分布全体の微小な勾配は、ホログラムのデジタル化の際の誤差と考えられ、収差補正などの画像処理に影響を与える場合がある。これについては、第6章において詳述する。

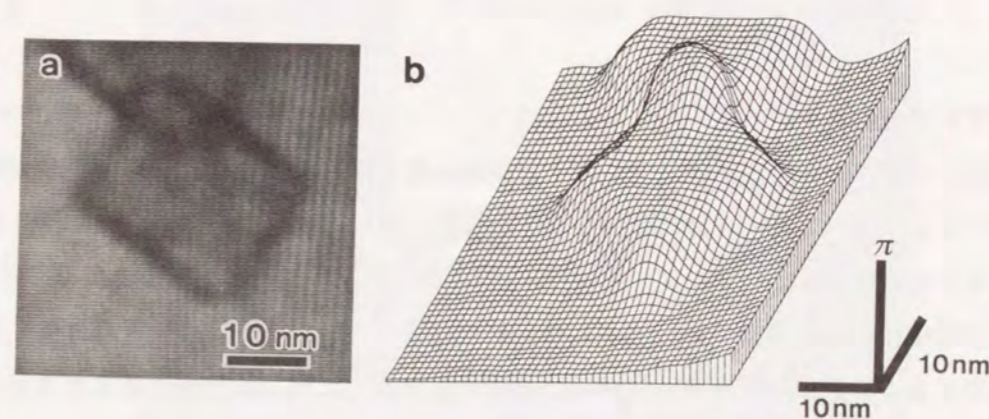


図1-22  $MgO$  微結晶の再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

1-5-2 干渉顕微鏡像の形成

Mach-Zehnder 型干渉計を用いた光学再生法も、デジタル画像処理によるフーリエ変換再生法も原理的には全く同じである。一般に干渉顕微鏡像が

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_{0x}x + 2\pi R_{0y}y) \quad (1-7)$$

と表わされることは既に述べた。ホログラムの強度分布式(1-3)と見比べれば電子線ホログラムは、そのまま干渉顕微鏡像となっている。再生物体波と、参照波の成す角度が0の時、搬送空間周波数は  $R_{0x}=R_{0y}=0$  となり位相分布  $\eta(x,y)$  は  $\cos$  関数の変調を受けることになる。これが等位相線であり、 $2\pi$  を単位に明暗のコントラストが繰り返される。式(1-7)で表わされる光学再生による干渉顕微鏡像は、物体波の強度分布、振幅分布の影響を受けているが、デジタル画像処理による再生の場合は、式(1-13)に基づき位相分布のみを再生することができるため、ここでは  $\cos(\eta(x,y))$  を干渉顕微鏡像とする。

物体波の波面を斜めより見た干渉顕微鏡像を作成するのも容易である。式(1-10)で表わされるフーリエスペクトル  $B$  または  $B^*$  を、任意の量、任意の方向に移動させフーリエ逆変換を行なうだけでよい。例えば式(1-10)のスペクトル  $B(R_x-R_0, R_y)$  を  $R_x$  方向に  $R_0-\Delta R$  だけ移動させ、フーリエ逆変換を行なうと、

$$I'(x,y) = \phi(x,y)\exp[i(\eta(x,y) + 2\pi \Delta R x)] \quad (1-21)$$

で表わされる再生物体波を得る。これより式(1-13)に基づき得られた位相分布を  $\cos$  関数にて表わせば、搬送空間周波数  $\Delta R$  の干渉顕微鏡像が得られる。図1-23に図1-20のホログラムより作成した干渉顕微鏡像を示す。これは参照波の入射方向を  $\frac{\pi}{4}$  rad ずつ変化させたものである。いずれの像でも MgO の部分で干渉縞に変調がみられる。この様にして、同じ搬送空間周波数であっても、最も良く位相変化を表わす方向を容易に見いだすことができる。また、搬送空間周波数  $\Delta R$  の符号が異なる2枚の干渉顕微鏡像では干渉縞の変化の方向が異なる。

光学再生においては、位相板を用いたり縞走査法で行なわれているように光路長を変化させるなどして参照波の位相に対して変調を加えることにより干渉縞の位置を移動させる

ことができるが、フーリエ変換再生法においては、式(1-13)により求めた位相分布に変化させたい任意の位相量を加えるだけで同様の結果を得ることができる。また、位相分布  $\eta(x,y)$  において  $\tan^{-1}$  のアルゴリズムにより  $-\pi$  から  $\pi$  の範囲にのみ値が納まるようにし、この値を濃淡で表わせば、通常は位相差のみで位相変化の方向については情報を与えない等位相線が、縞の階調変化の方向を判断することにより位相変化の方向をも表わすようになる。図1-24にこの様に表示した位相分布を示す。位相差を8倍に増幅して表示しているため、等位相線の間隔は位相差  $\frac{\pi}{4}$  に対応する。位相分布に加える位相量をそれぞれ  $\frac{\pi}{4}$  ずつ0から  $2\pi$  まで変化させていくのに伴い、等位相線の位置が少しずつ変化していく様子がよく分かる。この変化が位相分布の僅かな変化を表わしている。また MgO 微結晶の端より中心部にかけて、縞の濃淡が暗から明へ変化していることから位相変化の方向は正、すなわち、波面の形状としては MgO 微結晶の部分で凸と言うことを表わしており、図1-22(b)と対応している。

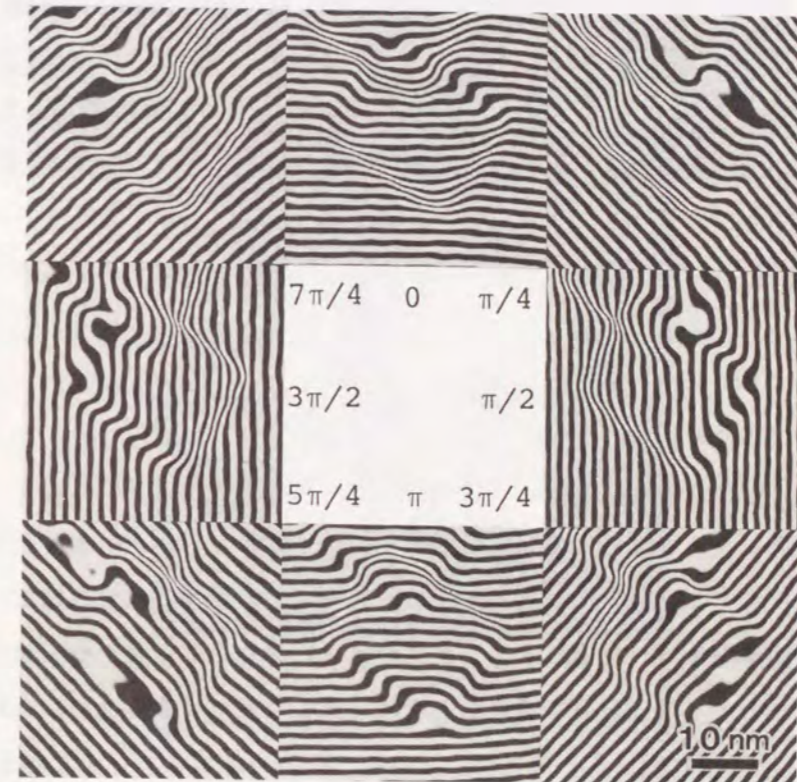


図 1-23 MgO 微結晶の干渉顕微鏡像

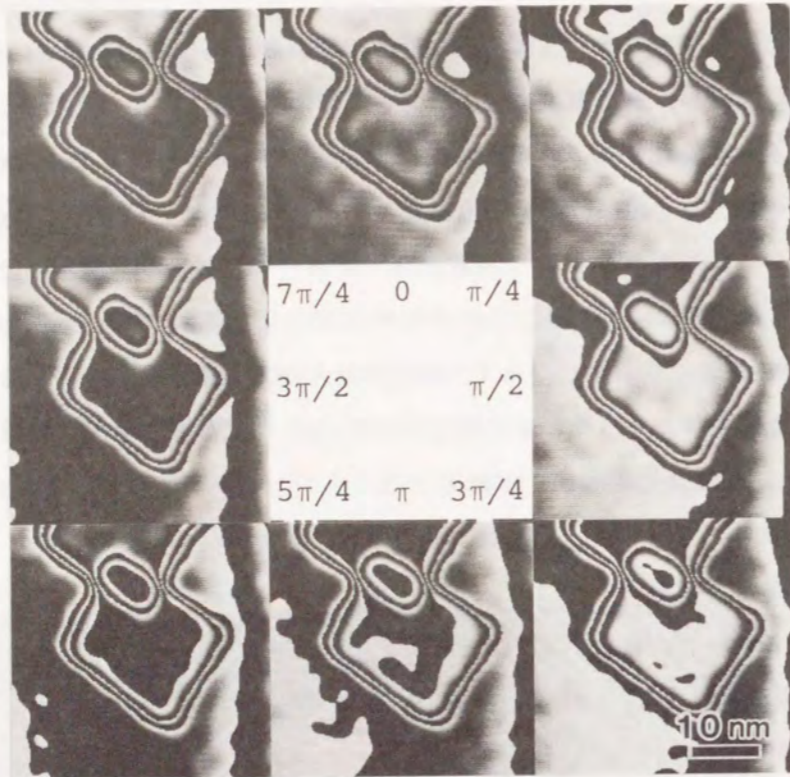


図 1-24 MgO 微結晶の干渉顕微鏡像 ( $\text{Tan}^{-1}$  アルゴリズムによる)

### 1-5-3 位相差増幅法

干渉顕微鏡像において位相差を2倍に増幅する、すなわち  $\pi$  の位相変化を検出するには、光学再生では+1次の回折波と-1次の回折波を干渉させ、2倍の密度の干渉縞を発生させなければならない。2倍以上の位相差増幅を行なうにはホログラムのコントラストを上げるなどしてより高次の回折波同士の干渉に依らなければならない (Takeda and Ru, 1985)。従って、増幅にも自ずと限界が存在する。しかしながらフーリエ変換再生法においては、得られた位相分布を  $n$  倍し、 $\cos(n\eta(x,y))$  を求めれば直ちに  $n$  倍の位相差増幅干渉顕微鏡像を得ることができる。

図 1-25 にフーリエ変換再生法による位相差増幅干渉顕微鏡像を示す。それぞれ4倍、8倍、16倍、32倍に位相差増幅を行なっている。MgO 微結晶の端及び画面の右側で位相変化の激しいことが分かる。

図 1-24 に示したような位相変化の方向をも表示する場合は、

$$n\eta(x,y) = \text{Tan}^{-1} \frac{\sin(n\eta(x,y))}{\cos(n\eta(x,y))} \quad (1-22)$$

を求め、 $\text{Tan}^{-1}$  のアルゴリズムに依れば  $\frac{2\pi}{n}$  間隔の等位相線を得ることができる。または、三角関数の加法定理より式 (1-13) に代わって

$$2\eta(x,y) = \text{Tan}^{-1} \frac{2I_i I_r}{I_r^2 - I_i^2} \quad (1-23)$$

を直接演算すれば2倍増幅像が直ちに得られる。また、これを繰り返せば  $2^n$  倍の増幅が可能である。

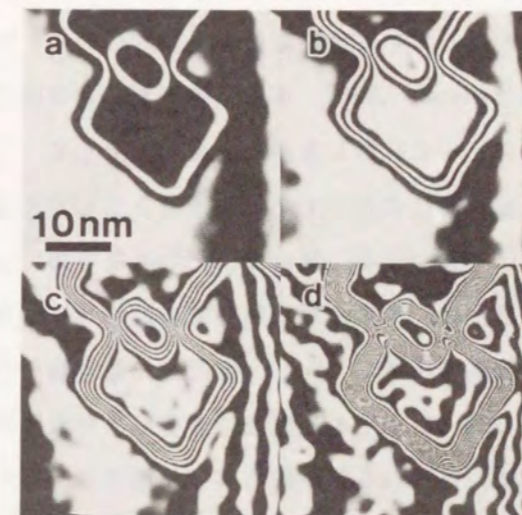


図 1-25 MgO 微結晶の位相差増幅干渉顕微鏡像

(a) 4倍位相差増幅像, (b) 8倍位相差増幅像  
(c) 16倍位相差増幅像, (d) 32倍位相差増幅像

電界放射型電子銃の実用化 (Tonomura et al., 1979a) から 10 年余の間に電子線ホログラフィーは様々な方面に応用が試みられ、本章で述べた以外にも多くの成果を上げてきている。現在の研究の主な方向は、高分解能ホログラフィー、磁界分布及び磁束量子の観察、電界分布の観察、反射型電子線ホログラフィーなどである。つまり、電子線ホログラフィーそのものに対するよりも、電子線ホログラフィーによって何らかの観察を行なうという方向に興味の対象が向かっており、既に実用化の段階に入っていることが分かる。それぞれの研究では、それぞれの特徴を生かした電子線ホログラム記録光学系、及び再生方法が用いられ、それぞれに工夫が凝らされている。しかしながら、再生方法はほとんどが Gabor のアイデア通りレーザーを用いた光学再生である。電子顕微鏡法における画像処理は既にコンピュータによるものがその主流を成すに至っているが、電子線ホログラフィーにおいてもデジタル画像処理による像再生の方向に進んで行くと考えられる。このとき、電子線ホログラムはイメージホログラムであり、そのままでは干渉顕微鏡像であることを考えれば、光学における縞解析が有効な示唆を与えてくれるものと考えられる。縞解析法は、古くはモアレトポグラフィー (Takasaki, 1970) などで用いられ、今日ではコンピュータを用いた自動解析法も一般化している分野である (Takeda and Mutoh, 1983; Reid et al., 1984; Toyooka and Iwaasa, 1986)。本章で述べた縞走査再生法などは、まさに、この技術を電子線ホログラフィーに応用した例と言える。そして、この方向はホログラフィーの最大の欠点である非実時間性に対してその解決策を示してくれるものと期待される。

電子線ホログラフィーは上述のように既に実用化された技術ではあるが、一般に普及するに至っていない。それは主に、高輝度電子銃と電子線パイプリズム作成の困難がその原因と推定される。特に高輝度電子銃は、W-tip を用いた電界放射型電子銃が実用化されているとは言え、加速電圧 200 kV 以上の高圧での歴史はまだ数年であり、より安定で、より大きなエミッション電流の得られる電子銃の開発、例えば、ZrW 熱電界放射型電子銃の開発 (Swanson and Martin, 1975; Samoto et al., 1985) などが現在も継続中である。

本章では、電子線ホログラフィー発展の歴史的過程とともに、ホログラフィーの原理について述べた。また、電子線ホログラフィーとして、電子顕微鏡光学系の特徴を前提として、今日までに試みられている電子線ホログラフィーについて述べた。ホログラムからの像再生方法については 4 種類の方法について説明を行なった。特に、デジタルフーリエ変換を用いた再生方法は、最も一般化されたデジタル画像処理による方法であり、具体的な例を示しながら光学再生との関係についても詳述を行なった。そして、電子線ホログラフィーの現状について述べ、本研究の位置づけを行なった。

2-1 緒言

電子線ホログラフィーが実現されるには、何にもまして高輝度電子銃の開発が必要不可欠であった。輝度は電子線源の性能を表わす1つの指標であり、一般にはその値が大きい方がよいとされるが、これは直接に得られる電子線の可干渉性を示すものではない。しかし、後節で述べるが輝度と可干渉性は不確定性を間に密接に関係しており、高輝度な電子銃を用いるほど得られる電子線の可干渉性を大きくできる可能性がある。これが電子線ホログラフィー顕微鏡が高輝度電子銃を必要とする最も大きな理由である。

電子顕微鏡はその開発の当初よりタングステン熱電子銃が電子源として用いられてきた。電子線ホログラフィーを待つまでもなく電子顕微鏡の高分解能化、高倍率化に伴い、タングステンヘアピン型熱電子銃よりも高輝度な電子源が必要となり、タングステンポイントフィラメントが開発された (Hibi, 1956)。初期の頃の電子線干渉の実験、電子線ホログラフィーの可能性を示す実験などは皆このタングステンポイントフィラメントにて行なわれたものである。しかし、このポイントフィラメントも電子線ホログラフィーを実用化するには程遠いものであった。その後、この問題は Crewe et al. (1968) の発明による電界放射型電子銃によりほぼ解決されるに至った。電界放射型電子銃は鋭く尖らせた tip 先端に強電界をかけてトンネル効果により電子を引き出すもので、タングステンをを用いた場合、ポイントフィラメントと比較して2桁以上の輝度の向上が期待できる。今日では加速電圧 100 kV から 350 kV の透過型電子顕微鏡に搭載され実現に至っている (Kawasaki et al., 1990)。しかしながら、真空度に対する厳しい要求や全電流量が少なく低倍率での観察が難しいなどの問題点があり、広く一般に普及するには至っていない。むしろポイントフィラメント後に開発された LaBe 単結晶を用いた熱電子銃が一般的な電子光学機器に採用されている。LaBe は仕事関数が 2.6 eV とタングステンの約6割程度しかなく、ポイントフィラメントとほぼ同じ輝度が得られる上に長寿命、高安定性など電子銃として優れた性質を持ち合わせている (Shimizu et al., 1977, 1978, 1981, 1984)。

本研究では全エミッション電流量が多くかつ高輝度な電子銃の開発ということを目的に、LaBe 単結晶の熱電界放射型電子銃の開発を行なった。LaBe 単結晶の電界放射については LaBe 熱電子銃開発の初期において試みられたが、安定なエミッションが得られず、そのま

まなおざりにされていた (Kudintseva et al., 1971; Shimizu et al., 1975; Futamoto et al., 1977)。今回、エミッションパターン観察により熱電界放射特性を調べ、安定動作条件を見出した (Nagata et al., 1990)。また、この LaBe 熱電界放射型電子銃を実際に透過型電子顕微鏡に取り付け輝度の測定を行なった (Harada et al., 1990a, 1991)。

本章においては以上の結果について述べる。なお、本章第2-3、第2-4、第2-5節で述べるエミッションパターン観察、及び熱電界放射特性の評価は永田治人氏 (現、松下電気産業、生産技術本部) によって進められてきたものである。

2-2 電子線の可干渉性と輝度

電子銃の性能を評価する輝度と得られる電子線の可干渉性とは異なる概念である。それにもかかわらず高輝度な電子銃は可干渉性のよい電子源とみなして差し支えない。本節では各々の定義と関連性について述べる。

2-2-1 輝度

電子光学的輝度は単位面積、単位立体角当りの電子流として定義されている。厳密には無限小の面積と無限小の立体角に関するものであるから、回転対称性 (回転不変性) を仮定すると図 2-1 のように、軌道軸上の1点におかれた光軸に垂直な面積  $\Delta S$  を通って、軌道の周りの立体角  $\Delta\omega$  に向かう電子流を  $\Delta^2 i$  としたとき輝度  $B$  は

$$B = \lim_{\Delta S, \Delta\omega \rightarrow 0} \frac{\Delta^2 i}{\Delta S \Delta\omega \cos\alpha} = \frac{d^2 i}{dS d\omega \cos\alpha} \quad (\text{A/cm}^2 \cdot \text{st}) \quad (2-1)$$

と記述される。

空間電荷効果が無視でき、電子のぼらつきが無視できる程小さいとき Liouville の定理により1本の軌道に沿って輝度の不変性が成立する。これは各々の軌道がそれぞれ一定の輝度を持つことを意味する。また、 $dS$  を通って  $d\omega$  に流れ込む電子流は一般には速度分



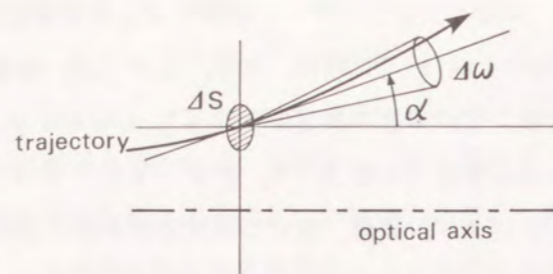


図 2-1 輝度の定義

布を持ち、速度の異なる電子は異なる軌道を持つため本来は各々の速度に対する輝度を求めこれを積分した値を輝度とみなさなければならない。しかし、現実にはこの解析は困難である。

回転対称な電磁場を用いた多くの電子光学装置では光軸上の光軸方向の輝度が実用上重要となる。これを軸上輝度と呼び、

$$B_0 = \frac{d^2 i}{dS d\omega} \quad (\text{A/cm}^2 \cdot \text{st}) \quad (2-2)$$

で表わす。この軸上輝度は電子線の初速度分布と加速電圧のみによって一義に定まり、途中の電子光学系がどのようなものであろうと、フィルター作用さえなければ一定に保たれるものである。輝度が電子銃の性能を評価する重要な量となっている所以である。

実際に我々が使用する電子線は、光軸上のある有限の面積  $\Delta S$  と有限の立体角  $\Delta\omega$  を通る電子流  $\Delta i$  であるので、我々に求めることができるのは平均輝度  $\bar{B}_0$ 。

$$\bar{B}_0 = \frac{\Delta^2 i}{\Delta S \Delta \omega} \quad (\text{A/cm}^2 \cdot \text{st}) \quad (2-3)$$

であり、厳密には式 (2-1) で表わされる輝度と区別しなければならないが、式 (2-3) の平均輝度を単に輝度と呼ぶ事も多い。

平均輝度は電子光学機器のレンズ系の収差や、使用される電子線の角度範囲、面積範囲によって大きく変化する。また、電子線源の動作条件にも依存している。一般に平均輝度  $\bar{B}_0$  は軸上輝度  $B_0$  よりも小さい値となることが多く、この差は電界放射型電子銃など高輝度電子線源になるほど顕著なようである。本質的に輝度の測定値は平均値であり、理論的に達成できる最高値が軸上輝度である。

### 2-2-2 輝度と波面の広がり

電子顕微鏡はそもそも電子が粒子ではなく波として取り扱えることを前提として開発され発展してきた装置である。電子線ホログラフィーではさらに一歩進め、電子波の位相がそろっていることをも要求する。この位相のそろった面を波面と呼ぶが、波面の広がりが多いほど遠く離れた2点を透過した部分波同士が干渉し易いのは光波の場合と同じである。この波面の広がりとは不確定性関係を用いて簡単に関係づけられる。

回転対称性を仮定して図 2-2 のように光軸  $z$  方向に運動量  $P$  で流れる電子流を考える。電子流の流れる方向が角度  $2\beta$  だけ広がっているとすると、流れに垂直な方向 ( $x$  軸方向とする) の運動量の広がり  $\Delta P_x$  は、近似的に

$$\Delta P_x \approx 2\beta P = 2\beta \frac{h}{\lambda} \quad (2-4)$$

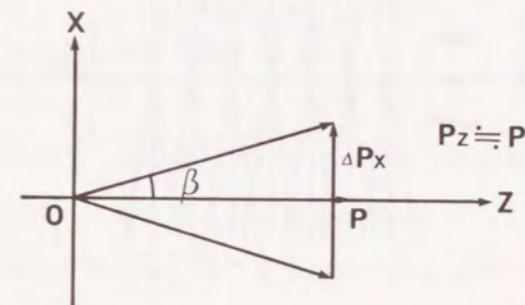


図 2-2 運動量と波面の広がりについて

となる。ここで  $h$  はプランク定数であり、de Broglie の関係式、及び  $P_z \approx P$  の近似を用いた。電子の  $x$  軸方向の位置の不確かさ  $\Delta x$  は不確定性関係より

$$\Delta x \approx \frac{h}{\Delta P_x} = \frac{\lambda}{2\beta} \quad (2-5)$$

の程度になる。

式 (2-5) の意味について考える。波面は電子流の進行方向に対して垂直な面に広がっていると仮定し (Malus の定理)、光軸とそれに  $\beta$  の角度をなす電子流の波面を光軸上で 3 つの波面を一致するように図 2-3 に描く。波面として定義できるのは、 $z$  軸を中心に  $\Delta R$  の範囲内 (破線の内側) のみで、破線より外側では波面は互いに重なり合う。波面として定義できる幅  $\Delta R$  は、幾何学的に

$$\Delta R = \frac{\lambda}{2\beta} \quad (2-6)$$

の程度であり、これは式 (2-5) と一致している。すなわち、電子の存在確率の広がりが波面であり、干渉はこの範囲内において生じていると考えられる。電子流の角度広がり  $\beta$  は開き角  $\Omega$  と直接関連しており

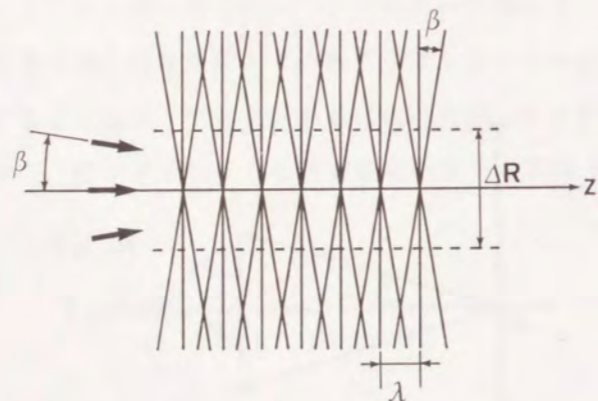


図 2-3 開き角と波面の広がり

$$\Delta R = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{\lambda}{\sqrt{\Omega}} \quad (2-7)$$

である。すなわち開き角が小さいほど可干渉領域を広く取れることがわかる。

一方平均輝度は電子流の強度を  $I$ 、その流れる面積を  $S$  として、

$$\bar{B}_0 = \frac{I}{S\Omega} = \frac{I}{\pi S\beta^2} \quad (2-8)$$

で表わされる。電子流密度  $\frac{I}{S}$  は、フィルムなど像の検出器の性能によりその下限が定められているため、例えば同じ感度のフィルムにホログラムを記録するときには平均輝度の大きな電子銃を用いた方が開き角  $\Omega$  を小さく取ることができ、可干渉領域  $\Delta R$  も広く取ることができる。輝度のうち可干渉性に関係しているのは開き角であり、電子密度は露光時間など装置の安定性を通じて 2 次的に可干渉性に関係している。以上が電子線ホログラフィーにおいて高輝度電子銃が必要とされる理由である。すなわち、

$$\Delta R = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{\lambda}{\sqrt{\frac{I}{S}}} \sqrt{\bar{B}_0} \quad (2-9)$$

なる関係が成立している。

### 2-2-3 コヒーレンス度と有効光源

輝度と可干渉領域の広がりとの関連について示したが、これはどれくらい干渉し易いかというコヒーレンス度について取り扱ったものではない。式 (2-9) によって平均輝度の大きい場合ほど可干渉領域を大きく取れることは示されているが、極めて感度のよいフィルムを用いて  $\frac{I}{S}$  を小さく取ることができれば、量子ノイズの問題を無視すれば輝度が小さくても同じだけの可干渉領域が得られることを示している。またフィルムに記録する場合、感度に対して問題となるのはフィルムへのドーズ量であって、露光時間を長く取ることが

できれば電流密度  $\frac{I}{S}$  の少なさを補うことも可能である。しかしながら本質的に熱電子銃は電界放射電子銃にそのコヒーレンス度において劣っており電子線ホログラフィーを行なうには不適當であった。以上の事は輝度が電子銃の性能を評価する上で有効な量であっても、コヒーレンス度を評価する場合には必ずしも完全ではないことを示している。ここでは光源の大きさという点から考えてみる。ただし、空間的コヒーレンスについてのみ取扱い、時間的コヒーレンスについては単色または準単色光を仮定することにより無視する。

Zernike (1938) は、2つの点光源間のコヒーレンス度をそれらが作った干渉縞のコントラストとして定義した。すなわち、点  $P_1$ 、点  $P_2$  に点光源を考え、それが点  $Q$  に作る複素振幅をそれぞれ  $V_1(P_1, t_0 - t_1)$ 、 $V_2(P_2, t_0 - t_2)$  とすると、点  $Q$  で観測される強度は、 $\langle \rangle$  で時間平均を表わして、

$$I(Q) = I_1 + I_2 + 2\text{Re}\langle V_1(t-t_1)V_2^*(t-t_2) \rangle \quad (2-10)$$

である。実部の  $\langle V_1(t_0 - t_1)V_2^*(t_0 - t_2) \rangle$  は相互強度と呼ばれる。距離  $S_1$ 、 $S_2$  の与える時間差が小さく、かつ定常的な複素振幅であると考えられるとき、相互強度  $J_{12}(P_1, P_2, t)$  は光源の位置だけの関数となり、

$$J_{12}(P_1, P_2) = \langle V_1(t)V_2^*(t) \rangle \quad (2-11)$$

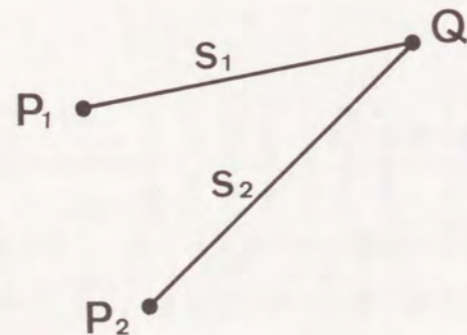


図 2-4 2つの点光源からの寄与

となる。  $P_1$ 、 $P_2$  が一致するとき

$$\begin{aligned} J_{11}(P_1, P_1) &= \langle V_1(t)V_1^*(t) \rangle = I_1 \\ J_{22}(P_2, P_2) &= \langle V_2(t)V_2^*(t) \rangle = I_2 \end{aligned} \quad (2-12)$$

であり、単なる点光源が作る複素振幅の強度分布と一致する。複素コヒーレンス度  $\mu_{12}$  は相互強度  $J_{12}$  を  $J_{11}^{1/2}$ 、 $J_{22}^{1/2}$  で正規化したものと定義する。

$$\mu_{12}(P_1, P_2) = \frac{J_{12}(P_1, P_2)}{\sqrt{J_{11}}\sqrt{J_{22}}} \quad (2-13)$$

式 (2-10) は複素コヒーレンス度  $\mu_{12}$  を用いて

$$\begin{aligned} I(Q) &= I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1}\sqrt{I_2}|\mu_{12}|\cos\alpha_{12} \\ \alpha_{12} &= \arg(\mu_{12}) \end{aligned} \quad (2-14)$$

で表わされる。  $|\mu_{12}|$  をコヒーレンス度と呼び、 $P_1$ 、 $P_2$  によって作られた干渉縞のコントラストを表わす。完全コヒーレントの時  $|\mu_{12}|=1$ 、インコヒーレントの時  $|\mu_{12}|=0$  である。  $0 < |\mu_{12}| < 1$  の時を部分コヒーレントの状態であるといい、どのような光学系でも厳密には部分コヒーレントな状態にある。式 (2-11) で用いた仮定が成立する場合には点  $P$  から点  $Q$  への伝搬は考えなくてもよいことになり、2つの点光源の複素振幅を直接仮想的に取り扱い相互強度を求めればよい。

次に光源  $\sigma$  を点光源の集合と考え、点  $S_m$  から放射される光の複素振幅を  $A_m \exp[i(\omega_0 t - \psi_m)]$  とすると点  $P_1$  における複素振幅は  $\frac{A_m}{L_{1m}} \exp[i(\omega_0 t - \psi_m + kL_{1m})]$ 、 $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  で表わされる。

光源上の各点から伝搬して来る複素振幅の合成は

$$\begin{aligned} V_1(t) &= \sum_{m=1} \frac{A_m}{L_{1m}} \exp[i(\omega_0 t - \psi_m + kL_{1m})] \\ V_2(t) &= \sum_{m=1} \frac{A_m}{L_{2m}} \exp[i(\omega_0 t - \psi_m + kL_{2m})] \end{aligned} \quad (2-15)$$

と表わされる。可干渉性を知るためには点  $P_1$ 、 $P_2$  における複素振幅を用いて相互強度を調べれば良く、

$$J_{12}(P_1, P_2) = \left\langle \sum_{m=1}^n A_m A_n^* \frac{\exp[-i(\psi_m - \psi_n)] \exp[ik(L_{1m} - L_{2m})]}{L_{1m} L_{2m}} \right\rangle \quad (2-16)$$

である。光源  $\sigma$  が空間的にインコヒーレントだとすると  $m \neq n$  の項は時間平均を取ると消えてしまい  $m=n$  の項のみ残り

$$\begin{aligned} J_{12}(P_1, P_2) &= \sum_{m=n} \langle A_m A_m^* \rangle \frac{\exp[ik(L_{1m} - L_{2m})]}{L_{1m} L_{2m}} \\ &= \sum_m I_m \frac{\exp[ik(L_{1m} - L_{2m})]}{L_{1m} L_{2m}} \end{aligned} \quad (2-17)$$

となり、これを連続的に表わすと光源の強度分布を  $I(s)$ 、光源の面積素を  $ds$  として、

$$J_{12}(P_1, P_2) = \iint I(s) \frac{\exp[ik(L_1 - L_2)]}{L_1 L_2} ds \quad (2-18)$$

である。伝搬に関する定石の方法より、分母は積分の外に出し、式 (2-12) より複素コヒーレンス度は

$$\mu_{12}(P_1, P_2) = \frac{\iint I(s) \exp[ik(L_1 - L_2)] ds}{\iint I(s) ds} \quad (2-19)$$

となる。点  $S_m$  の座標を  $(\xi, \eta)$ 、点  $P_1(X_1, Y_2)$ 、点  $P_2(X_2, Y_2)$  とおくと、距離  $R_1$ 、 $R_2$  の与える時間差が小さいという仮定より、

$$\mu_{12}(X_1, Y_1; X_2, Y_2) = \frac{\exp(ik\psi) \iint I(\xi, \eta) \exp[-ik\left\{\frac{X_1 - X_2}{R} \xi + \frac{Y_1 - Y_2}{R} \eta\right\}] d\xi d\eta}{\iint I(\xi, \eta) d\xi d\eta} \quad (2-20)$$

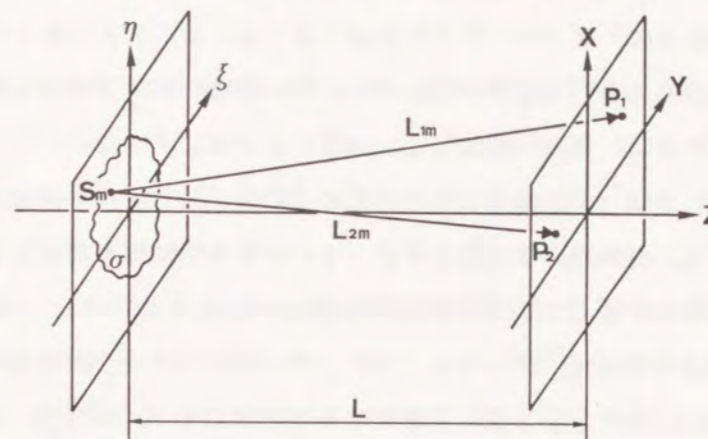


図 2-5 van Cittert-Zernike の定理の説明

を得る。これは光源の強度分布と同じ形の振幅分布を持つ開口に、平面波が入射した時のフラウンホファー回折と同じ形式で表わされている。これを van Cittert-Zernike の定理という。

光源の強度分布の空間周波数スペクトル分布がコヒーレンス度であり、逆にコヒーレンス度をフーリエ変換すると光源の強度分布が得られることになる。このようにして得られた光源を有効光源という。

有効光源が点光源になるとき複素コヒーレンス度は  $|\mu_{12}|=1$  となり、光学系はコヒーレントな状態である。逆に有効光源が均一で無限大の広がりを持つとき複素コヒーレンス度は  $|\mu_{12}|=0$  となりインコヒーレントな状態を表わす。

前節では照射電子線の可干渉領域を定めるのは開き角であることを示したが、その開き角の広がり、光源の大きさとの対応を考えてみる。まず図 2-6 (a) のように角度広がりのない無限大の大きさの電子流を完全レンズの後側焦点面にて観察すると点像を結ぶ。

(b) のようにある角度だけ連続的に広がった電子流の場合は、広がりを持った像が得られるであろう。相反定理より、ここで得られたような大きさの強度分布を振幅分布としてもつ光源を Köhler 照明により得られる照射電子線の開き角の広がりとは全く同じものである。これはコヒーレンス度と有効光源との関係に対応している。電子線源は有効光源と同じく

インコヒーレントと考えて差し支えない光源であり、電子線ホログラフィーはコンデンサーレンズ系によって Köhler 照明を実現し、なるべく角度分布の小さい可干渉な電子線を利用しているのである。

コンデンサーレンズ系の開口の大きさを一定とした場合、熱電子銃はその 10 数  $\mu\text{m}\phi$  という光源の大きさ故に、ある一定値以上、開き角を小さくできない。一方電界放射型電子銃は光源の大きさが数 nm と極めて小さいため、熱電子銃と比べて開き角を約 3 桁小さくすることができる。これが、電子線ホログラフィーにおいて電界放射型電子銃の望まれる理由であり電流密度に関しては 2 次的なものでしかない。

一般に光源の輝度が無変化であってもコンデンサーレンズにより照射電子線の開き角を変化させ、実効的にコヒーレンス度を変化させることができる。これは、Köhler 照明でも臨界照明でもコヒーレンス度は変化しないとした光学の結果に反するようであるが、開き角の分布、及びコヒーレンス度の関数としての形質無変化なのであって、照射光学系の倍率の変化により関数のどの部分を使用するかが変化し、実効的に開き角の分布及びコヒーレンス度が実効的に変化して見えたのである。いずれにせよ、可干渉性についての議論は光源の大きさに直して行なうことが大切である。

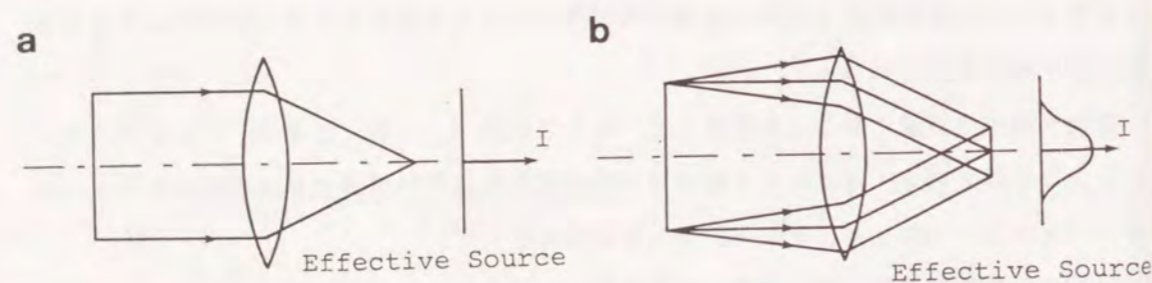


図 2-6 開き角と等価光源の広がりについて

(a) 角度広がりのない場合、(b) 角度広がりのある場合

## 2-3 LaBe 単結晶陰極のエミッションパターン観察による熱電界放射特性

LaBe 単結晶からの熱電子放射、及び電界放射特性は 1970 年代から 1980 年代の初期にかけて新しい実用的な電子銃の開発を目的に精力的に研究された (Kudintseva et al., 1971; Shimizu et al., 1975, 1978, 1981, 1984; Futamoto et al., 1975, 1977; Aono et al., 1979; Swanson et al., 1981; Gesley and Swanson, 1984)。しかしながら、 $10^{-10}$  Torr のオーダーの真空における LaBe からの室温での電界放射は実用化できるほど安定ではなかった。これは酸素吸着による仕事関数の変化など、LaBe の表面特性がタングステンよりも敏感であるためと推定された。 $10^{-8}$  Torr の真空度における熱電子放射のエミッションパターン観察において、クリーンパターンは (310) spot で形成されており、これが酸素導入によって (100) spot が強く輝くようになることが確認されている。このエミッションパターン観察の目的は、tip 温度約 1000 °C における熱電界放射が LaBe 単結晶の場合、可能か不可能か、また可能な場合、実用的な熱電界放射電子銃となり得るか否かを調べるものである。

### 2-3-1 装置及び実験方法

LaBe 単結晶は軸方向の方位が  $\langle 100 \rangle$ 、及び  $\langle 310 \rangle$  の 2 種類のものを用意した。 $\langle 100 \rangle$  方位は市販されている熱電子銃と同方位のもの、 $\langle 310 \rangle$  方位は熱電子放射のクリーンパターンでは (310) spot が明るく生じるためこれを軸方向に一致させる目的で切り出したものである。これらの方位については X 線プレセッション法にて確認を行なった。単結晶の大きさは  $0.2 \times 0.2 \times 5 \text{ mm}^3$  の rod となっており、これを  $1.5 \text{ mm}\phi$  のタングステン線にレーザー溶接 (YAG レーザー、30 W) によって取り付けした。タングステン線は水素焼鈍により伸延時に表面に生じるカーボン、及び線内部の歪を取り除いたものを使用した。一般のタングステン線では溶接時に表面のカーボンとタングステンカーバイトを生成してしまい良好な溶接ができない。また、線内部に歪が残存しているため、LaBe tip 加熱時にエミッターの形状が変化してしまう可能性がある。そして、LaBe 単結晶とタングステンの点溶接では溶接時に単結晶の一部に圧力がかかり、結晶を破損する確率が極めて高かった。その点、非接触で加熱できるレーザー溶接は理想的と考えられた。

tip 先端の形状は強電界を印加するため、電界研磨法により先端半径  $0.1 \mu\text{m}$  以下にまで先鋭にした。電界研磨条件は、グリセリン 20 %、リン酸 30 %、水 50 % の研磨液にて、AC 2.0 ~ 2.5 V である。以上により作製した  $\text{LaBe}$  単結晶 tip を熱電子銃のウェーネルト電極より tip 先端を約 0.5 mm 突き出させて固定する。この場合ウェーネルト電極は熱電子銃におけるクロスオーバーポイントを作る目的はなく、 $\text{LaBe}$  単結晶の側面から生じる熱電子が熱電界放射電子と同じ光軸上に流れるのを防ぐことが主たる目的である。そのため、この研究においてはこれをショットキーシールド電極と呼ぶことにする。図 2-7 に代表的な tip 先端の走査電子顕微鏡像と用いたエミッター、ショットキーシールド電極を示す。ショットキーシールド電極の穴径は、1.0 mm $\phi$  であった。

作製したエミッターはその 1 つ 1 つ全てについて予め bell-jar 内で通電加熱し、通電量に対する tip 温度の変化を光高温計にて測定した。測定温度から真温度への補正には、 $\text{LaBe}$  の放射率として  $\epsilon=0.8$  を用いた。この予備実験によりエミッターへの通電量より直ちに tip 温度を知ることができる。

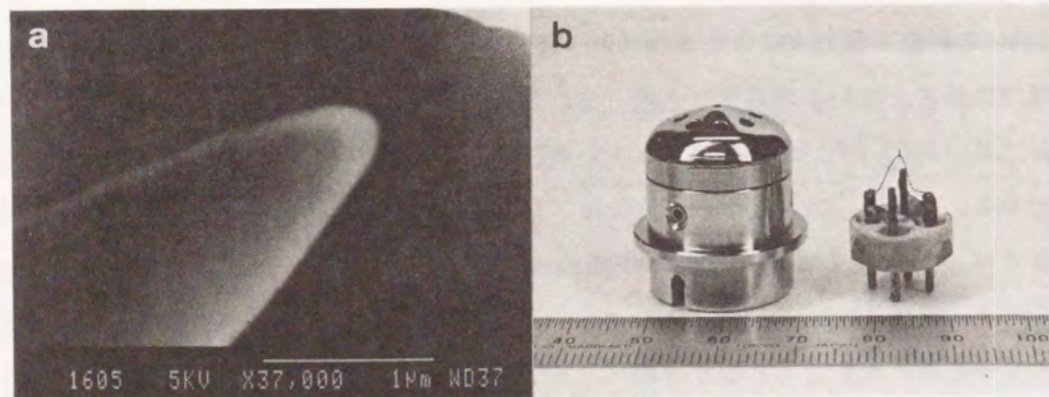


図 2-7 (a)  $\text{LaBe}$  tip 先端の走査型電子顕微鏡像  
(b) エミッター及びウェーネルト電極

図 2-8 に使用したエミッションパターン観察装置の内部、及び模式図を示す。tip 先端はショットキーシールド電極より 0.5 mm 突き出させ、tip 先端に電界放射に十分な強電界を印加するため陽極との距離を 2 mm とした。エミッションパターンは下部の蛍光板上で観察する。エミッションパターンを形成する bright spot のエミッション電流を測定するため、蛍光板に 2 mm $\phi$  の穴をあけ、その蛍光板の下部に Faraday cage を取り付けた。また、bright spot が Faraday cage の穴の位置に来るように陽極直下に静電型偏向板を取り付けた。チャンバーはイオンスプッターポンプで排気され、ベーキングの後で、 $5.0 \times 10^{-9}$  Torr の真空度を達成することができ、エミッションパターン観察中でも  $1 \sim 2 \times 10^{-8}$  Torr の真空度を保っていた。

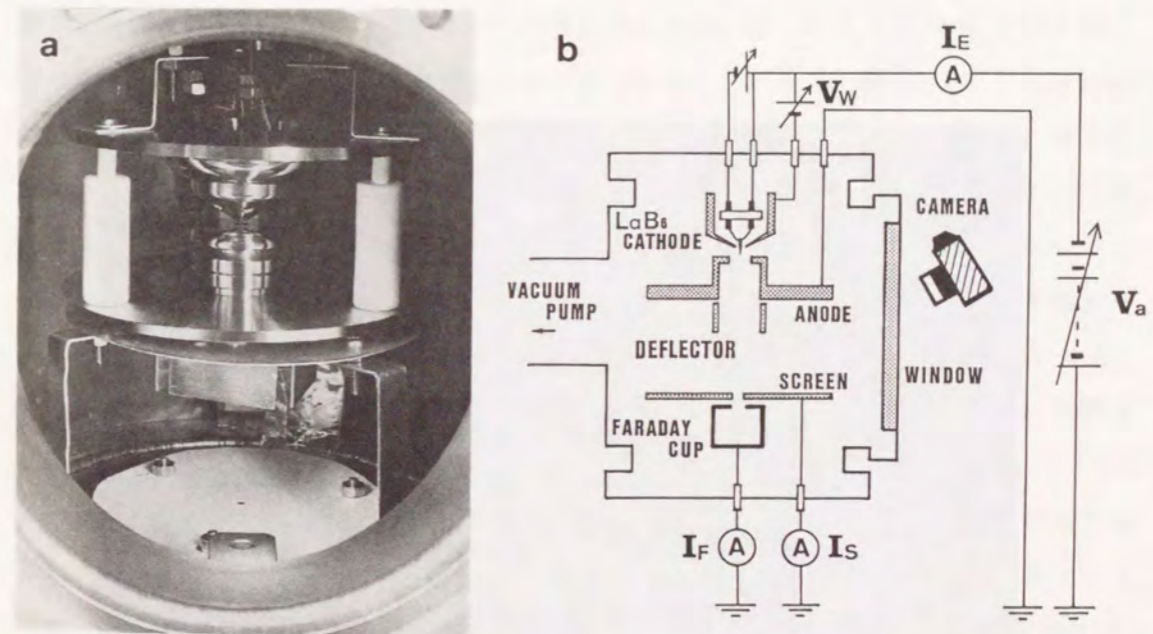


図 2-8 エミッションパターン観察装置  
(a) チャンバー内部、(b) 構造の模式図

## 2-3-2 熱電界蒸発法

tip に対して陽極に負の高電圧を印加し、tip 先端の電界が非常に大きくなると tip 表面の原子がイオン化され、そのまま空間中に飛び出して来る。この現象を電界蒸発という。本実験においては LaBe tip のクリーンパターンを得るために、tip を高温に保ったままの状態を負の高圧を印加する熱電界蒸発法を試みた。以下にその手順について述べる。また、クリーンパターンが得られるまでのエミッションパターンの変化の様子を図 2-9 に示す。但し、これは  $\langle 310 \rangle$  方位の LaBe tip について行なったものである。

真空が  $10^{-9}$  Torr のオーダーにて実験は可能である。まず、tip 温度を  $1500^\circ\text{C}$  にまで上昇させ、2~3 秒そのままの温度に保持した後、エミッションパターン観察の温度（図 2-9 の場合は  $600^\circ\text{C}$ ）まで下げる。これは tip 表面に吸着している酸素などの分子

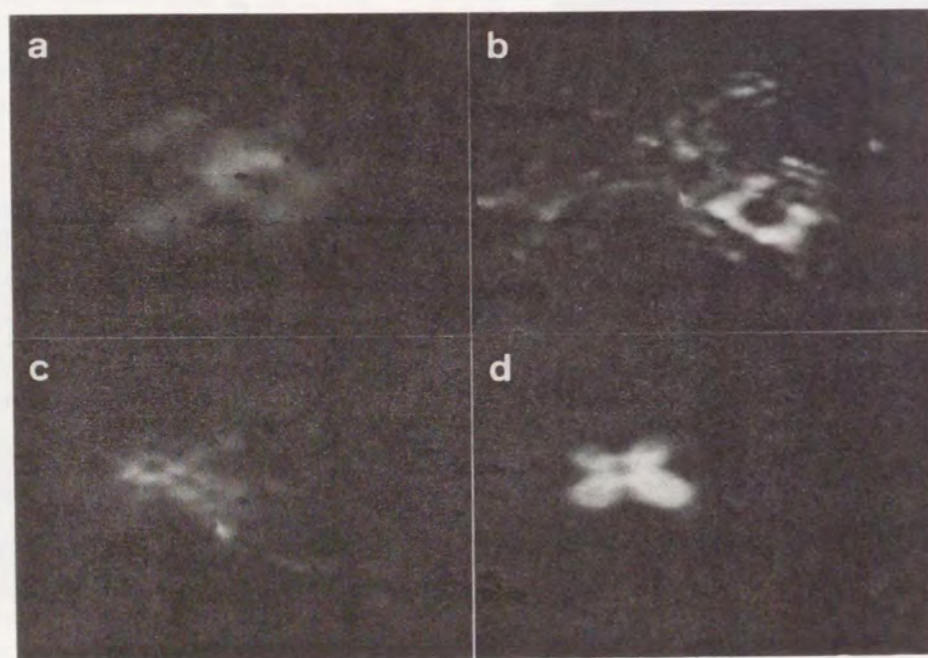


図 2-9 熱電界蒸発によるエミッションパターンの変化  
(a) フラッシング直後、(b) -19 kV、3 分後  
(c) -19 kV、4 分後、(d) -19 kV、9 分後

を脱離させるために行なうものであり、以後フラッシュと呼ぶ。次に、陽極に正の電圧をエミッションパターンが観察できるまでゆっくりかけていく。図 2-9 (a) はこの時点でのエミッションパターンである。引出し電圧は 7 kV であった。tip 温度を  $600^\circ\text{C}$  としたのは LaBe 単結晶側面からの熱電子が、エミッションパターンに重畳して観察されることを防ぐためである。中心の明るい部分は熱電子放射と同様 (310) spot によるものと推定される。通常、 $1500^\circ\text{C}$  でのフラッシュだけでクリーンパターンが得られることはなく、熱電界蒸発を行なわなければならない。引出し電圧をゼロに戻し、tip 温度を再び  $1500^\circ\text{C}$  とする。陽極に先程のエミッションパターン観察時の 2~3 倍の負電圧を印加し、そのまま数分間経過を見る。陽極への印加電圧をゼロに戻した後は、フラッシュ後と同じ手順にてエミッションパターンを観察する。図 2-9 (b) の場合、-19 kV の電圧にて 3 分間の熱電界蒸発を行なった後のエミッションパターンである。図の右下に dark spot が見られるが、これは (110) の spot で、その周りが明るくなっていると推定される。全体に、電界イオン顕微鏡の像と良く似たパターンが得られている。図 2-9 (c) はさらに -19 kV、1 分間の熱電界蒸発を行なった後のエミッションパターンである。図 (b) の (110) spot 周りのエミッションパターンが失われ、4 回対称に近いパターンが得られている。さらに -19 kV で 5 分間の熱電界蒸発を行なった後のエミッションパターンを図 2-9 (d) に示す。4 回対称パターンが得られており中心の dark spot が (100)、4 つの bright spot が (310) と推定される。一度この 4 回対称パターンが得られてしまうと以後、熱電界蒸発を行なってもエミッションパターンに変化が観測されないことから、この 4 回対称パターンをクリーンパターンと推定している。熱電界蒸発に要する電界の強さ、蒸発時間、回数などは作製した tip によって異なるため、その都度エミッションパターンを観察して 4 回対称パターンが生じているか否かを確認する必要がある。一度 4 回対称パターンが得られた後は、tip を大気にさらしてもフラッシュを行なうだけで 4 回対称パターンを再現できる事から、電界研磨後の tip 表面には走査型電子顕微鏡では分解できないほどの微小な凹凸が残存しており、熱電界蒸発はこれらの微小突起を取り除き、tip 表面を滑らかにしていると推定できる。室温での電界蒸発では、4 回対称パターンが得られなかったが、これは電界蒸発に必要な強電界を供給できなかった事を示唆している。

### 2-3-3 4回対称クリーンパターン

熱電界蒸発によって得られた4回対称クリーンパターンの結晶方位依存性を調べるため、 $\langle 310 \rangle$  tip、 $\langle 100 \rangle$  tip の両方についてクリーンパターンを観察した。図 2-10 に各々のクリーンパターンをステレオ投影図と共に示す。観察時の tip 温度は約 900 °C であった。エミッションパターンの像において丸いリング状のコントラストはショットキーシールド電極を通過した熱電子による像であり、4方向に陽極下部の偏向電極による影も観察されている。どちらのエミッションパターンも良く似たほぼ4回対称のパターンとなっており、別に作製した同種の tip を用いてもこのパターンが再現性よく生じる。このことからこのエミッションパターンが得られる理由は、局所的な tip の形状変化によるものではなく、特定の結晶面の仕事関数が他の面に比べて低いためと考えられる。Swanson et al. (1981) により (200)、(310) 面等の高次の面の仕事関数が低くなることが報告されており、彼らの観察した室温での電界放射パターンも図 2-10 と同様の4回対称となっている。ま

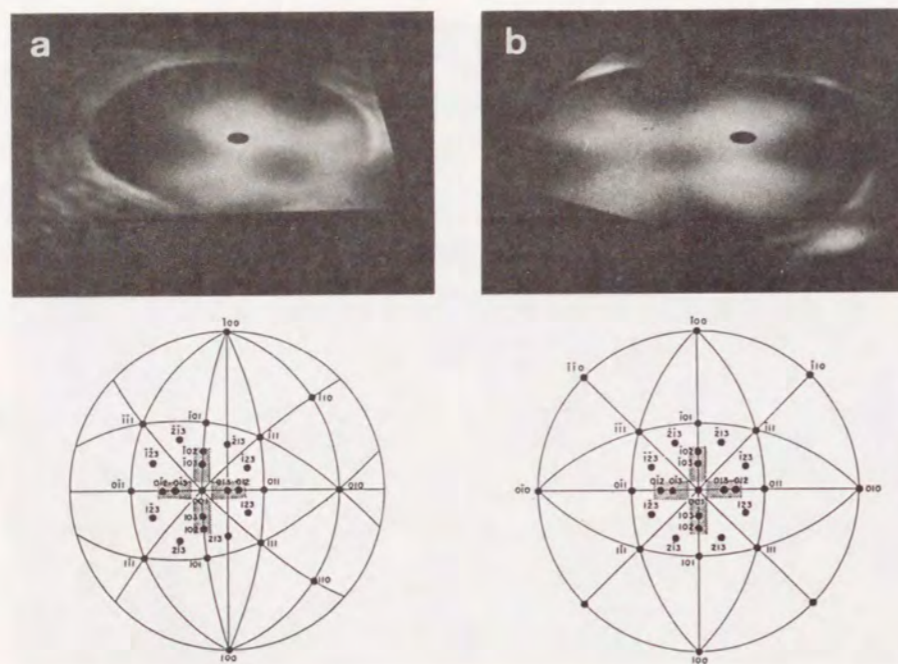


図 2-10 4回対称クリーンパターンとステレオ投影図

- (a)  $\langle 310 \rangle$  LaBe tip
- (b)  $\langle 100 \rangle$  LaBe tip

た、Shimizu et al. (1981) は LaBe tip の熱電子放射パターンでは (210) spot が明るくなることを報告している。本研究においてはX線プリセッション法によりクリーンパターンの Bright spot が (m10) 系列の結晶面からのエミッションによるものであることを確認しており、以後 (310) spot と呼ぶことにする。

図 2-10 に  $\langle 310 \rangle$  軸、 $\langle 100 \rangle$  軸を中心としたステレオ投影図を示した。エミッションパターンの方位依存性はステレオ投影とほぼ一致するため、 $\langle 310 \rangle$  tip の場合には (310) spot による4回対称パターンは少し歪んだ形となるはずであるが、実際のエミッションパターン観察ではこの tip 方位の違いによるパターン形状の差は見いだせなかった。これは、パターンの歪が極めて小さいものであることと、装置の構造上エミッションパターンを斜め上方より観察しているために見い出せなかったものと考えられる。いずれにせよ (310) 面からのエミッションを反映して4回対称パターンが形成されているのは間違いのないと思われる。

### 2-3-4 4回対称クリーンパターンの形状変化

4回対称クリーンパターンの形状は引出し電圧に大きく依存するのみならず tip 温度や真空度に対しても敏感に変化した。図 2-11 に、tip 温度によるエミッションパターンの形状変化の様子を示す。(a) は 1500 °C にてフラッシュを行なった直後の  $\langle 310 \rangle$  tip のエミッションパターンで、tip 温度は 900 °C である。4回対称パターンが得られている。

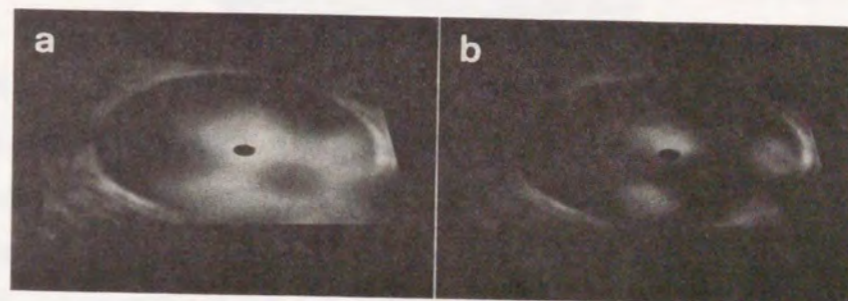


図 2-11  $\langle 310 \rangle$  LaBe tip エミッションパターンの変化  
(a) フラッシュ直後、(b) 900 °C、30 分後



tip 温度を 900 °C に保ったまま観察を続けていると、(310) spot がその形状を変化させながらエミッション電流が増大していく。(b) はフラッシュ後 30 分経過した後のパターン像である。この現象を (310) spot の enhancement と呼ぶことにする。この (310) spot の enhancement は、tip 温度 950 °C 以下では必ず現われエミッション電流は不安定となった。これは、電子銃部に残留している酸素の tip 表面への吸着が原因と考えられる。enhancement が起こるとエミッション電流が不安定となるため、実用上、tip の動作温度は 950 °C 以上でなければならない。

tip 温度を 950 °C 以上に保った場合、エミッションパターンは真空度に依存している。これは残留ガスイオンが tip 先端に衝突するためと考えられる。図 2-12 に tip 温度約 1000 °C の時のエミッションパターンの真空度依存性を示す。図 2-12 (a) は、1500 °C にてフラッシュした直後のクリーンパターンである。真空度は  $2.1 \times 10^{-8}$  Torr であった。図 2-12 (b)、(c) は、クリーンパターンの見える状態でイオンスッターポンプのスイッチを切り、真空度を悪くしながら観察を行なったものである。各々ポンプのスイッチを切ってから 3 分後、7 分後のパターンで、真空度は  $8.0 \times 10^{-7}$  Torr、 $1.9 \times 10^{-6}$  Torr であった。(c) のパターンを観察後、イオンスッターポンプのスイッチを再び入れ、真空度を回復させながら観察を行なったものが図 2-12 (d)、(e) である。(d) は 5 分後  $2.4 \times 10^{-8}$  Torr まで真空度が回復した時のパターン、(e) は 18 分後真空度が  $2.0 \times 10^{-8}$  Torr のときのパターンで、ほとんど最初のクリーンパターン (図 2-12 (a)) と同様なエミッションパターンが得られるようになった時のものである。図 2-12 (c) のエミッションパターンの状態よりもさらに真空度を悪くすると、もはや真空度を元の  $1 \times 10^{-8}$  Torr まで戻してもエミッションパターンはクリーンパターンに戻らず、クリーンパターンを得るにはフラッシュを必要とした。また、 $10^{-6}$  Torr の真空度で長時間エミッションパターンを観察していると、フラッシュだけでは容易にクリーンパターンには戻らなくなり再び熱電界蒸発を必要とした。以上の事から、残留ガスイオンの衝突によって、熱電界放射でよく観察される様に tip 先端に facet が生じていると考えられる。実用的な電子銃として用いるためには真空度は  $10^{-9}$  Torr のオーダーに入っている必要がある。

以上、エミッションパターンの形状変化の観察より、 $\langle 310 \rangle$  LaB<sub>6</sub> 単結晶陰極を安定な熱電界放射型電子銃として使用するための動作条件として

- (1) tip 温度 950 °C 以上 (1000 °C から 1050 °C)
- (2) 真空度  $10^{-9}$  Torr 以上

が確認された。

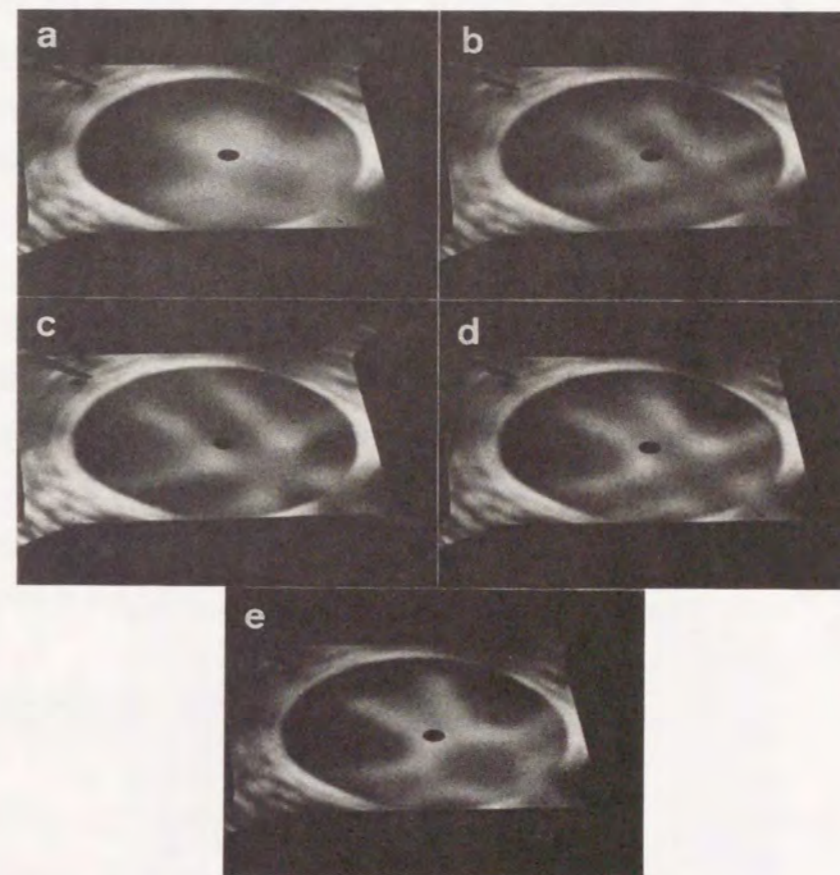


図 2-12  $\langle 310 \rangle$  LaB<sub>6</sub> tip エミッションパターンの真空度による変化

- (a) フラッシュ直後
- (b) イオンスッターポンプ・オフ後 3 分、 $8.0 \times 10^{-7}$  Torr
- (c) イオンスッターポンプ・オフ後 7 分、 $1.9 \times 10^{-6}$  Torr
- (d) イオンスッターポンプ再びオン後 5 分、 $2.4 \times 10^{-8}$  Torr
- (e) イオンスッターポンプ再びオン後 18 分、 $2.0 \times 10^{-8}$  Torr

図 2-13 に (310) spot のエミッション電流安定性を示す。tip 温度は 960 °C で、先述した安定動作条件の下限ぎりぎりである。長時間にわたるエミッションパターン観察中の真空度の極端な劣化を防ぐため低い tip 温度に設定した。観察中、図 2-11 で観察されたような (310) spot の enhancement は見られなかった。比較的安定なエミッション電流が得られているが、時間の経過とともにエミッション電流が若干減少しており、tip が残留ガス吸着の影響を受けていることがわかる。これは、排気系が良くなり真空度を向上させると共に、tip の動作温度を 1000 °C から 1050 °C に上げれば改善が期待される。

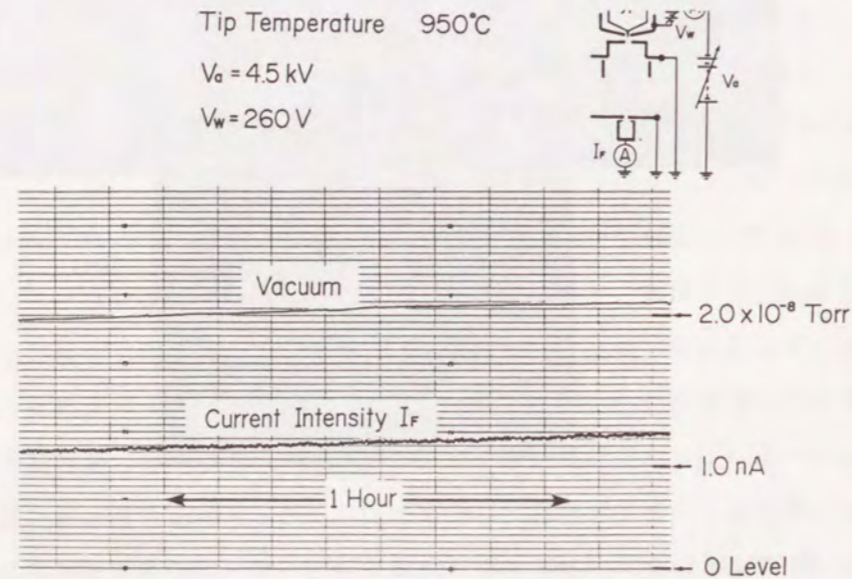


図 2-13 (310) spot のエミッション電流の経時変化

異なる引出し電圧に対して、(310) spot のエミッション電流の変化を測定するとショットキープロットを得ることができる。1050 °C、1000 °C、950 °C の各 tip 温度におけるショットキープロットを図 2-14 に示す。白抜きの点は引出し電圧上昇時、黒点は下降時の測定値である。実験は引出し電圧の上昇後、下降させるという順で行なった。950 °C の実験において引出し電圧の上下でエミッション電流に差が生じているが、これは時間の経過に伴い (310) spot の enhancement が生じたためである。図中に記入した温度はこのショットキープロットより逆に tip 温度を見積ったものである。詳しくは後述する。

tip 温度はフィラメントへの通電量より推定したもの、また tip 先端へかかる電界強度は表面電荷法を用いたシミュレーションにより求めたものである (Yoshikawa et al., 1991)。シミュレーションに用いたモデルを図 2-15 に示す。回転対称形であるため、半断面のみを図示している。ショットキーシールド電極、陽極の形状に関しては、tip 先端にかかる電界に大きく寄与する部分のみを簡略化しているが位置関係はほぼ実際のものと一致している。tip 先端の形状は、半径  $0.3 \mu\text{m}$  の球で置き換えている。このシミュレーションにより、陽極に印加する引出し電圧  $V_a$ 、ショットキーシールド電極に印加する電圧  $V_w$  を変化させた時の tip 先端にかかる電界強度を与える経験式を導いた。これによると tip 先端の電界強度  $F$  は

$$F = 6.60 \times 10^6 V_a - 2.67 \times 10^7 V_w \quad (\text{V/cm}) \quad (2-21)$$

で与えられる。ここで  $V_a$ 、 $V_w$  はいずれも kV の単位である。この式 (2-21) より求めた電界強度を図 2-14 の上側横軸に示している。

図 2-14 のショットキープロットは明らかにエミッションが3つの異なる領域において得られることを示している。すなわち、引出し電界の強度を上げるに従い空間電界制限領域 → ショットキー領域 → 熱電界放射領域への移行が確かめられる。

ショットキー領域におけるエミッション電流は、見かけの仕事関数の低下を考慮したりチャードソンの式により

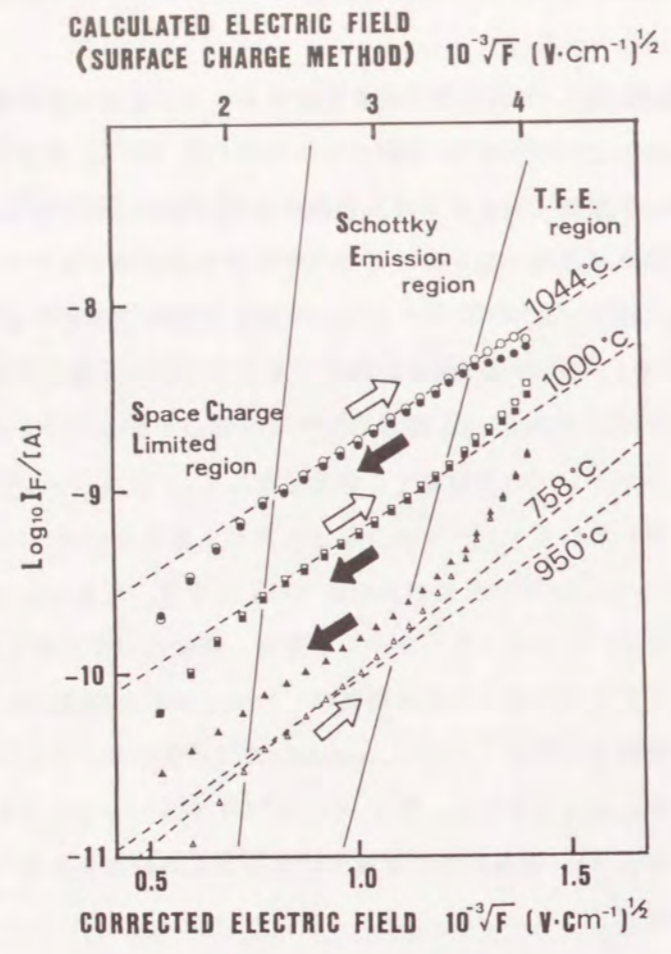


図 2-14 ショットキープロット

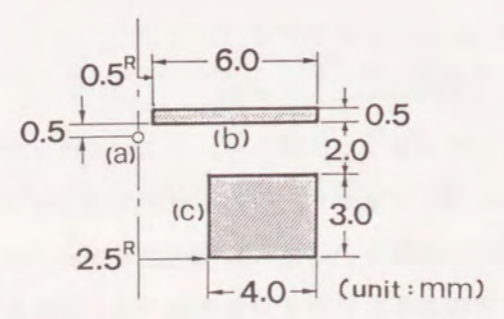


図 2-15 電子銃部のシミュレーションモデル  
(a) tip (半径 0.3 μm の球形)  
(b) ショットキーシールド電極, (c) 陽極

$$J = AT^2 \exp\left\{-\frac{\phi - (e^3 F)^{1/2}}{kT}\right\} \quad (2-22)$$

$\phi$ : 仕事関数      A: リチャードソン定数  
T: tip 温度      k: ボルツマン定数

で与えられる。この式 (2-22) よりショットキープロットの直線領域 (ショットキー領域) における勾配は

$$\frac{1.91}{T} \quad (\text{V}^{-1/2} \text{cm}^{1/2}) \quad (2-23)$$

となる。この勾配より逆に tip 温度を見積るとかなり異なる温度となってしまふ。tip 温度は予備実験として bell-jar にて光高温計で測定しているため、大きく異なることはありえない。従って、tip 先端半径等シミュレーションのモデルに問題があったと推定される。1000 °C の tip 温度が正しいと仮定し、かつ式 (2-23) による勾配が正しいとして電界強度 F に補正を行なった。補正は式 (2-23) の値に補正係数  $\alpha$  を乗ずることとした。 $\alpha$  の値は  $\alpha = 1.23 \times 10^{-7}$  であった。補正後の電界強度の値を図 2-14 の下側の横軸に示している。また、この補正された電界強度と図 2-14 中に破線で示したショットキー領域の勾配により、1050 °C、950 °C の温度を見積った。それによると 1050 °C  $\rightarrow$  1044 °C、950 °C  $\rightarrow$  758 °C となった。但し 950 °C のプロットについては電界強度上昇時のプロットを用いている。950 °C のプロットでは、電界強度上昇時のプロットであってもすでに (310) enhancement の効果が現われており、それが勾配を大きくし実際以上に tip 温度を低く評価する結果になったと推定される。

いずれにせよ、 $2 \times 10^6$  (V/m) 以下の電界強度にて熱電界放射が得られる。これは、Zr/W tip の場合に報告されている値の約半分の電界強度であり、LaB<sub>6</sub> の仕事関数の小ささが主たる原因と考えられる。LaB<sub>6</sub> tip を熱電界放射型電子銃として用いる際、低い電界強度で大きなエミッション電流が得られる可能性を示しており、LaB<sub>6</sub> tip の利点の一つである。

ショットキープロットは、また、その物質の仕事関数を見積る有効な方法の一つである。図 2-14 に基づき仕事関数を求めた。式 (2-22) より

$$\ln \frac{J_i T_i^2}{J_j T_j^2} = (5.04 \times 10^3 \phi - 1.91 F^{1/2}) \left( \frac{1}{T_j} - \frac{1}{T_i} \right) \quad (2-24)$$

を用い、tip 温度 1000 °C と 1044 °C の時の補正電界強度 ( $1.0 \times 10^{-6}$  V/m) とエミッション電流より仕事関数  $\phi = 3.88$  eV を得た。これは従来言われている LaB<sub>6</sub> の仕事関数 2.6 ~ 2.8 eV とかなり異なっており、LaB<sub>6</sub> 単結晶側面からの熱電子の影響が完全に取除けないことや tip 温度推定、もしくは電界強度の推定がまだ完全でない事を示している。

## 2-5 LaB<sub>6</sub> 単結晶陰極の電界放射特性

理論的には熱電界放射よりも tip を加熱しない電界放射の方が輝度が高いとされている。しかし LaB<sub>6</sub> の場合 800 °C 以下の tip 温度では安定なエミッションの得られないことがかなり早くより報告されていた (Shimizu et al., 1975)。図 2-16 は室温での <310> LaB<sub>6</sub> tip の電界放射パターンである。(a) は 1500 °C にてフラッシュを行なった直後のもの、(b) は 1 分後、(c) は 5 分後のパターンである。観察中、真空度は  $1.3 \times 10^{-8}$  Torr であった。図 2-11 と比較してエミッションパターンの形状変化が早くかつ大きなものであることがわかる。また、(b)、(c) のパターンでは (m10) 系列の結晶面からのエミッションではなく 45° 回転した (m11) 系列の面からのエミッションであり、これは Swanson et al. (1981) により報告されている結果とも一致している。



図 2-16 電界放射によるエミッションパターンの変化  
(a) フラッシュ直後, (b) 1 分後, (c) 5 分後

## 2-6 透過型電子顕微鏡による輝度測定法

ここで言う輝度は第 2-2 節で説明した平均輝度  $\bar{B}_0$  であり、単位面積、単位立体角当りの電流量として式 (2-3) によって定義されている。

$$\bar{B}_0 = \frac{\Delta^2 i}{\Delta S \Delta \omega} \quad (\text{A/cm}^2 \cdot \text{st}) \quad (2-3)$$

透過型電子顕微鏡の場合、電流密度  $\frac{\Delta i}{\Delta S}$ 、または単位立体角当りの電流量を測定するのは比較的簡単であるが、その時同時に、前者の場合は電子流のなす立体角、後者では電子線源の大きさを求めなければ輝度は求まらず、これには若干の工夫を必要とする。以下には透過型電子顕微鏡での輝度測定の方法を述べる。

### 2-6-1 電流密度と開き角より求める方法 1

輝度測定の原理は図 2-17 に示した通りである。1 段のレンズのみを用いて光源の像を拡大投影し、その光軸上の中心のみの電流密度  $\frac{\Delta i}{\Delta S'}$  を測定する。この時、レンズの開口径と Faraday cage の開口までの距離より開き角  $\Delta \omega'$  が求まる。輝度はレンズによる拡大倍率  $\frac{b}{a}$  には依存しない故、

$$\bar{B}_0 = \frac{\Delta^2 i}{\Delta S' \Delta \omega'} = \frac{\Delta i}{\Delta S \Delta \omega} \quad (2-25)$$

で与えられる。ただし、a、b の値は既知でなければならない。

この方法で注意すべき点が 2 点ある。

- (1) 光源からの全エミッション電流の変化と、Faraday cage にて測定する電流量の変化が linear になっている事を確認する。
- (2) レンズの開口径を決定している絞りを変化させ、穴径の変化の 2 乗と Faraday cage にて測定する電流量の変化とが linear になっていることを確認する。

(1)、(2) いずれの場合も光学系全体の調整が適切か否かを調べる上で重要であるが、特に光源からのエミッションに角度分布がある場合、(2) の条件が満たされない領域では開き角を大きく見積ってしまい測定輝度の低下をまねく。実際に透過型電子顕微鏡を使用する場合、開口絞りとなっているのは第2コンデンサーレンズの可動絞りのみであるため第2コンデンサーレンズのみオンの状態で蛍光板上に光源の像を結び、蛍光板直下の Faraday cage にてエミッション電流を測定しなければならない。第2コンデンサーレンズのみで光源像を得られない場合は試料面上に光源像を結び、以下の対物、中間、投影レンズ等でその拡大像を蛍光板上に結ばばよい。どちらの場合も図 2-17 の a、b の値を正しく知らなければならないが、後者の場合はそれ以上に、後段のレンズ系による拡大倍率を正しく見積ることと、対物絞りなどの角度制限絞りが後段のレンズ系に存在しないことを確認しなければならない。

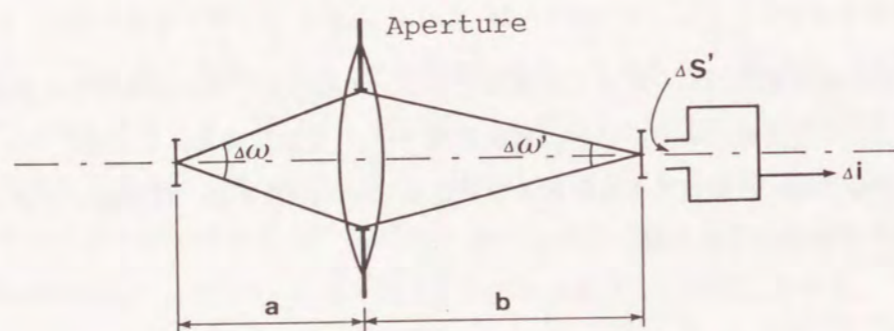


図 2-17 輝度測定の原理 1

2-6-2 電流密度と開き角より求める方法 2

電子顕微鏡の結像作用のみを簡略化して描いたが、輝度測定の原理は図 2-18 に示した通りである。結晶格子像を蛍光板上に結ぶ。この時の電流密度  $\frac{\Delta i}{\Delta S}$  を Faraday cage にて測定する。格子像を得たそのままの状態でも電子回折像を撮影する。0 次の spot の大きさ  $D_s$  と、回折パターンフィルム上の距離  $D_p$  より開き角  $\Delta\omega$  を得る。

$$\Delta\omega = \pi \left( \frac{\lambda D_s}{d D_p} \right)^2 \quad (2-26)$$

ここで  $\lambda$  は電子線の波長、 $d$  は用いた結晶の格子間隔である。この方法は、結晶格子像を撮影しておけば結像光学系の倍率をかなり高い精度で知ることができ、電流密度の測定精度が向上する反面、電子回折像の0次 spot の大きさ  $D_s$  はフィルムへの露光量や現像時間などの条件に大きく依存するという欠点も持っている。 $D_s$  は2乗で輝度に効いてくるため高い精度の測定は望めない。ただし電子顕微鏡を結像条件のまままで運転すれば良く、高分解能電子顕微鏡にとっては便利な方法である。

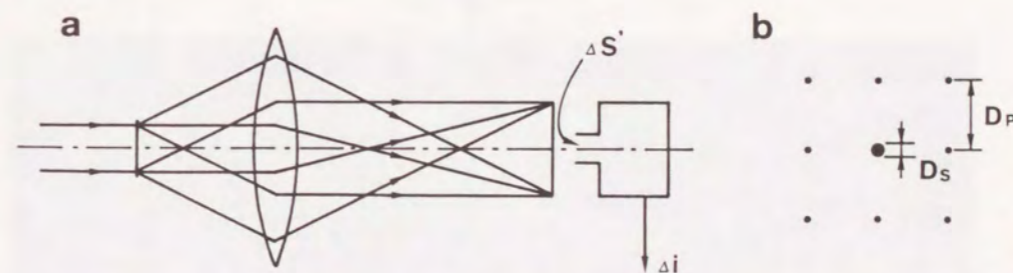


図 2-18 輝度測定の原理 2

(a) 結像光学系、(b) 電子回折像

可干渉領域と開き角には式(2-7)に示した密接な関係があり、ここで述べるのは可干渉領域の大きさより開き角を求める方法である(Boersch, 1943; Tonomura and Komoda, 1973; Tonomura et al., 1979a)。電流密度は第2-6-2節と同じく Faraday cage にて直接測定する。

図2-19のように角度 $2\beta$ だけ広がった電子線で不透明な物体を照明し、それを距離 $z$ だけ離れたところで観察すると、物体の端で回折を受けた電子線と真空中をそのまま透過してきた電子線との間でフレネル干渉縞が形成される。第2-2-2節で述べたように可干渉な幅 $\Delta R$ より離れた2点を通過した波は干渉できないため、フレネル縞が観察されるのは可干渉領域に限られる。可干渉領域はフレネル縞の総本数を $n$ 本として、

$$\Delta R = \sqrt{2n\lambda z} \quad (2-27)$$

と近似され、これより開き角は

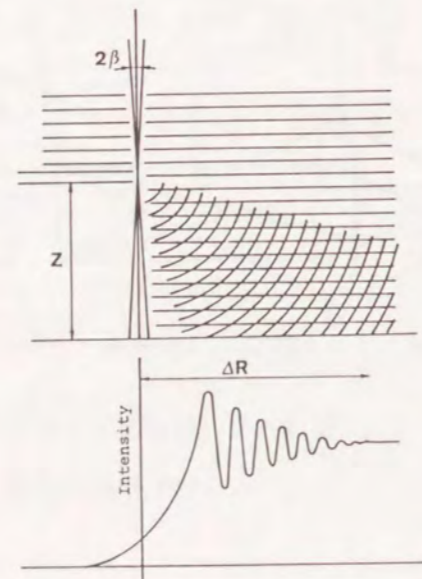


図 2-19 フレネル干渉縞の形成及び強度分布

$$\Delta\omega = \pi \left( \frac{\lambda}{2\Delta R} \right) \quad (2-31)$$

で与えられる。

図2-20にマイクログリッドの端に生じたフレネル縞の1例を示す。使用した電子顕微鏡はJEM-100C-FEG、加速電圧は80 kVである。図2-20に示す通り、フレネル干渉縞の間隔は物体と観察面との距離 $z$ に比例している。また、フレネル縞は物体の端より離れるに従って、その間隔、コントラスト共に小さくなる。従ってこの測定方法の場合、十分に大きな距離 $z$ を与えなければフィルムの感光材の粒状性(M.T.F.)が可干渉領域の測定に影響を与え、実際の可干渉領域よりも小さく見積ることになる。また、フィルムの粒状性(M.T.F.)は露光量、現像条件などにも依存するため、これらに何らかの基準を与えておかなければ全く同じ輝度であっても測定の度に異なる値を得ることになる。輝度が大きな光源の場合、物体の形状も適切なものを選ぶ必要がある。例えば図2-20(c)のような場合、干渉縞が入り乱れてしまい可干渉領域がわからなくなる。実際に透過型電子顕微鏡を用いるときは、試料面上に生じているフレネル縞を後段のレンズ系にて拡大し記録することになる。拡大倍率、また露光中の試料移動など装置の安定性にも十分な注意を払う必要がある。

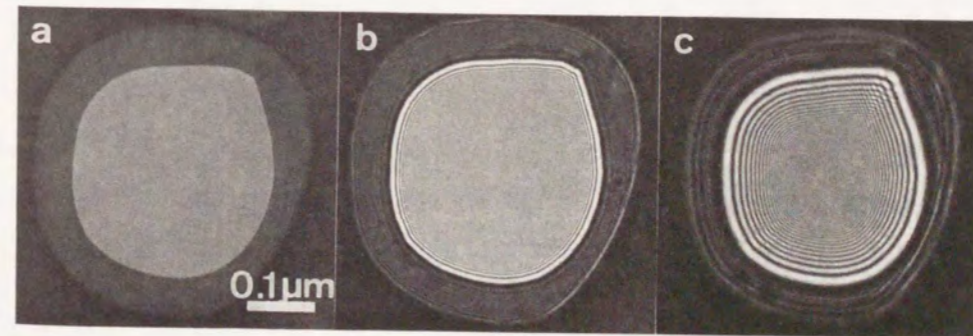


図 2-20 フレネル縞の観察

(a)  $z=0 \mu\text{m}$ , (b)  $z=140 \mu\text{m}$ , (c)  $z=740 \mu\text{m}$

電子回折像を撮影する方法にせよ、フレネル干渉縞を撮影する方法にせよ、写真処理が測定過程に入ってくるとどうしても絶対評価は困難なものになる。しかし、条件さえ整えれば相対評価としては有意義なものであろう。このフレネル縞を撮影する方法による、本研究で使用した透過型電子顕微鏡の輝度測定結果を表 2-1 にまとめておく。

撮影条件は LaB<sub>6</sub> 熱電子銃の場合、

フィルム上倍率 ~ 2 万倍

$z \sim 5 \mu\text{m}$

フィルムへのドーズ量  $\sim 10^{-10} \text{ c/cm}^2$

W 熱電界放射型電子銃の場合、

フィルム上倍率 ~ 1 万倍

$z \sim 300 \mu\text{m}$

フィルムへのドーズ量  $\sim 10^{-11} \text{ c/cm}^2$

である。いずれの測定も Faraday cage を用いていないため、フィルム面へのドーズ量を半桁近く少なく見積っている可能性がある。しかしながら表 2-1 の輝度の値はいずれも妥当な値となっており、この方法の有効性を示していると判断できる。

表 2-1 各透過型電子顕微鏡の測定輝度

電子顕微鏡	加速電圧	測定輝度 (A/cm <sup>2</sup> ·st)
JEM-120C (LaB <sub>6</sub> 熱電子銃)	100 kV	使用始め $5.5 \times 10^5$
		約 750 時間使用後 $3.7 \times 10^5$
JEM-200CX (LaB <sub>6</sub> 熱電子銃)	200 kV	使用始め $4.6 \times 10^6$
		約 250 時間使用後 $1.4 \times 10^6$
JEM-100C-FEG (W 熱電界放射型電子銃)	80 kV	$8.5 \times 10^7$

2-6-4 単位立体角当りの電流量と光源の大きさより測定する方法

これは Thompson and Wolf (1957) による部分可干渉な二光束の干渉現象の取扱いを電子線に応用したものである (Speidel and Kurz, 1977)。図 2-21 に概略図を示す。電子線のクロスオーバーを作り、その下方に電子線バイプリズムを配置する。このクロスオーバーは、加速管下部に生じたものでもよいし、対物レンズの後焦点面に生じたものでもよい。電子線バイプリズムにて干渉縞を作成する。これは本来、点 P<sub>1</sub>、P<sub>2</sub> に作るはずであった複素振幅を点 O で重ね合わせその干渉縞を観察していることに相当する。第 3 章にて詳述するが、電子線バイプリズムに印加する電圧を変化させると、異なる 2 点の複素振幅の干渉を観察することになり、この干渉縞のコントラストを  $|\mu_{12}(P_1, P_2)|$  とおくと丁度式 (2-16) のコヒーレンス度を測定したことになる。バイプリズムは左右等角度だけ偏向させる働きがあるため、近似的に 2 点 P<sub>1</sub>、P<sub>2</sub> は 2 点間距離 r の関数となり、これを干渉縞の空間周波数 R で表わせれば以下のような関係が成立している。

$$|\mu_{12}(P_1, P_2)| \sim |\mu_{12}(r)| \sim |\mu(R)| \quad (2-29)$$

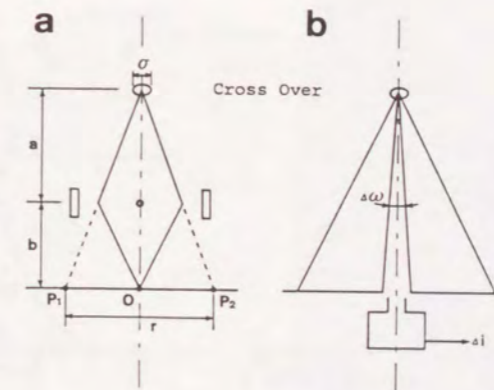


図 2-21 輝度測定の方法

- (a) コヒーレンス度の測定
- (b) 単位立体角当りの電流量の測定

電子線バイプリズムに印加する電圧を変化させ、様々な空間周波数に対する干涉縞のコントラストを求めれば、これはコヒーレンス度の関数を空間周波数に対して求めていることになり、図 2-22 (a) のような関数の形になるだろう。クロスオーバーの大きさに対してクロスオーバーとスクリーン間の距離が十分大きく、フーリエ変換の関係が成立している場合 van Cittert-Zernike の定理より、図 2-22 (a) のフーリエ変換を行ない図 2-22 (b) のような有効光源の強度分布を得ることになる。クロスオーバー、電子線バイプリズム、及びスクリーン面の位置関係がわかっており、電子線バイプリズムによる偏向角度が既知であれば、図 2-22 (b) の横軸も正しく得ることができる。例えば、 $1/e$  以上の強度を持つ部分を光源と考えて、光源の大きさ  $\sigma$  が決まる。電流量と開き角  $\Delta\omega$  については図 2-21 (b) に示す様に、Faraday cage とその開口径より直接求めればよい。この時の電流値の測定には第 2-6-1 節で述べた 2 点の注意が必要である。

この方法も写真処理が必要という点で前述と同じ不確定さを含んではいるが、有効光源の大きさのみならず強度分布がわかるという点で非常に優れた方法といえる。照射電子線の開き角を大きくし電流密度を大きくした場合、干涉縞の高い空間周波数でのコントラストの急な低下をまねき、それが有効光源を大きくすることに対応している (Pozzi et al., 1986; Ohshita et al., 1986)。

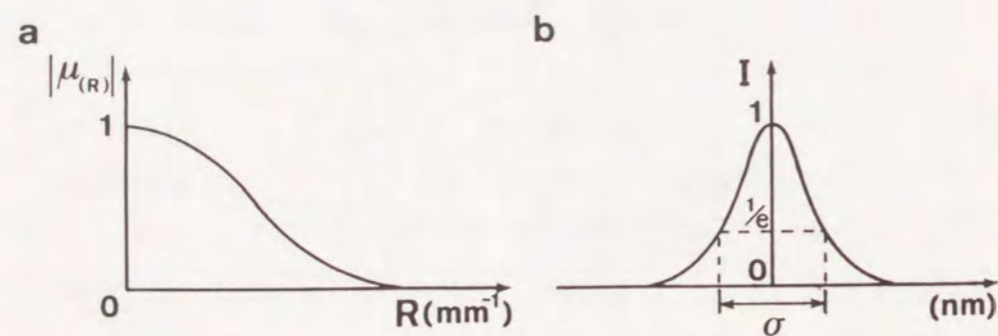


図 2-22 (a) 干涉縞のコントラストの空間周波数特性曲線  
(b) 有効光源の強度分布

## 2-7 LaB<sub>6</sub>熱電界放射陰極の輝度測定

第 2-3 節にてエミッションパターンを観察した  $\langle 310 \rangle$  LaB<sub>6</sub> tip を実際に透過型電子顕微鏡 JEM-100CX-FEG に取り付け、第 2-6-3 節に示したフレネル縞を観察する方法にて輝度を測定した。以下にその具体的な方法、結果について述べる。

### 2-7-1 JEM-100CX-FEG、電子銃部分の構造

図 2-23 (a) に JEM-100CX-FEG の電子銃、及び加速管部分の構造を示す。この装置は本来 LaB<sub>6</sub> 熱電子銃を搭載した JEM-100CX をタングステン熱電界放射型電子銃用に改造したもので、第 1 陽極が引き出し、第 3 陽極が接地電極となっており、第 2 陽極の電位を変化させることにより最も収差の少ない状態を選ぶ、Control 型加速管 (Someya et al., 1974; Kuroda et al., 1974; Kuroda and Suzuki 1975) を採用している。この加速管の優れている点は、第 2 陽極の上面に蛍光板が配置されており、運転中いつでも外部より tip のエミッションパターンを観察できる点である。これにより、エミッションパターンの形

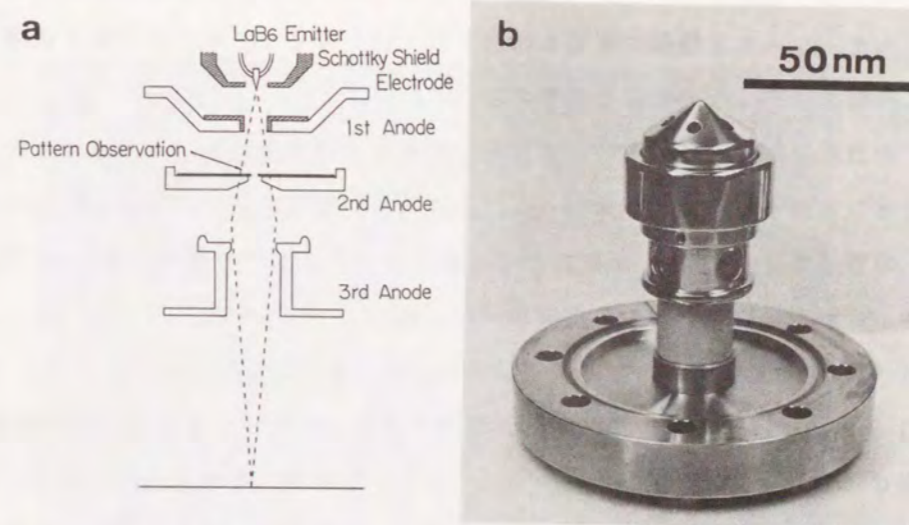


図 2-23 JEM-100CX-FEG の電子銃部分の構造  
(a) 加速管を含めた模式図、(b) 電子銃外観



状より、電子銃部への酸素導入量やそのタイミング、また tip 温度など熱電界放射に欠かせない tip 運転の総合的な判断が下せる。図 2-23 (a) 中の斜線を施した部分は、今回新たに作製したショットキーシールド電極と第 1 陽極に取り付けた絞りを示している。ショットキーシールド電極を取り付けた電子銃部分の外観は図 2-23 (b) に示す。ショットキーシールド電極は、図 2-8 と同様 LaBe 単結晶の側面からの熱電子を防ぐ目的で取り付けられたものであり、tip 先端に十分な強電界をかけるため、第 1 陽極の開口径を絞りによって小さくすると共に tip 先端と第 1 陽極との距離を 1.5 mm とした。

電子銃、加速管部分は、イオンスッターポンプによって排気されており、3 時間のベーキングの後、基礎真空度は  $5 \times 10^{-9}$  Torr に達する。また、実験中も  $2 \times 10^{-8}$  Torr 以下に保つことができた。

#### 2-7-2 実験方法

使用した JEM-100CX-FEG は加速管内での放電が発生し、tip を損傷するため加速電圧は 20 kV または 40 kV のみでしか運転できなかった。本実験では安全のため加速電圧は 20 kV とした。また、実験方法として、(1) ショットキーシールド電極に電位を印加するために加速管外側の絶縁用フロンガスの注入をやめ、鏡体外部より直接電流導入端子を通じてショットキーシールド電極に電位を印加する、(2) ショットキーシールド電極と tip とを短絡し同電位にする、の 2 通りが考えられた。

(1) の方法では加速管外側の沿面放電と思われる微小放電が絶えず観察され、安定なエミッションを得ることができなかった。このため、輝度の測定には至らなかった。

(2) の方法では、LaBe tip 側面からの熱電子が防止しきれないため、tip 温度を最適動作条件よりも低い約 800 °C での実験となった。

LaBe tip に対する移動や方位の制御機構が全く存在しないため、使用する LaBe は予め、図 2-8 のエミッションパターン観察装置にて、ショットキーシールド電極を取り付けた状態で (310) spot の 1 つが光軸上に一致していることを確認した。また、1 度大気にさらした後でもフラッシュのみで 4 回対称クリーンパターンが得られることも確認した。以上予備実験を行なった後の <310> LaBe tip を JEM-100CX-FEG に取り付けた。

#### 2-7-3 結果

図 2-24 に第 2 陽極上に観察されたエミッションパターンを示す。リング上のパターンは熱電子によるものであり、中央の 4 回対称のパターンが熱電界放射によるものである。(310) spot の 1 つが光軸と一致していることがわかる。この時の tip 温度は約 950 °C、引出し電圧 4.5 kV、エミッションパターン観察用第 2 陽極の電位は tip に対して -20.0 kV であった。

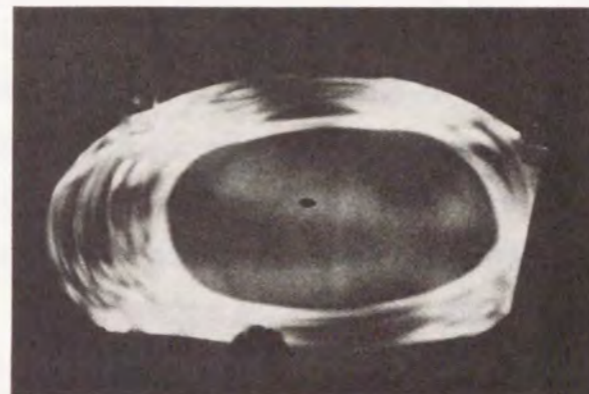


図 2-24 W 熱電界放射型電子銃のエミッションパターン



図 2-25 カーボン薄膜と金の微粒子の電子顕微鏡像

図 2-25 にこの実験方法にて撮影した電子顕微鏡像を示す。tip 温度 960 °C、引出し電圧 6.0 kV、電子銃周りの真空度  $7.5 \times 10^{-9}$  Torr であった。試料はカーボン薄膜上の金微粒子である。像中の黒点が金微粒子である。加速電圧が低いため、金微粒子でのコントラストが強いついている。電子顕微鏡内での直接拡大倍率は 2 万倍であった。加速管部分と思われる微小放電のため、エミッションが安定せず 2 万倍以上の高倍率での観察は困難であり、輝度の測定は不可能であった。

次にショットキーシールド電極と tip とを短絡させ同電位とし、加速管部分には設計通り絶縁用フロンガスを封入して実験を行なった。前回のような微小放電はなかったが、LaBe tip 側面からの熱電子を防止するために tip 温度を 800 °C としなければならず、図 2-11 で観察した (310) spot の enhancement が実験途中より観察された。図 2-26 は輝度測定のために撮影したマイクログリッドの in-focus 像、及び約 300  $\mu\text{m}$  の out-of-focus 像である。(310) spot の enhancement によるエミッションの不安定さの影響を最小限に抑えるため、直接倍率約 1 万倍、露光時間 2 秒にて撮影した。フィルムへのドーズ量は約  $10^{-11}$  c/cm<sup>2</sup> と推定される。

LaBe 熱電子銃との輝度の比較を行なうため、同様の実験を市販の <100> LaBe 熱電子銃を搭載した JEM-120C にて行なった。加速電圧 20 kV、out-of-focus 約 300  $\mu\text{m}$ 、直接倍率約 1 万倍、フィルムへのドーズ量を一致させるため、露光時間と蛍光板上の電流密度を

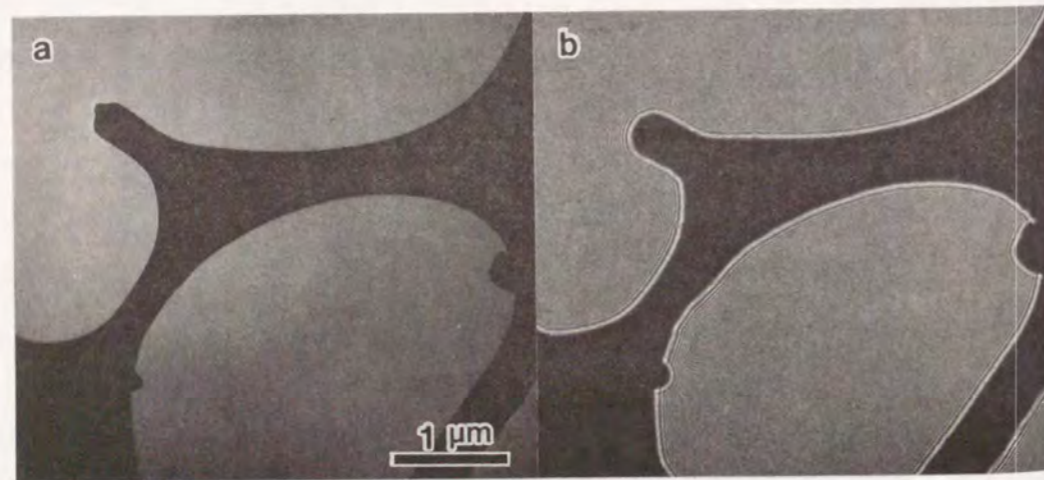


図 2-26 フレネル縞の観察 (<310> LaBe 熱電界放射、20 kV による)  
(a) in-focus 像、(b) out-of-focus 像

2 秒 5 pA/cm<sup>2</sup>、4 秒 2.5 pA/cm<sup>2</sup>、8 秒 1.2 pA/cm<sup>2</sup>、16 秒 0.6 pA/cm<sup>2</sup>、32 秒 0.3 pA/cm<sup>2</sup> の 5 種類について撮影した。この方法で輝度を測定する時、熱電子源の場合電子流密度を十分に取ると開き角が大きくなりフレネル縞が失われてしまう。また、開き角を小さくした場合、露光中の装置の不安定性のため干渉領域が小さく観察されるという欠点がある。それ故、以上の 5 種類の実験条件についてそれぞれ輝度を求め、最も大きい値を採用することとした。

図 2-27 に図 2-26 (b) の拡大像、並びに LaBe 熱電子銃にて撮影したフレネル縞を示す。(b) は 0.6 pA/cm<sup>2</sup>、16 秒にて撮影を行なったものである。(a) では干渉縞は約 70 本、試料位置での可干渉領域は  $5.4 \times 10^{-4}$  mm であるのに対して (b) では約  $1.5 \times 10^{-4}$  mm、なおかつ電流密度は 1/20 に過ぎない。以上より求めた輝度は (a)  $4.1 \times 10^6$  (A/cm<sup>2</sup>·st)、(b)  $1.4 \times 10^4$  (A/cm<sup>2</sup>·st) であった。輝度は現状で約 300 倍、熱電界放射型電子銃の方が上回っている。(b) の輝度の値が若干低いのは、加速電圧が低いことによる空間電荷効果のためと推定している。加速電圧が 100 kV まで上がれば表 2-1 に示したごとく、あと 1 桁輝度が向上すると考えられる。また、(a) ではショットキーシールド電極が確実に働き、tip 温度が 1000 °C という最適条件で運転できれば、加速電圧の向上とともに輝度の向上が望める。すなわち、LaBe 熱電界放射は熱電子放射と比較して、最低 2 桁の輝度の向上が望めると考えられる。

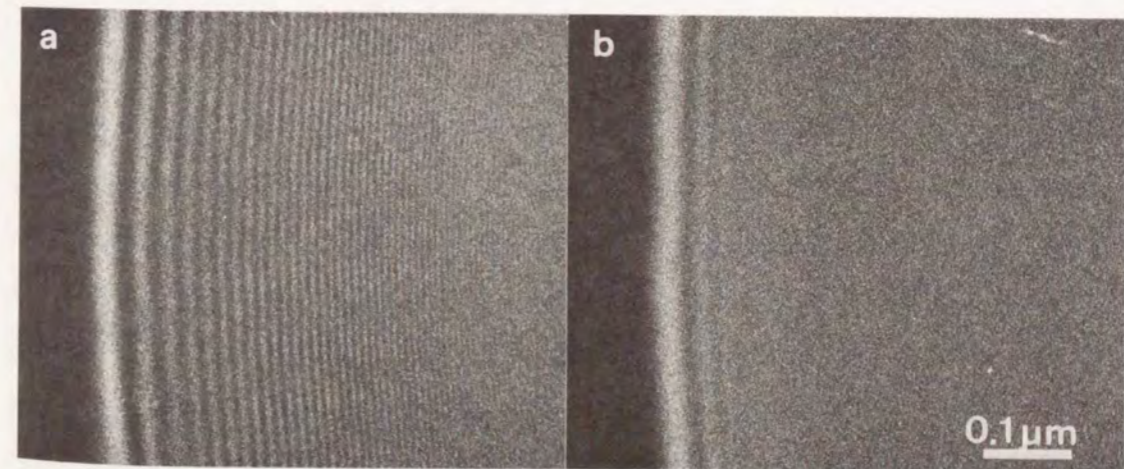


図 2-27 フレネル縞の観察 (20 kV)

(a) <310> LaBe 熱電界放射型電子銃、 $4.1 \times 10^6$  (A/cm<sup>2</sup>·st)  
(b) <100> LaBe 熱電子銃、 $1.4 \times 10^4$  (A/cm<sup>2</sup>·st)

本章では高輝度化を目的とした  $\langle 310 \rangle$  LaBe 熱電界放射型電子銃の開発と、透過型電子顕微鏡における輝度測定の方法、及び測定結果について述べた。すなわち、エミッションパターンを観察することによって LaBe 単結晶の熱電界放射特性を評価し、電子銃として安定に動作する最適条件を見いだした。さらにこの  $\langle 310 \rangle$  LaBe 熱電界放射型電子銃を実際に透過型電子顕微鏡に搭載し、通常の LaBe 熱電子銃の場合と輝度について比較を行ない約 300 倍向上していることを確認した。また、輝度を透過型電子顕微鏡で測定するのに先立ち、輝度の概念、特に電子線ホログラフィーにおいては重要と考えられる輝度と可干渉性の関係について明らかにした。

## 3-1 緒言

電子線による干渉計の作成、並びに干渉縞の観察は初め Marton (1952)、及び Marton et al. (1953) によって行なわれた振幅分割型の干渉実験であった。これは3枚の単結晶薄膜を少し間隔をあけて平行に配置し、Bragg 反射によって分割された電子線が再び次の薄膜での Bragg 反射によって元の入射方向に戻ることによって生じる干渉現象を利用したものであった。この方法では縞間隔は約 165 nm であり本数は約 150 本であった。しかし縞のコントラストは低かった。Möllenstedt and Düker (1955, 1956) は電子線バイプリズムを開発し、波面分割による電子線干渉を観察した。このときの干渉縞はコントラストも高く、干渉計として十分実用化できる可能性を含んだものであった。その後の電子線干渉の実験はほとんど皆この電子線バイプリズムを用いており、電子線ホログラフィーも技術的には全く同じものである。その意味で、電子線バイプリズムの発明は大変に大きな意義を持っている。本章では電子線バイプリズムについて、特に本研究において開発した加熱清浄型電子線バイプリズムについてその作製法、及び実際の動作特性について述べる。

## 3-2 電子線バイプリズム

電子線バイプリズムはその名の通り電子線に対してプリズムを2つ合わせたような働きをする光学機器で、光学におけるフレネルの複プリズムに相当するものである。電子線に対する有効な波面分割ビームスプリッターであり、電子線干渉の実験には必要不可欠な装置である。図 3-1 に電子線バイプリズムの構造、及び二光束干渉を起こさせる構成を示す。(a) は、フレネルの光学複プリズム、(b) は複プリズムと同様の干渉を起こさせるフレネルの二枚鏡、(c) 及び (d) は、静電型及び磁界型電子線バイプリズムを表わす。電子線を屈折させるために静電型では中央の極細線に正の電荷を与え、磁界型では磁気四極子を用いて反平行な一組の磁界を作り出している。簡単な幾何学的な作図より観察面での干渉縞の間隔  $l$  は、 $\lambda$  を波長として

$$l = \frac{(a+b)\lambda}{d} \quad (3-1)$$

で与えられる。ここで  $a$  は光源より電子線バイプリズムまでの距離、 $b$  は電子線バイプリズムより観察面までの距離、 $d$  は虚光源間の距離である。コントラストのよい縞を得るには虚光源の大きさが小さくしなければならないことは明かである。

電子線バイプリズムは光学プリズムで言えばプリズムの頂角を連続的に変化させることができ、それによって干涉縞間隔も干涉領域も任意に変化させることができる。

静電型電子線バイプリズムは、非常に細い中央の一本の極細線電極（以下フィラメントという）とこれに平行に配置した両側の接地電極からなっている。フィラメントの近傍では電界が強く、入射電子線に対する屈折力は大きいとその作用している範囲は短い。フィラメントより遠方に離れるほど屈折力は弱まるが作用している範囲が大きくなるので、全体としての偏向角度は場所によらずほぼ一定である。これは後に簡単に示す。また、この結果干涉縞の間隔が等間隔になるが、これは Möllenstedt and Düker (1956) らによって実験的に確かめられている。実際の干涉縞にはフィラメントの端で回折を受けた電子線に

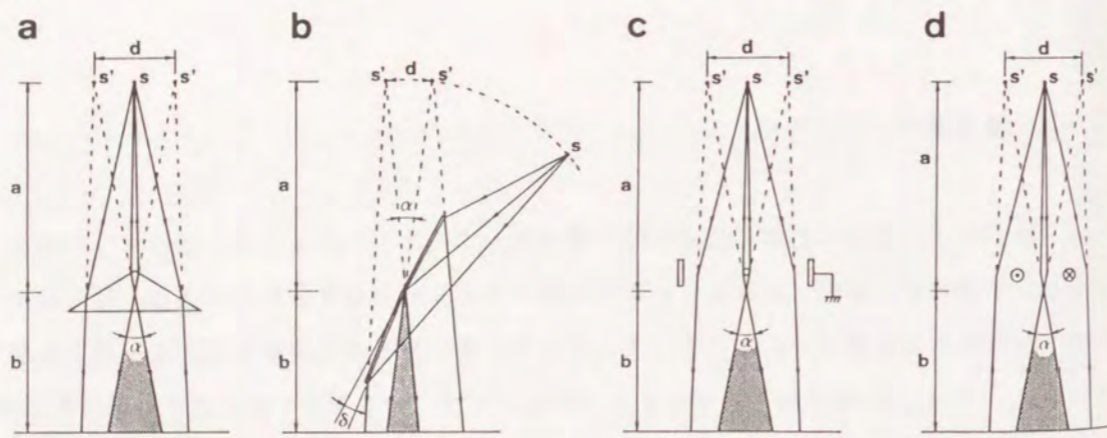


図 3-1 波面分割型二光束干涉の光学系  
 (a) フレネルの複プリズム  
 (b) フレネルの二枚鏡  
 (c) 静電型電子線バイプリズム  
 (d) 磁界型電子線バイプリズム

よるフレネル縞が重畳される。このフレネル縞は空間周波数も低くホログラムを再生する際に振幅分布、位相分布のいずれに対してもノイズとなるためなるべく存在しないほうが望ましい。

磁界型電子線バイプリズムはフィラメントを用いる必要がないという利点を持つが、中心部は磁場が相殺されて弱くなるため屈折を受けない電子線が存在する。つまりプリズムを少し離して2つ配置したような光学系に対応しており、干涉縞は3波干涉特有の複雑なものとなり解析が困難となる。磁場の弱くなった部分をスリットで覆ったものも作製されたがこれはせっかくの利点を全く生かしておらず現在では磁界型電子線バイプリズムはほとんど利用されていない。

### 3-3 電子線バイプリズムの屈折効果

電子線バイプリズムによる電子線の偏向を求めてみる。図 3-2 のような静電型電子線バイプリズムを考える。接地電極に垂直に  $x$  軸、平行に  $z$  軸をとり、電子は  $z$  軸に平行に入射するものとする。フィラメントの半径を  $r_f$ 、フィラメントと両側の接地電極間の距離を  $L$  とし、フィラメントに電圧  $V_f$  を印加する。フィラメントの電荷分布を一様で電界は回転対称（回転不変性）であるとする。フィラメントからの

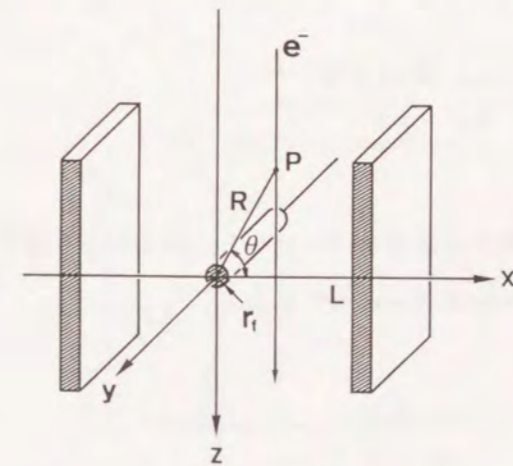


図 3-2 電子線偏向の原理

距離  $R$  の位置での電位  $V(R)$  は

$$V(R) = V_f \frac{\ln \frac{R}{L}}{\ln \frac{r_f}{L}} \quad (3-2)$$

で与えられる。

フィラメントに印加される電圧はせいぜい数 100 V であるのに対して電子線の持っているエネルギーは我々の実験では 80 keV から 400 keV であり、いずれにしても電子線バイプリズムによって曲げられる角度は極めて小さいものでしかない。従って近似的に、バイプリズムに入射する電子が受ける  $z$  方向の力はフィラメントの通過前後で相殺されてしまおうと考え  $x$  軸方向のみに働く力を考える。点  $P$  で電子に働く力の  $x$  軸方向成分  $f_x(R)$  は、

$$f_x(R) = \frac{eV_f}{\ln \frac{r_f}{L}} \frac{\cos \theta}{R} \quad (3-3)$$

である。このような電界中を電子が通過したときに電子が受ける  $x$  軸方向の運動量変化を  $\Delta P$  を力積 ( $\int f_x dt$ ) として求めると

$$\Delta P = \int f_x dt = \frac{eV_f}{V_0 \ln \frac{r_f}{L}} \pi \quad (3-4)$$

である。ここで入射電子の速度を  $V_0$  とした。以上により電子が偏向させられる角度  $\xi$  は電子の運動エネルギーを  $E_{kin}$  とすると、

$$\xi \doteq \frac{\Delta P}{mV_0} = \frac{\pi e}{2E_{kin} \ln \frac{r_f}{L}} V_f = \psi V_f \quad (3-5)$$

で表わされる。これより、電子線バイプリズムにより電子線が偏向させられる角度は入射位置によらず一定と近似できることがわかる。偏向角  $\xi$  はフィラメントへの印加電圧  $V_f$  に比例し、電子線の加速電圧に反比例する。フィラメントへの印加電圧に対する電子線の偏向角度  $\psi$  は、フィラメント径やフィラメントと接地電極間の距離など電子線バイプリズムの大きさや形状で変わるが、一般的に実験に用いられているものでは加速電圧 100 kV の電子顕微鏡において  $\psi = 2 \times 10^{-6}$  rad/V 程度の値をとる。

### 3-4 電子線ホログラムの干渉縞間隔及び干渉領域について

低倍率での電子線ホログラフィー、干渉領域を大きくとったホログラフィー、対物レンズの磁場が試料に与える影響を除いた観察方法など、特別の目的以外の場合一般に電子線ホログラフィーはイメージホログラフィーとして、対物レンズと像面との間に電子線バイプリズムを配置する光学系にて行なわれる。図 3-3 にその光学系を示す。この場合、フィラメントには正の電位を与え、電子線バイプリズム後方でフィラメントの左右を通過した電子線がオーバーラップした領域に干渉縞が形成される。この時フィラメントの片側に試料で散乱を受けた電子線、他方に真空中を透過した電子線が来るように、試料と電子線バイプリズムとの位置関係を選ぶと像面にてイメージホログラムが形成される。現実にはさ

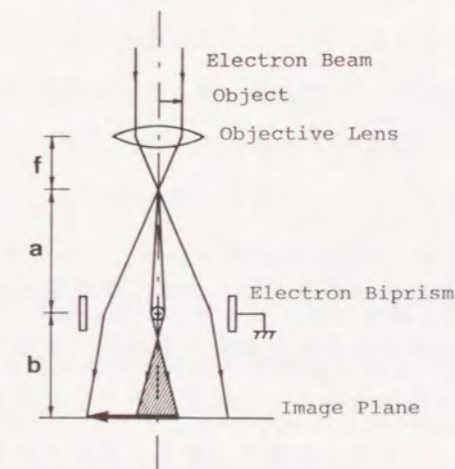


図 3-3 電子線バイプリズムとその光学系

らに下段の中間レンズ、投影レンズにて拡大されてフィルム上に記録されホログラムとなる。

図 3-1 での光源が、対物レンズの後側焦点面に対応していることを考えると、対物レンズのガウス像面に形成される干涉縞の間隔は、

$$l = \frac{(a+b)\lambda}{2\psi V_r a} \quad (3-6)$$

で表わされる。ここで虚光源間の距離  $d$  は  $d=2\psi V_r a$  で近似した。対物レンズでの試料の拡大倍率  $M$  を、対物レンズの焦点距離を  $f$  として、

$$M = \frac{a+b}{f} \quad (3-7)$$

で表わし、これより、試料面上に換算した干涉縞の間隔

$$l_{obj} = \frac{f\lambda}{2\psi V_r a} \quad (3-8)$$

を得る。この式が妥当なものであることは実験的にも確認されている。

また、このホログラムの幅  $\Delta$ 、すなわち干涉領域は、フィラメントの半径を  $r_f$  として

$$\Delta = \frac{2bf\psi V_r}{a+b} - 2r_f \frac{f}{a} \quad (3-9)$$

で与えられる。

以上のように、電子線ホログラムの干涉縞の間隔や干涉領域、すなわちホログラムより再生できる振幅、位相分布の空間周波数及び再生できる大きさは電子線バイプリズムの位置とフィラメントへの印加電圧により任意に選ぶことができる。逆に、干涉縞の間隔や干涉領域より電子線バイプリズムの電子光学系における位置を決めることができる。しかしながら、これはフィラメント径や倍率をその時々において正確に知ることができない等の

理由から1枚のホログラムから求めることは難しく、干涉縞形成のシミュレーションによりフィラメントへの印加電圧を変化させたときの干涉縞の変化、及びフィラメント端からのフレネル縞の変化の様子より推定する方が妥当である。

### 3-5 電子線バイプリズム中央極細線電極作製法

静電型電子線バイプリズムは、フィラメントに正または負の電圧を印加しフィラメントの左右を通る電子線を偏向させて使用する。フィラメントを正とするか負とするかは電子線バイプリズムの電子顕微鏡光学系における位置によって決まる。いずれにせよ、フィラメントの左右を通った電子線を重ね合わせて、そこに形成される干涉縞をホログラムとすることに代わりはない。電子線の可干涉領域は電界放射型電子銃を光源に用いた場合でも試料面上で約  $100 \mu\text{m}$  と極めて小さいものでしかなく、コントラストの高い良好なホログラムを記録するためには、なるべく可干涉性のよい近傍の部分波同士を重ね合わせた方が望ましい。そのため、フィラメントには線径の小さいものを選ばねばならない。また、式 (3-9) より、干涉領域を大きく取り大きなホログラムを記録するためにもフィラメント径は小さい方が望ましい。

静電型電子線バイプリズムが発明された当初は石英ガラスのみならず、タングステン線やクモの糸なども試みられたが、今日では一般に石英ガラスから作られた極細線に金を蒸着したものが用いられている。その線径は細いもので  $0.3 \mu\text{m}\phi$  程度である。石英ガラスを用いる利点は、安価である上にかなりの長さにより均一な太さになっていることや極細線の断面が円形に近くかつ表面が滑らかなために理想に近い円筒電界が形成できること、などが挙げられる。しかしながら、金の蒸着が不十分なところは、フィラメントのチャージアップのため電子線バイプリズムとして使用できなくなることもある。また、実験中に付着する汚れもチャージアップを引き起こすので電界放射型電子銃を使用する真空度の良い電子顕微鏡であっても、数週間で新しいフィラメントとの交換が必要となる。通常の電子顕微鏡ではこのフィラメントの汚染が実用に際して問題となる。この問題をフィラメントに白金極細線を用い通電加熱を行なうことによって解決した (Harada et al., 1988)。ここでは、石英ガラスを用いたフィラメントの作製法、並びに白金極細線の取り扱い方法 (原田, 1990) について述べる。

### 3-5-1 石英ガラス極細線取扱法

石英ガラスはその軟化する温度が 1600 °C 以上と高く、通常のガスバーナーでは極細線化を行なうのは無理である。酸素、水素バーナーによる約 3000 °C の炎を用いるのが最も作業を容易にするが、本研究においては、都市ガスに酸素を供給するバーナーを用いた。図 3-4 はその取り扱いを表わしており、手順は以下の通りである。

(1) 2本の石英ガラスを接触させながらガスバーナーの炎であぶる。(2) 2本の接点が赤熱し軟化した時点で強く引き離す。この時両方の接点より極細線が生じガスバーナーの炎で生じる上向きの空気の流れに乗って石英ガラス棒より上方に存在する。(3)、(4) これをフォークにて慎重に移し取る。ガラス線は繊維状になっているのでフォークに巻き取ることが可能である。(5) フォークから電子線バイプリズムに移し換え、導電性接着剤で固定する。(6) バイプリズムの裏、表より金を真空蒸着しフィラメントに導電性をもたせる。うまく作れば極細線は直径が 1  $\mu\text{m}\phi$  以下となっているので直接照明しても見ることはできない。直接見える線は 2  $\mu\text{m}\phi$  以上のものであるから作り直した方がよい。作業を行なう部屋を暗室化し、斜め後方より手元、及び石英ガラスを照明する、いわゆる暗視野法によって観察すれば 0.5  $\mu\text{m}\phi$  程度の極細線まで肉眼で選出できる。

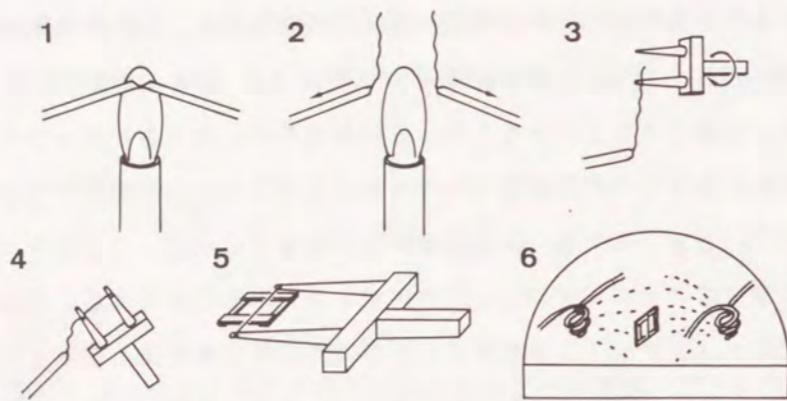


図 3-4 石英ガラス極細線取り扱い法

図 3-5 は、上記方法によって得られた石英ガラス極細線の透過電子顕微鏡像である。極細線がシルエット状になって得られているだけであるため詳細はわからないが、複数の細線が互いに絡み合っているのか、または細線が枝分かれしている。明確な原因についてはよくわからないが、ガスバーナーの炎の中で石英ガラスを引き離した際に複数本のガラス繊維が発生しそのまま絡み合ったものか、または炎に温度むらがあり、それが石英ガラスの極細線化のサイズに影響を与えていると推測している。いずれにせよ、図 3-5 の様な細線では電子線バイプリズム用フィラメントとしての実用化は不可能である。注意深く 1本の細線を選び出さねばならない。図 3-5 中の最も細い線の直径は 0.35  $\mu\text{m}\phi$  でありこの線を単離することができれば、有効な電子線バイプリズムフィラメントとして使用することができる。しかし、単離できた石英ガラス線はほとんどが直径 1.5  $\mu\text{m}\phi$  程度のもので、電子線バイプリズムフィラメントとしては太すぎた。これはやはりガスバーナーの炎の温度が低いためと考えている。

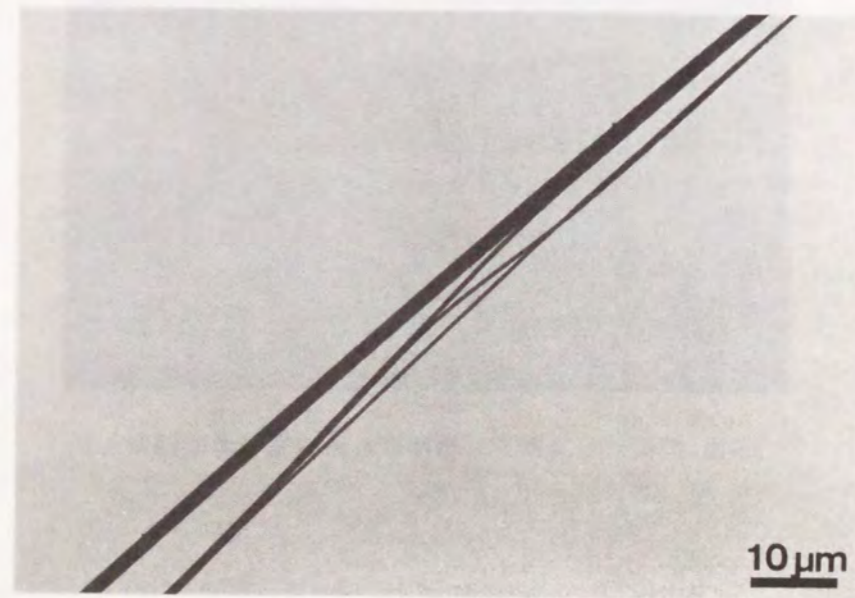


図 3-5 石英ガラス極細線の透過電子顕微鏡像

図 3-6 は、上述の方法によって作製した、フィラメントの走査電子顕微鏡像である。フィラメントの右側は金の蒸着膜を取り除いてある。石英ガラス線の線径は約  $1.4 \mu\text{m}$ 、金蒸着後の線径は約  $2.3 \mu\text{m}$  である。金の蒸着速度が早すぎたためか蒸着量が多すぎたためか金は粒状になってガラス線表面を覆っており、せつかくのガラス線表面の持つ滑らかさが失われている。これはまたフィラメント表面の汚染とも関係しているようである。ランプアニールなどの方法により石英ガラスを加熱しながらの蒸着が必要なようである。

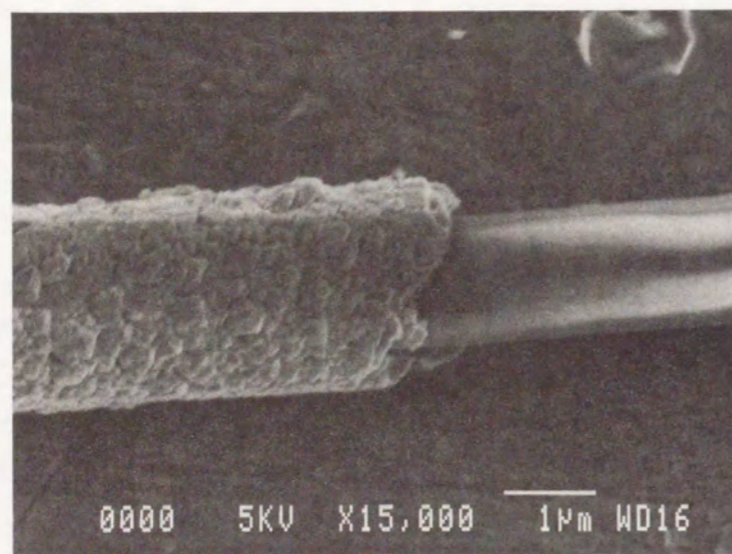


図 3-6 石英ガラス極細線の走査電子顕微鏡像

### 3-5-2 石英ガラスフィラメントによる干渉縞の作製

図 3-6 に示したフィラメントを用いて予備実験として干渉縞の観察を行なった。通常の電子線ホログラフィーでは電子線バイプリズムは図 3-3 に示したように対物レンズとガウス像面の間に配置されるが、この実験ではコンデンサーレンズと対物レンズの間に配置した。これは電子顕微鏡の鏡筒内蒸着装置 (Harada et al., 1987) を利用したためにこのような光学系になったものである。図 3-7 に電子線バイプリズムの模式図を示す。

真空を保ちながら電氣的に他の鏡体の部分より浮くようにした rod の先端に電子線バイプリズムを取り付けた、石英ガラス線は rod の軸に対してわずかながら角度をもたせてあり、この rod を前後及び回転させることによって石英ガラス線の任意の部分を光軸上に持って来ることができる。このバイプリズムは対物レンズのかなり上部であるため、通常の試料位置に生じているであろう干渉縞を、対物、中間、投影の各レンズを通して結像し観察することになる。

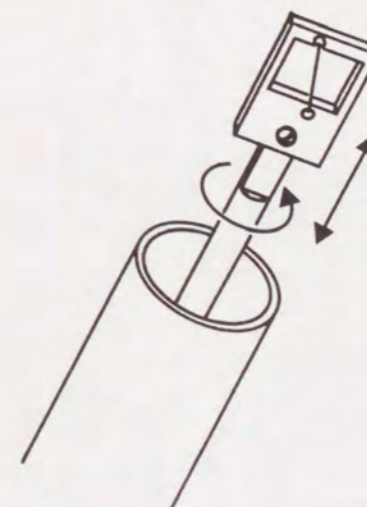


図 3-7 電子線バイプリズム



図 3-8 に得られた干渉縞を示す。これは最も始めに得られた干渉縞である。使用した電子顕微鏡は JEM-200CX、LaB<sub>6</sub> 熱電子銃搭載のものである。電子線の偏向角度を大きく取るため加速電圧は 100 kV にて実験を行なった。それでもフィラメントの線径が太いため、並びに接地電極が存在せずパイプリズム全体が正の電位になるため、フィラメント左右を通過した電子線を重ね合わせるために 60 V 近いフィラメント印加電圧を必要とした。電子線の可干渉性の欠如により干渉縞のコントラストはかなり低いものとなっている。また、フィラメント端が滑らかでないためここで回折を受けた電子線によるフレネル縞も滑らかではなくなっている。このフィラメントは 2 時間の実験のうちかなり汚染されてしまった。

この石英ガラスフィラメントの欠点は、(1) 線径が大きい、(2) 金の蒸着によりフィラメント表面に凹凸が生じる、(3) フィラメント汚染に対する対策がない、などが上げられる。このうち (1) と (2) は技術的にすぐにも解決が可能と思われるが、(3) は金を蒸着膜として使用している限り困難と思われる。以後、金属細線の使用を試みることにした。

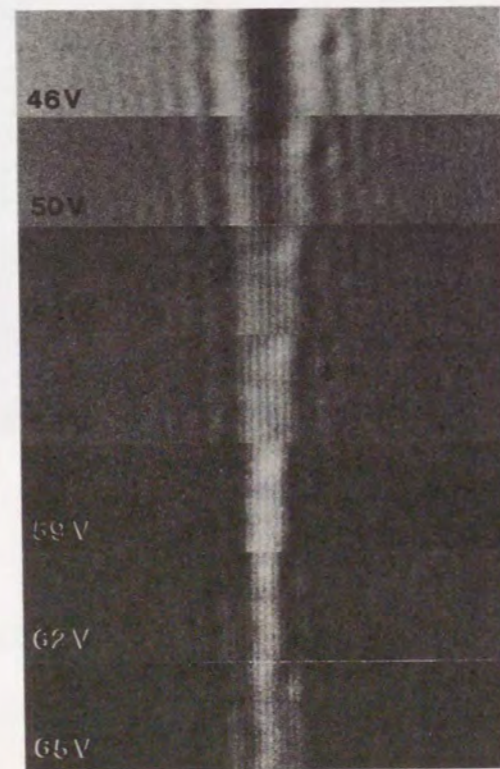


図 3-8 電子線パイプリズム (図 3-7) により作製された干渉縞

### 3-5-3 白金極細線取扱法

電子線パイプリズム用金属フィラメントは線径が  $1 \mu\text{m}\phi$  以下であると同時に対腐食性などに優れ、改めて金などによるコーティングを必要としない物がよい。以上の条件より材料を選定すると、一般に市販されているものとしては白金極細線しか見当たらなかった。

一般に直径  $5 \mu\text{m}\phi$  以下の白金極細線は、Wollaston 法によって作成される。これは銀の筒に白金線を差し込んだ複合線をダイスで伸線し、十分に細くしてから銀を溶解して白金極細線を得るというもので、銀を被覆した状態で市販されている。この方法を複合線に対して繰り返せば極めて細くでき、最小径は  $8 \mu\text{m}\phi$  が報告されている (Sacharoff et al., 1985)。この Wollaston wire を電子線パイプリズムに使用した例としては、Matteucci (1978), Ohshita et al. (1984) によるものがある。Matteucci は直径  $0.25 \mu\text{m}\phi$  の白金極細線を処理し、また Ohshita et al. は直径  $2.5 \mu\text{m}\phi$  の白金極細線を Ion Thinning 装置にて極細化し、部分的に  $0.15 \mu\text{m}\phi$  の極細線を得ている。本研究では通電加熱によるフィラメントの汚染対策が目的であるため、なるべく均一な直径を持つ白金極細線が望ましく市販されている中では最も細い  $0.6 \mu\text{m}\phi$  のものを使用した。図 3-9 は本研究で行なった白金極細線の取り扱い方法を示しており、その手順は以下の通り

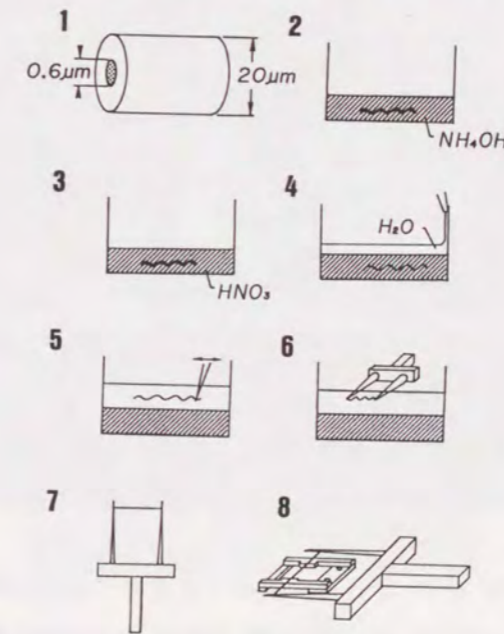


図 3-9 白金極細線取扱方法

である。(1) Wollaston wire の模式図、(2) 銀被覆表面に生じている酸化銀を除くため、アンモニア水にて 30 分ほど処理を行なう。この時、過酸化水素水を加えると処理時間を短縮できるが、発生した気泡が白金極細線を破断することがある。なお、硝酸で処理できない酸化銀薄膜も以下の (5) の過程で白金極細線と分離できるためこの過程は必ずしも必要ない。(3) 銀被膜除去のため硝酸にて 30 分から 1 時間処理を行なう。(4) 処理液が硝酸と水の二相に分離した状態となるように静かに水をそそぎ込む。この過程では酸に水をそそぎ込むので極めて慎重な取り扱いを要する。(5) 白金極細線を水の相に引き上げ、硝酸処理後の残存している酸化銀薄膜と分離する。(6) フォークを用いて処理液より白金極細線をすくい上げる。ここが最も注意を要する過程である。(7) 白金極細線を一旦フォークに保持する。(8) フォークから電子線バイプリズムに移し変え、導電性接着剤で固定する。以上の取扱いは全て室温で行なっている。白金極細線は非常に切れ易く、全過程にわたって細心の注意が必要である。図 3-10 は図 3-9 の手順 (5) の洗浄を省略した白金

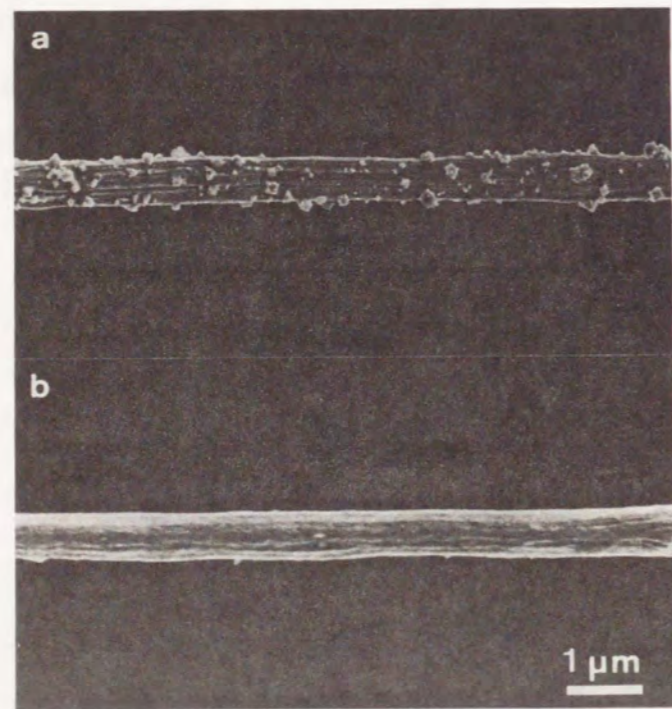


図 3-10 白金極細線の走査電子顕微鏡像  
(a) 図 3-9 手順 (5) の水洗を省略した白金極細線  
(b) 洗浄を行なった白金極細線

極細線と、洗浄を行なった白金極細線の走査電子顕微鏡像である。白金極細線表面に付着しているのは硝酸銀の微結晶であり、表面の線状の傷はダイスによる伸線時に生じたものと思われる。洗浄により硝酸銀微結晶が取り除かれているのがわかる。これらの微結晶は通電加熱によりある程度除去できるが、本質的にない方が望ましく可能な限り洗浄は十分に行なう方法がよい。

#### 3-5-4 加熱清浄型電子線バイプリズム

電子線バイプリズムのフィラメント汚染を防ぎ、かつまたフィラメントに付着した汚れを除去するため、フィラメントに金属極細線を用い、これを通電加熱できる加熱清浄型電子線バイプリズムを開発した。その模式図並びに外観を図 3-11 に示す。

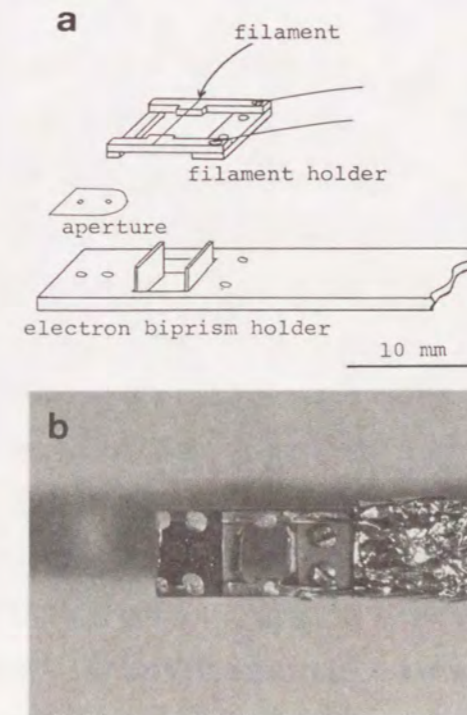


図 3-11 加熱清浄型電子線バイプリズム  
(a) 模式図, (b) 外観図

通電を要するため通常の電子線バイプリズムと異なり、2本の電流導入端子を必要とした。また、フィラメントホルダーを金属で一体構造とすることができず、フィラメントの両端をステンレス板 (SUS304) に導電性接着剤で固定し、このステンレス板と絶縁体アクリル板を井桁に組んだ構造とした。フィラメントの両側の接地電極は図 3-8 の実験結果でも明らかなように、フィラメントに高電圧さえ印加できれば必ずしも必要ない。しかしながら、この加熱清浄型電子線バイプリズムでは絶縁体部分がチャージアップすることが予想されるため接地電極を取り付けた。この加熱清浄型電子線バイプリズムは制限視野絞りホルダーに取り付けるため、本来の制限視野絞りとしても使用できるよう絞り箔も取り付けてある。図 3-11 (b) 外観図の方では、電流導入線の絶縁被覆のチャージアップを防ぐためアルミホイルにて覆っている。しかし、このアルミホイルによるカバーは本研究におけるレベルでは必要ないものであった。

### 3-5-5 通電加熱

Wollaston wire より作製された電子線バイプリズムフィラメントには、作製直後から硝酸銀微結晶、微小酸化銀被膜、銀-白金合金相などがわずかながら付着していることが予想される。その上、実験中には電圧が印加されており、電子顕微鏡内においても新たな汚染にさらされることとなる。また、白金極細線の形状は、表面の線状の傷のため理想的な円筒形にはなっていないと考えられる。図 3-12 は透過型、及び走査型電子顕微鏡による通電加熱前後のフィラメントの同一部分の観察像である。(a) は透過電子顕微鏡像である。フィラメント像周辺フレネル縞の乱れなどから、既に汚染が進んでいることがわかる。(b) は走査電子顕微鏡像であるが、透過電子顕微鏡像でのフレネル縞の乱れた部分に対応して汚染の付着していることがわかる。(c) は透過型電子顕微鏡内で2分間通電加熱した後の走査電子顕微鏡像である。加熱温度は 600 °C 程度と推定している。加熱の結果付着した汚染のみならず、フィラメント表面の傷も消えて滑らかになり、線径もわずかながら減少している。この線径の減少は2回目以降の加熱ではほとんど観察されないことから、フィラメント表面の銀-白金合金相が蒸発したためと推定される。

図 3-13 に透過型電子顕微鏡 (JEM-200CX) 内での通電加熱によるフィラメントの変化の様子を示す。(a) は加熱前でフィラメントのあちらこちらに微少な汚染の付着しているこ

とがわかる。図の右側のフィラメントが細く観察されているところは、かなり大きな汚れが付着し、かつそれが 200 kV の電子線に照射されることによって正に帯電していると考えられる。チャージアップした汚れの作る電界によって偏向させられた電子線が重なり合い、他の部分より細く観察されている。細くなったと見えるフィラメントの陰の部分ではフレネル縞以外に干渉縞が形成されている。(b) は2分間の加熱を行なった後のフィラメント像で、フィラメントの微少な汚れの数が減少し右側の大きな汚れの帯電量も減少している。帯電量の減少は電子線の偏向角度の減少に現われるため、フィラメント像が (a) と比べて若干太くなって観察される他、干渉縞の間隔が大きくなっている。(c) は、4分間

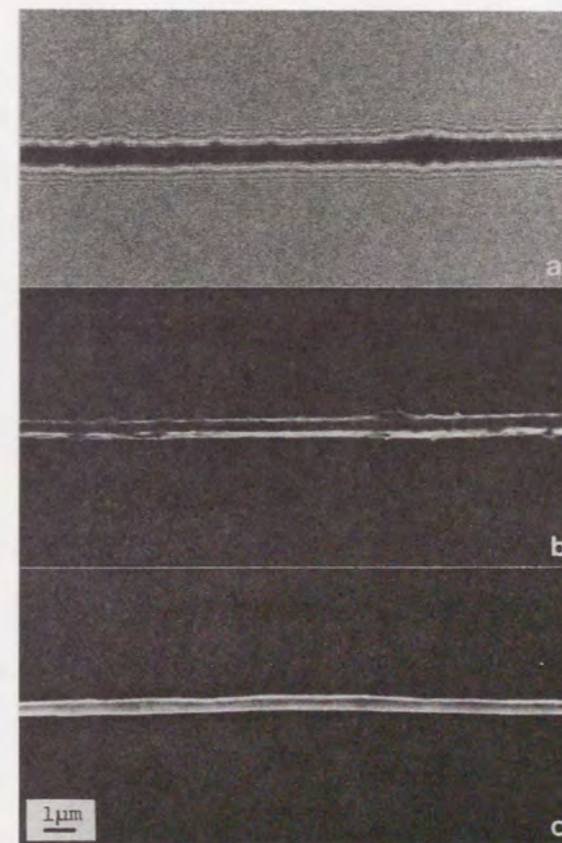


図 3-12 通電加熱後の白金フィラメントの観察像

- (a) 加熱前の TEM 像
- (b) 加熱前の SEM 像
- (c) 加熱後の SEM 像

の加熱後の像で微少な汚れはほとんどなくなり大きな汚れについてもかなり改善がみられる。フィラメント像の太さ、干渉縞の間隔を図 3-13 (a)、(b) で比較すれば汚れが正に帯電していたことが明かである。電子顕微鏡内での微少な汚れによるチャージアップは通常正に帯電するといわれていたが、これを直接観察したことになった。以上、フィラメントの通電加熱は付着した汚れの除去のみならず、フィラメントの形状、線径に与える影響などから電子線ホログラフィーにとって極めて有効な方法であることがわかる。また、この方法は、付着した汚れを除去できるだけでなく、安定な電源を用いることによって観察中も加熱を続け、汚染そのものを防ぐことができることを確認している。

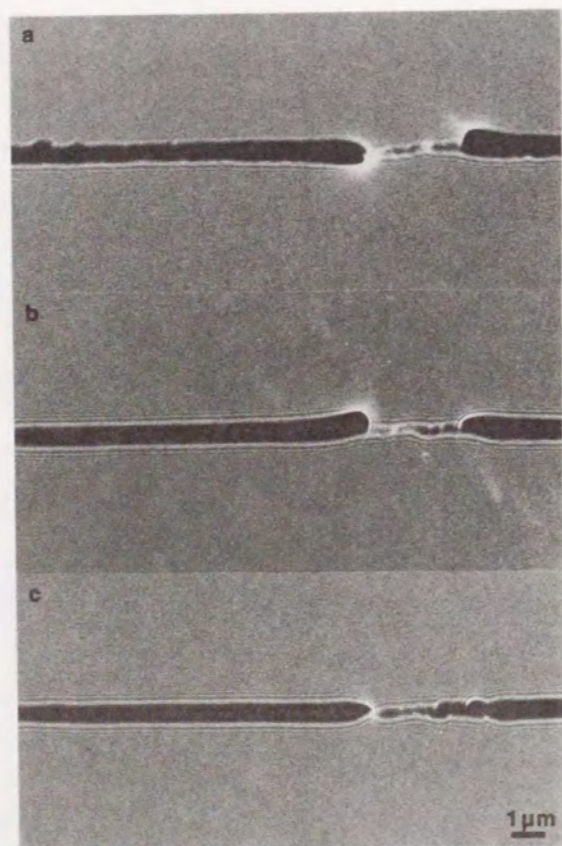


図 3-13 透過型電子顕微鏡内での通電加熱によるフィラメント像の変化  
 (a) 加熱前  
 (b) 600 °C 加熱 2 分後  
 (c) 600 °C 加熱 4 分後

### 3-5-6 白金フィラメントによる干渉縞の作製

図 3-14 はフィラメントに印加する電圧を変化させたときの干渉縞の変化と電子線バイプリズムによる電子線の偏向角度の変化を示す回折像である。印加電圧 0 V の時に観察される干渉縞は、電子線バイプリズムのフィラメントの端で散乱された電子線とそのまま散乱を受けずに透過した電子線の干渉によるフレネル干渉縞である。したがって電子線バイプリズムの陰の部分にもまわり込んだ電子による干渉縞がみられる。フィラメントへの印

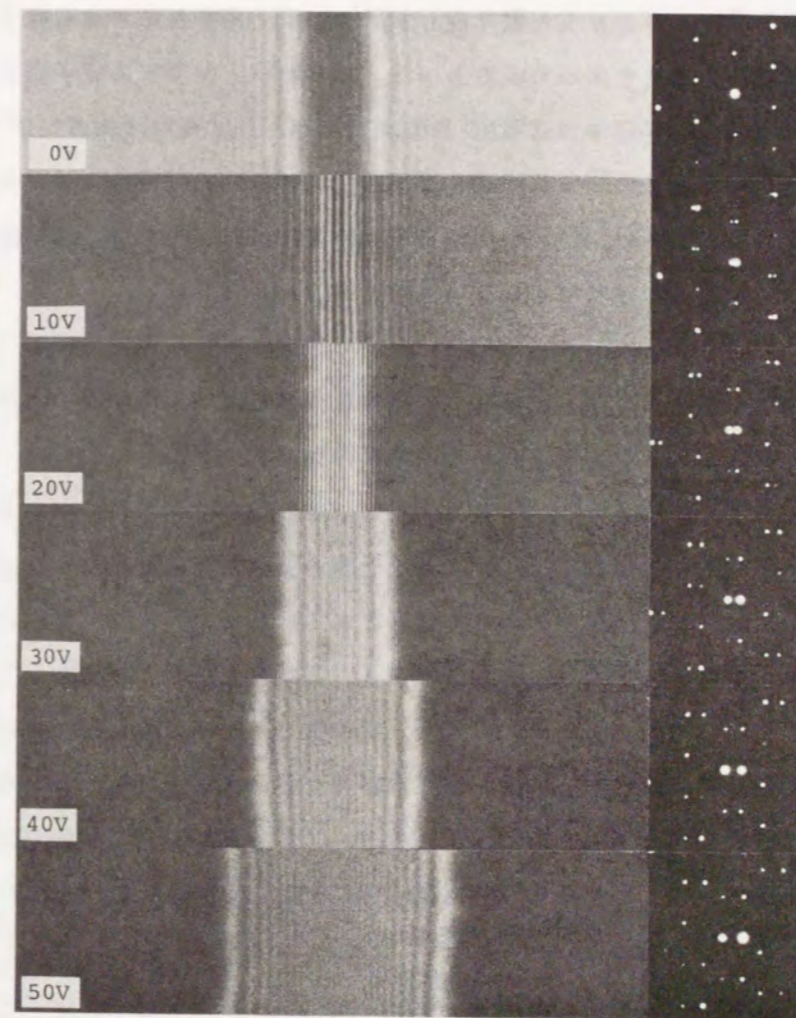


図 3-14 電子線バイプリズムフィラメントへの印加電圧の変化に伴う干渉縞の変化と電子線の偏向を示す回折像

加電圧を大きくするほど、電子線の偏向角度は大きくなり干渉縞の間隔は狭くなる。また、干渉縞の本数、干渉領域は増大する。これらは第3-5節において示した通りである。印加電圧が20Vを越えると、フレネル縞が干渉縞に重なり長周期縞として観察される。このフレネル縞は、ホログラムの記録、再生時には再生像に対してノイズとなるものであるため、フレネル縞が大きなコントラストを持たなくなる。例えば印加電圧60Vのときの干渉領域の中程でホログラムを形成するのが望ましい。しかしながら、電子銃の輝度の不足により、印加電圧50V以上では良好なS/N比の大きいホログラムを記録することは困難であった。有効に使用できるホログラムは印加電圧30~50Vの時のものであった。ただし、これらの値や、干渉縞に対する様子も電子線バイプリズムを新たに作り直した場合、厳密には白金線フィラメントを張り直した場合には、光学系における電子線バイプリズムの位置が異なるため変化するものであった。とりわけ、使用する電子顕微鏡を変更した場合、例えば、JEM-4000EX(加速電圧400kV)、JEM-100C-FEG(加速電圧80kV)では電子線の波長も変化するため、それぞれの電子顕微鏡において適当なフィラメント印加電圧を見つけなければならない。これらについては後節に示す。また、これは観察しようとする試料によっても変えなければならない実験条件でもある。

回折像はPashley法(Pashley, 1965)によって作製した金薄膜の<110>入射条件により得られたもので、フィラメントの両側を金薄膜を透過した電子線が通るように、試料と電子線バイプリズムの位置を調整した。その結果回折パターンの中の各々のスポットがフィラメントへの印加電圧に応じて2つに分離し、互いに離れていくのが良くわかる。この回折像より、フィラメントへの印加電圧に対する電子線の偏向角度の測定を行なった。電子線バイプリズムは対物レンズの像面の近くに配置されていること、また、回折像は中間レンズの後側焦点面を観察していることを考慮すると、試料の回折像には対物レンズの拡大により散乱角度が減少して現われるのに対して、電子線バイプリズムによる偏向角度は直接中間レンズの回折像に現われる。このため、本研究においては(002)spotを用いて、電子線バイプリズムに対する実効的なカメラ長を求め、印加電圧1V当りの偏向角度を求めた。実測したところ対物レンズの拡大倍率はJEM-200CXの場合約50倍であった。

Bragg角;  $2\theta_{002} = 1.23 \times 10^{-2}$  (rad)

カメラ長;  $L = 668.8$  (mm)

実効的なカメラ長;  $L' = L \times 50 = 33440$  (mm)

表3-1に各々のフィラメント印加電圧での、印加電圧1V当りの偏向角度を示した。平均値として $1.1 \times 10^{-6}$  (rad/V)が妥当なところではないかと考える。これは電子線バイプリズム設計時に式(3-5)より推定していた値 $1.0 \times 10^{-6}$  (rad/V)とよい一致を得ている。ただし、この時フィラメント半径 $r_f = 0.3 \times 10^{-3}$  mm、フィラメントと接地電極間距離 $L = 1.5$  mm、加速電圧 $E = 200$  kVとした。以上より、作製した電子線バイプリズムは設計通りの性能を持ち合わせていると考えられる。

表 3-1 フィラメント印加電圧 1 V 当りの偏向角度

印加電圧 V (V)	分離スポット間距離 $r'$ (mm)	偏向角度 $2\xi = \frac{r'}{L'} (x 10^{-5} \text{ rad})$	1 V 当りの偏向角度 $\frac{\xi}{V} (x 10^{-6} \text{ rad/V})$
10	0.80	2.39	1.20
20	1.34	4.01	1.00
30	2.08	6.22	1.04
40	2.90	8.67	1.08
50	3.44	10.29	1.03

図 3-15 は二重露光によりフィラメントへの印加電圧 0 V と 50 V の時の回折像を1枚のネガに記録したものである。例えば (200) spot の分離の様子より、フィラメント左右の電子線の偏向角度が等しくないことがわかる。これは、両接地電極が平行になっていない、またはフィラメントが接地電極に対して平行に張られていないなど電子線パイプリーム作製時の作製精度に起因するものと考えられる。このように回折像よりパイプリームの作製精度を評価できる可能性がある。しかしながら、観察される干渉縞の間隔はフィラメントの左右を通過した両電子線の相対的角度で定まるものであり、上述の通りこれは、計算値とよい一致をしている。従ってこの程度の作製精度の悪さはホログラム自体に大きな影響を与えるものではないと考えられる。

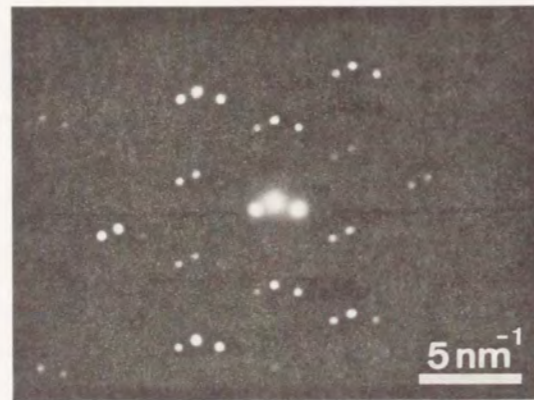


図 3-15 電子線の偏向を示す二重露光回折像

### 3-6 電子線の非対称偏向によるホログラムの変化の観察

本研究において開発した加熱清浄型電子線パイプリズムでは、電極端子が2本真空中へ導入されており、フィラメントへの電圧印加以外に1電極を別の用途に使用することができる。前述の通電加熱もその1例であるが、もう1例として、電子線パイプリズムの接地電極を偏向板として使用することを試みた。すなわち、一方の接地電極を電氣的に電子線パイプリズム本体より独立させ、これに正または負の電位を与えることによってフィラメントの両側を通過する電子線をフィラメントに対して非対称に偏向させることを試みた。図 3-16 に光学系の模式図を示す。(a) はフィラメント電圧  $V_f$ 、偏向電圧  $V_d$  共に 0 の場合、(b) はフィラメントに正の電位を与えた場合、(c) はフィラメント電圧、及び非対称偏向電極共に電位を印加した場合である。偏向角度が小さく2つの虚光源間距離  $d$  が変化しないならば、図の通り干渉縞の間隔、干渉領域の大きさに変化はないはずである。もし試料像の変位が無視できるほど小さく、かつ干渉縞のみがその位置を変化させた場合、第5章で述べる縞走査法、あるいは格子移動法に基づくホログラムの再生が可能となる。これはホログラフィーの一般的な欠点である非実時間性を解決できるのみならず、干渉縞の間隔を与えているホログラムの分解能を干渉縞の間隔に関係なく向上させる可能性を持っている。実験では干渉縞と試料像との位置関係に注目して観察を行なった。

図 3-17 に観察結果を示す。まず、フィラメントへの印加電圧  $V_f$  を大きくしていき、次いでフィラメント印加電圧はそのままの状態非対称偏向電極に電位を与えていったも

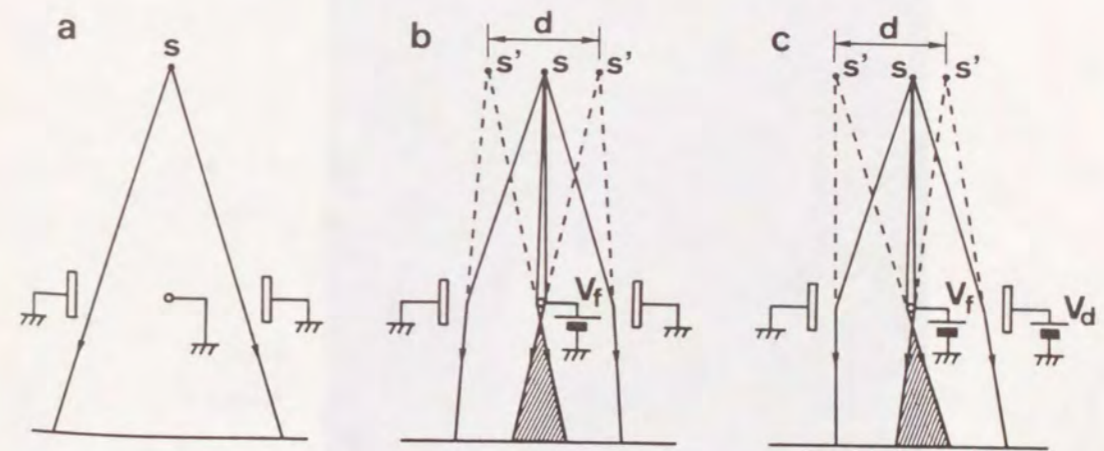


図 3-16 非対称偏向による光学系の変化

のである。試料は真空蒸着法 (Harada et al., 1986, 1987) により作製した粒径約 10 nm の金微粒子である。図 3-17 (a) は、フィラメント印加電圧  $V_r$ 、非対称偏向電圧  $V_a$  共に 0 V のときの像である。(b)、(c) はそれぞれフィラメント電圧  $V_r$  のみ 20 V、31.5 V と印加したときの像である。フィラメントに電圧を印加していくに従い、金微粒子の像はフィラメントと垂直方向に移動し、微粒子の像の上に干渉縞が重なる。印加電圧の増加と共に縞間隔は狭く、干渉範囲は広がっていく。これは式 (3-8)、(3-9) に示した

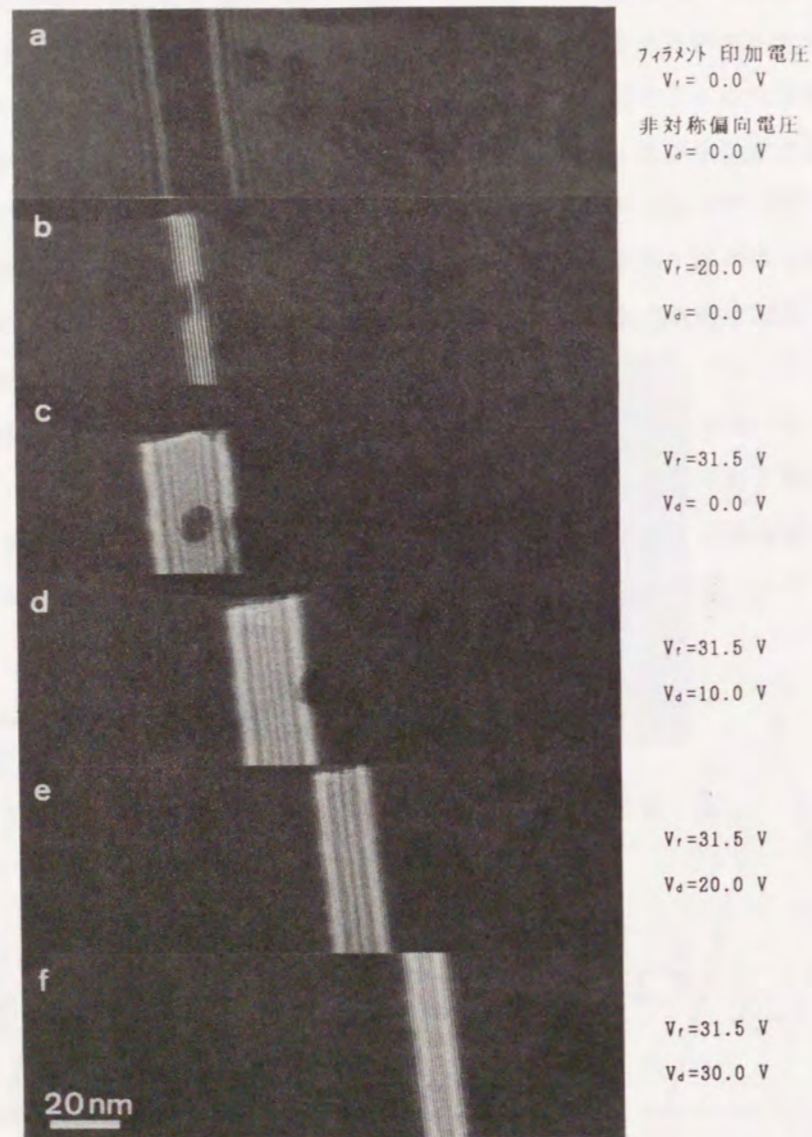


図 3-17 非対称偏向によるホログラムの変化

通りである。微粒子による物体波の位相の変化も干渉縞の曲がりとして観察されている。フィラメントに電圧を印加するに従いフィラメントと同方向にも微粒子の像が移動しているが、これは前節図 3-15 において述べた、電子線バイプリズムの作製精度に依存する現象だと推定している。次にフィラメント印加電圧  $V_r$  は 31.5 V のままで固定し、横方向に非対称偏向電圧  $V_a$  を加えていく。(d)、(e)、(f) はそれぞれ 10 V、20 V、30 V の電位を加えたときの観察像である。また、(d)、(e)、(f) においてもフィラメントの平行方向への試料像の移動が観察され、フィラメントと平板電極が平行でないことを改めて示唆している。非対称偏向電圧を加えるに従い、干渉縞の間隔、及び干渉領域があたかもフィラメント印加電圧を減少させたかのように変化する。これはフィラメント左右を通過した両電子線間の相対角度の減少、すなわち、虚光源間距離  $d$  の減少を意味している。偏向が均一なものでないことが分かる。

電子線バイプリズムによる電子線の非対称偏向は試料像も干渉縞も同時に移動してしまうことより、このままでは縞走査法による像再生に不相当であることがわかった。しかし、補助的な偏向板を設け、改めて像の移動を補正する方法が考えられる。また、偏向電極、及びフィラメントの各々に対して、図 3-18 に示すような電位を印加すれば、干渉縞の間隔には変化を与えず、逆に像のみを移動させれる可能性がある。いずれにせよ、電子線バイプリズムと試料位置の微小変化、微妙な位置合わせには機械的振動を全く伴わないため有効である。

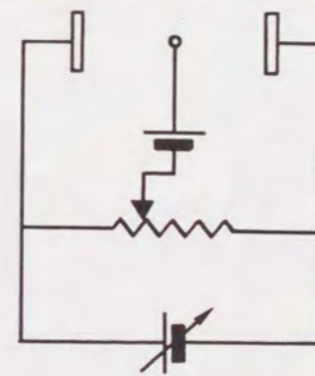


図 3-18 フィラメント、及び偏向電極に対する電位の印加方法

### 3-7 電子線ホログラフィーによる金微粒子の観察

透過型電子顕微鏡 JEM-200CX は LaBe 熱電子銃を光源としており、その輝度は第2章表 2-1 に示したごとく通常の状態でおよそ  $1.0 \times 10^6$  (A/cm<sup>2</sup>·st) である。電子線ホログラフィーを行なえる限界ぎりぎり程度の輝度と考えられる。この JEM-200CX に開発した加熱清浄型電子線バイプリズムを取り付け、金微粒子の電子線ホログラムを作成した。以下、その結果について述べる。

#### 3-7-1 演算処理による再生像の観察

図 3-19 に真空蒸着法によって作製した金微粒子の電子線ホログラムを示す。高分子試料支持膜上に付着した粒径約 15 nm と 5 nm の合計 3 個の金微粒子をホログラムとして記録したものである。フィラメントへの印加電圧は約 40 V、干渉縞の試料面上での間隔は

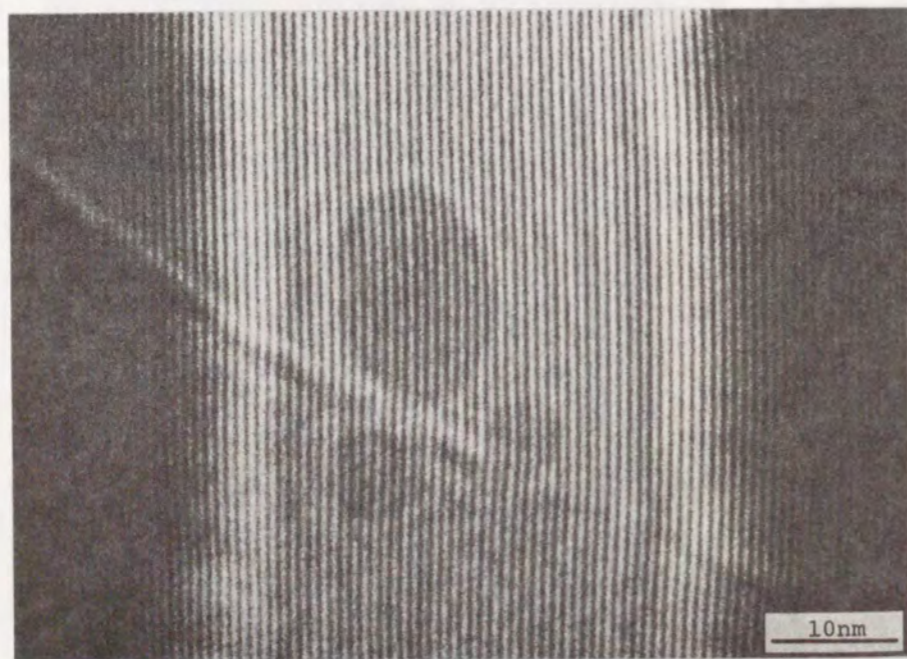


図 3-19 金微粒子の電子線ホログラム  
(JEM-200CX, 加速電圧 200 kV による)

0.77 nm である。ホログラム記録のための露光時間は 32 秒であった。試料の金微粒子に対して out-of-focus 像となっているため、試料支持膜、金微粒子の端にフレネル縞が観察される。微粒子上、及び試料支持膜上で干渉縞の変位を確認でき、位相分布の再生が期待される。

図 3-20 に再生像を示す。(a) は He-Ne レーザーを用いた光学系による再生像、(b) 以下は計算機を用いた数値演算処理による再生像である。計算機はミニコンピューター VAX 11/730 を用い処理画素数は 256 x 256 pixels であった。演算処理の方法は第1章で詳述したフーリエ変換法である。数値演算による再生では、金微粒子を透過した電子線の振幅分布と位相分布を個別に得ることができる。(b) は振幅分布の再生像、(c) は位相分布の再生像であり、波面の形状を表現している。(d) は位相分布の様子を等高線表示したもので1本の縞間隔は  $\frac{\pi}{4}$  の位相変化に対応している。何れの再生像においても試料支持膜

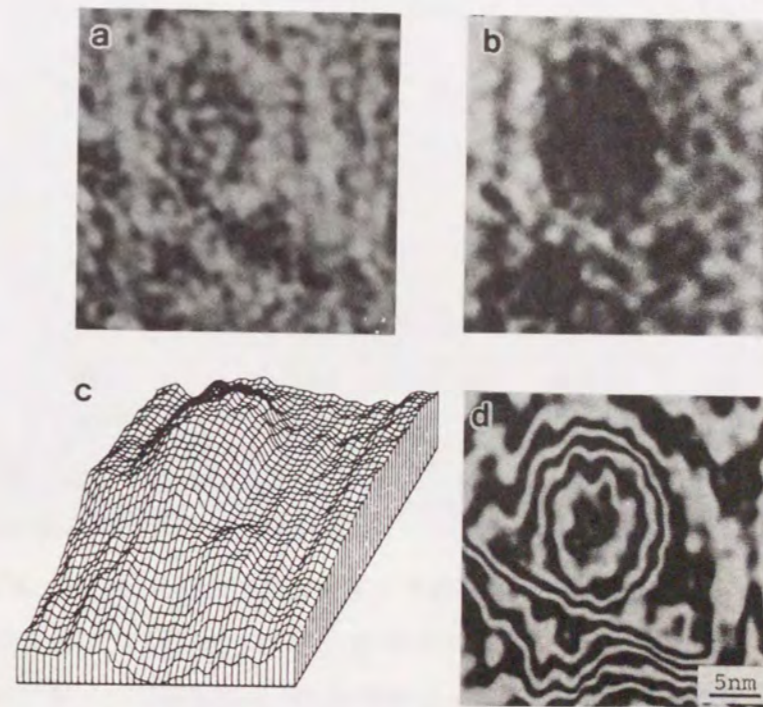


図 3-20 金微粒子の再生像  
(a) 光学再生による像, (b) 振幅分布, (c) 位相分布  
(d) 干渉顕微鏡像 (8倍位相差増幅)



と3個の金微粒子を確認できることから、図 3-19 は確かにホログラムとなっていることがわかる。図 3-20 (a) のレーザーによる再生像に見られる白黒の小さな粒状のコントラストは、レーザーに特有なスペckルノイズであり、そのコントラストの強さや粒状の大きさは再生時に0次透過波と±1次回折波の分離に使用した絞りの開口径に依存している。図 3-20 (b) の数値演算による再生像の方にも同様の粒状コントラストが見られるが、これも像再生時にフーリエ空間で行なう low-pass-filtering の上限周波数に依存しており、スペckルノイズに類似したものである。特に計算機による画像再生の場合はフーリエ空間での空間周波数 filtering 処理において原画像に対する窓関数処理と同様に高周波数域を滑らかに減衰させる filter 関数をフーリエスペクトルに対して乗算する事により、この粒状コントラストのノイズ軽減が像再生とほぼ同時に行なえる。

### 3-7-2 二重露光法による位相分布の観察

ホログラフィー技術の応用例として金微粒子の二重露光法による位相分布の観察を行なった。二重露光法とは物体の2つの状態を同一の参照波により一枚のホログラムに記録すると、物体の2つの状態の波面が同時に再生され、2つの状態間の変化、または変位が再生像中に干渉縞として現われることを利用して、物体の形状の変化や、屈折率、厚さの変化などを測定する方法であり、レーザーによるホログラフィーでは最も基本的な応用技術の1つである。

図 3-21 に観察結果を示す。図 3-21 (a) は金微粒子の透過電子顕微鏡像である。粒径約 25 nm の微粒子の中に (200) 面間隔に対応する 0.20 nm の格子像が観察される。(b) は電子線ホログラムである。フィラメントへの印加電圧は 40 V、干渉縞の間隔は試料面上で 0.48 nm であった。ホログラムを記録するための露光時間は 90 秒であった。図中の白いコントラストは、ネガフィルムを現像処理する際にフィルム面上に生じた静電気の放電現象によるノイズで本来のホログラムとは無関係のものである。(c) は二重露光を行なったホログラムで二枚のホログラムの干渉縞のわずかな変化を同時に記録できなければならないことから、フィルムへの印加電圧を 30 V に減らし、間隔を 0.64 nm に広げることによって位相変化に対する感度を高めて記録した。二重露光法は、まず通常のホログラムを露光し、次いで微粒子を取り除き干渉縞のみの露光を行なったものである。すなわち、金

微粒子の存在によって受けた位相変化がそのまま  $2\pi$  ごとの位相変化に対応した等位相縞として観察される。(d) は図 3-21 (b) のホログラムからの振幅分布の再生像である。微粒子の形が明確に再生されている。(e) は (b) のホログラムからの位相分布の再生像であり、4倍に位相差増幅されている。連続して観察されるべき等位相線が途切れたり重なったりしているのは、(b) のホログラム中の干渉縞が一部で失われてしまっているため、ホログラムの不完全さを表わしている。しかしながら位相分布が、微粒子の端で急激に大きくなり微粒子内部では比較的緩やかな変化をしているという位相分布の大まかな形状を知ることができる。(f) は二重露光ホログラム図 3-21 (c) より再生された振幅分布の像である。微粒子の端のまわりと中央部に黒いコントラストが生じており、これが等位相線として微粒子を透過した物体波の位相分布を表わしている。すなわち微粒子の端で鋭く中

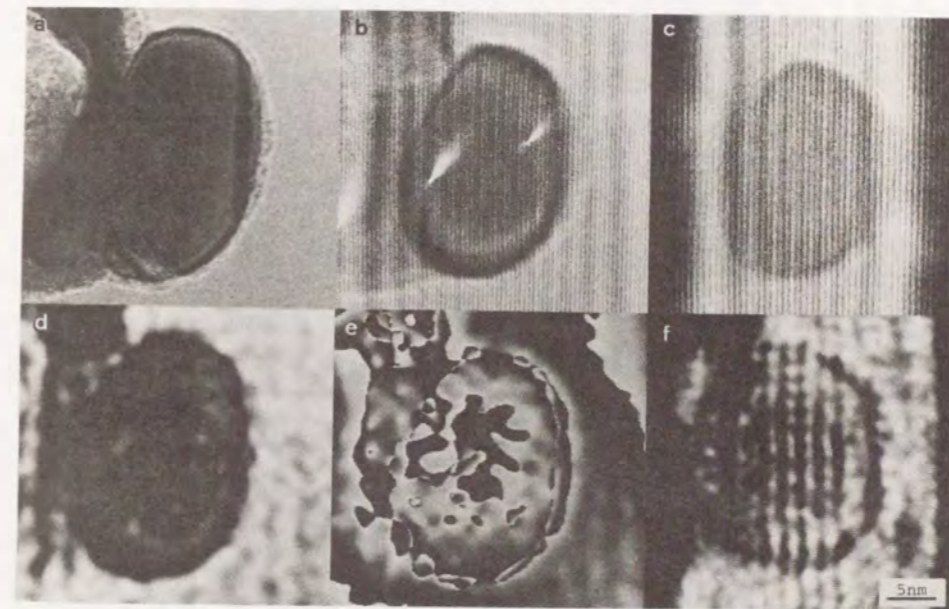


図 3-21 二重露光法による金微粒子の観察

- (a) 電子顕微鏡像
- (b) ホログラム
- (c) 二重露光ホログラム
- (d) (b) のホログラムより再生された振幅分布
- (e) (b) のホログラムより再生された位相分布
- (f) (c) の二重露光ホログラムより再生された振幅分布

央部で広がっていることから、(e)の観察結果とよく対応しており、二重露光によるホログラムの作成は成功していると判断できる。

一枚のホログラムより計算機を用いて電子線の位相分布を得ることができる以上、二重露光法は必ずしも必要ない。しかし、ホログラフィーの応用技術が電子線でも可能であったということは、電子線ホログラフィーの発展の可能性を示唆しているものといえよう。

### 3-8 他の透過型電子顕微鏡による干渉縞の観察

本研究で開発した加熱清浄型電子線バイプリズムを透過型電子顕微鏡 JEM-200CX のみならず、JEM-4000EX、JEM-100C-FEG にも搭載し、各々、干渉縞のフィラメント印加電圧に対する変化やホログラムの作成を行なった。以下にその結果について述べる。

#### 3-8-1 JEM-4000EX による干渉縞の観察

加速電圧 400 kV の高分解能電子顕微鏡、JEM-4000EX、の制限視野絞りを改造し加熱清浄型電子線バイプリズムを取り付けた。干渉縞の観察結果を図 3-22 に示す。電子線バイプリズムの構造、電子顕微鏡光学系における位置などはほとんど先述の JEM-200CX の場合と同じであり、図 3-14 と同様の干渉縞を得るのに 2 倍近くの高いフィラメントへの印加電圧を必要としている。これは、加速電圧の違いによるものが主な理由と考えられる。干渉縞に重畳しているフレネル縞の影響を見ると、80 V ~ 100 V のフィラメント印加電圧でホログラムを記録するのが適当である。図 3-22 の干渉縞の左上側にある白いコントラストは白金フィラメントに汚染物質が付着していることを示しており、チャージアップによる電界の存在がフィラメント近傍を通過する電子線に対して位相変化を与えていることが干渉縞の変位よりわかる。この現象は、干渉縞の変位より位相分布を再生する電子線ホログラフィーにとっては、試料と全く関係のない位相変調がホログラム上に現われることを示唆し、物体からの情報と分離の極めて困難な artifact を被ることになる。従って、フレネル縞以上に汚染のないフィラメントを用いたホログラムの記録を心掛けなければならない。

図 3-14 と比較して干渉縞のコントラストが高いことから JEM-4000EX の方が照射電子線のコヒーレンス度、及び電子線源の輝度において JEM-200CX よりも優れていることを示している。どちらの電子顕微鏡も LaB<sub>6</sub> 熱電子銃を用いているため、この差は加速電圧によるものと推定できる。JEM-4000EX にて輝度の実測は行なっていないが、輝度は通常加速電圧に対して比例することから、表 2-1 の値より、JEM-4000EX の加速電圧 400 kV 時の

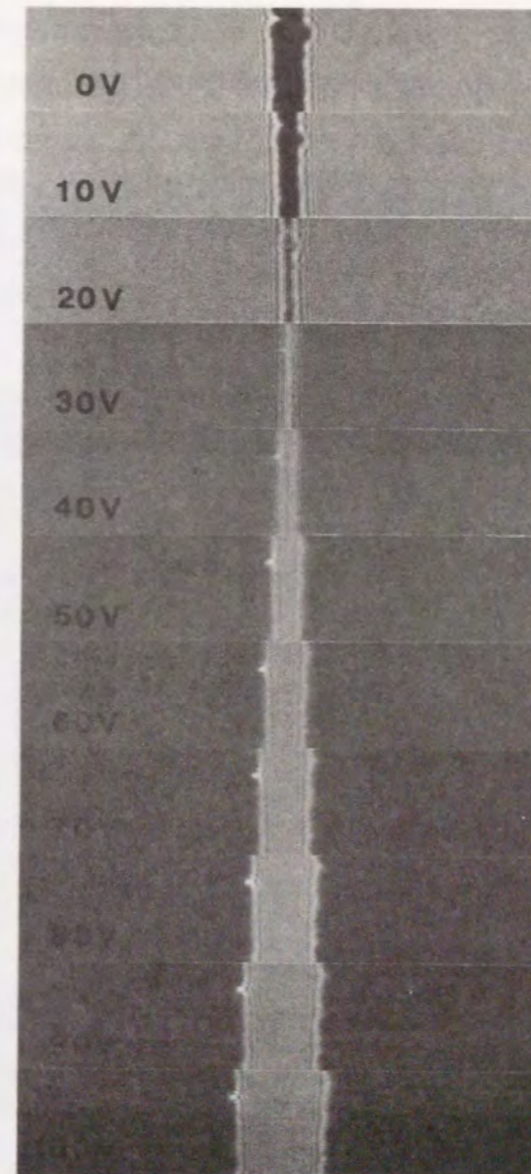


図 3-22 電子線バイプリズムにより作成された干渉縞

輝度は  $2 \sim 5 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup>·st 程度と推定している。

図 3-23 に JEM-4000EX にて記録した MgO 単結晶のホログラムを示す。干渉領域を極力広く取るため中間レンズの第 1、第 2 は OFF とし、第 3 中間レンズ、及び投影レンズの励磁を最大として記録したものである。この時の電子顕微鏡の直接拡大倍率は 8 万倍である。フィラメントへの印加電圧は 75 V であった。MgO 単結晶微粒子はマグネシウムを大気中で加熱燃焼させて作成したもので、いわば煙の粒である。潮解性があるため湿気を嫌うが非常に容易に作る事ができる。

干渉縞の間隔は約 0.4 nm、干渉縞領域約 55 nm、干渉縞の本数約 140 本である。JEM-200CX でのホログラム図 3-19 や図 3-21 と比較して干渉縞の本数、干渉縞の領域も確実に増加しており、輝度の高いことを裏付けてはいるが、図 3-23 のホログラムは非常にノイズが多く良好なホログラムとして再生像を得ることはできないと判断した。

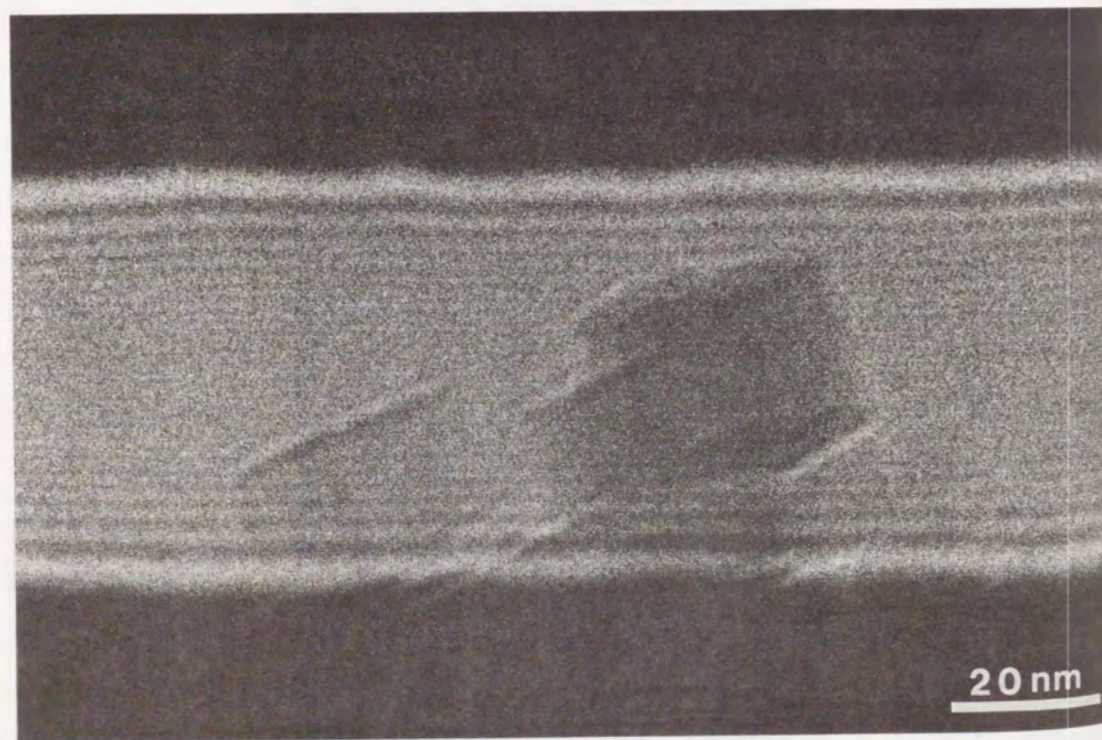


図 3-23 MgO 微結晶の電子線ホログラム  
(JEM-4000EX、400 kV による)

### 3-8-2 JEM-100C-FEG による干渉縞の観察

<100> タングステン熱電界放射型電子銃を搭載した透過型電子顕微鏡、JEM-100C-FEG においても同様に加熱清浄型電子線パイプリズムを制限視野絞りの位置に取り付け、干渉縞の観察を行なった。この JEM-100C-FEG は、第 2 章において輝度測定を行なった JEM-100CX-FEG とは同型機であり、加速電圧は 80 kV までかけることができる。加速電圧 80 kV 時の輝度は表 2-1 に示したとおり  $8.5 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>·st と他の 2 台の電子顕微鏡と比較して 2 桁近く高い値である。

図 3-24 にフィラメント印加電圧に対する干渉縞の変化の様子を示す。試料は前述と同

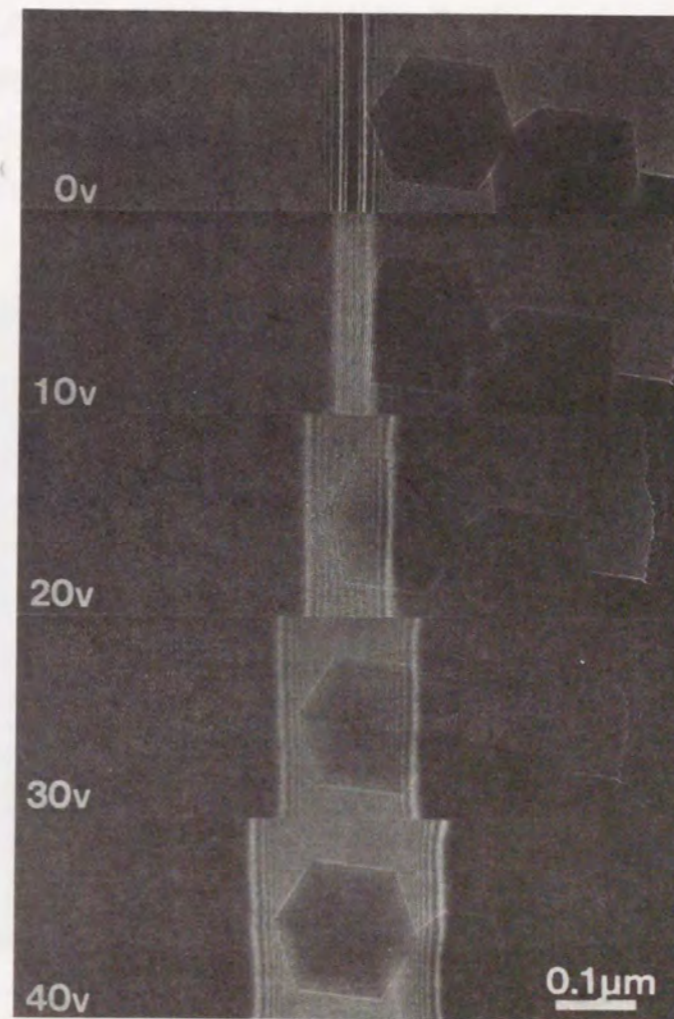


図 3-24 フィラメント印加電圧によるホログラムの変化

じ MgO 単結晶微粒子である。フィラメント印加電圧 0 V の時のフィラメントの陰が、他の電子顕微鏡の場合と異なり細く観察されているのは、電子線バイプリズムの電子顕微鏡光学系における位置が他の電子顕微鏡の場合よりもわずかだけ対物レンズ側に配置されているからである。従って、低いフィラメント印加電圧で幅広い干渉領域を得ることができているのは、加速電圧の低さに加えてこの電子線バイプリズムの位置が影響を与えている。電子顕微鏡内での直接拡大倍率は約 7.5 万倍である。図 3-24 の各々の電子顕微鏡像の撮影の露光時間は 5.6 秒であった。

図 3-25 に図 3-24 のフィラメント印加電圧 40 V のときのホログラムを拡大して示す。干渉縞の間隔 0.92 nm、干渉領域約 280 nm、干渉縞の本数約 300 本である。図 3-23 の JEM-4000EX による同種のホログラムと比較して、電子線源の輝度の違いが得られるホログラムにその S/N 比や干渉領域の大きさに対して歴然たる差を与えていることが良くわかる。このタングステン熱電界放射型電子銃を備えた JEM-100C-FEG は、数万倍の拡大倍率であれば高感度 TV カメラを取り付けることにより、ホログラムやその時の実験状況を直接実時間で VTR に記録することができた。また、ホログラムをデジタル値化し、写真処理を

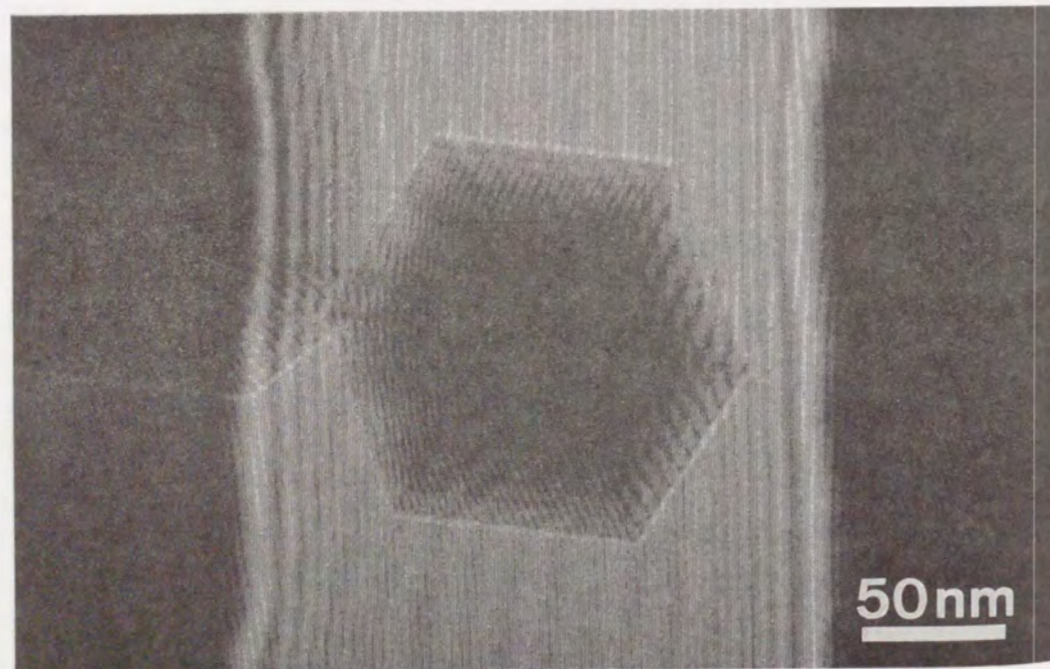


図 3-25 MgO 微結晶の電子線ホログラム  
(JEM-100C-FEG、80 kV による)

一切必要とせず直接ミニコンピューターに取り込み画像再生できることも確認した。これは電子線ホログラフィーの効率化を考える上で大変重要なことと思われる。詳細は第 4 章にて述べる。

以下の章で述べる電子線ホログラフィーの実験はすべてこの JEM-100C-FEG を用いて行なわれたものである。

### 3-9 結言

本章では、電子線バイプリズムフィラメントに付着する汚染対策としてフィラメントに線径 0.6  $\mu\text{m}$  の白金極細線を用いこれを通電加熱することによって汚染を除去できる加熱清浄型電子線バイプリズムについて、その作製方法と特徴について述べた。この方法は付着した汚れを除去できるだけでなく、安定な電源を用いることにより実験中も加熱を続け、汚染そのものを防ぐことができる有効なものであった。また、3 種類の透過型電子顕微鏡、JEM-200CX、JEM-4000EX、JEM-100C-FEG にこの開発した加熱清浄型電子線バイプリズムを取り付け、LaB<sub>6</sub> 熱電子銃を光源に用いた電子顕微鏡であっても原理的には電子線ホログラフィーの実験が可能であることを確認した。

## 4-1 緒言

従来の電子線ホログラフィーにおいて、再生された振幅分布、及び位相分布の空間分解能を決定するのは、ホログラムに記録されている干渉縞の間隔、すなわち搬送空間周波数である。それ故、より空間分解能の高い再生像、またはより高い空間周波数を含んだ物質のホログラムを記録し、その再生像を得るためにはより空間周波数の高い干渉縞の記録が必要となる。通常、透過波により形成された物体像はフーリエ変換を行なうと物体波の振幅分布のフーリエ変換の自己相関関数 (auto correlation) で表現されるため、空間周波数領域では原点を中心に振幅分布のスペクトル分布より2倍大きく広がることになる。一方搬送波によって変調された物体波の情報は、正負の搬送空間周波数を中心に元の物体波のスペクトルだけ広がる。これが再生したい情報である。不必要な原点まわりのスペクトル成分を除去し、これによる artifact を発生させない目的で、通常像再生の最終段階において搬送空間周波数の  $\frac{1}{3}$  までの low-pass-filtering が行なわれる。これはホログラムのフーリエスペクトル上では、搬送空間周波数を中心にその  $\frac{1}{3}$  の半径の領域のみを抽出することに相当する。従ってホログラムから artifact-free に再生された像においては、搬送空間周波数の  $\frac{1}{3}$  が含まれる空間周波数の上限を与えることになる。すなわち、 $10 \text{ nm}^{-1}$  に対応する  $0.1 \text{ nm}$  の分解能を得ようとするれば  $0.033 \text{ nm}$  の間隔の干渉縞を記録する必要がある。現在までに得られている最も細かい干渉縞は Völkl and Lichte (1990) による  $0.032 \text{ nm}$  であるが、フィルムの感光材の粒度 (M.T.F.) により、良好な再生像を得るに至っていない。良好な再生像をも得られている例としては、Lichte (1986) による  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  の結晶格子像のホログラムに記録された  $0.075 \text{ nm}$  の干渉縞が最小である。フィルムの粒度の問題を解決しようとするれば、電子顕微鏡内での直接拡大倍率を上げねばならず、倍率向上量の2乗でフィルムへの電子のドーズ量が減少する。このドーズ量の減少への対策は電子銃の輝度を上げる、フィルムへの露光時間を延ばすなどが考えられるが、第2章で述べた通り空間周波数の高い干渉縞を得るには高い干渉性を持った電子線が必要であり、小さい光源が必要である。また、干渉縞の間隔が小さくなるほど、試料や電子光学系をはじめとした装置全体に要求される安定度は極めて厳しいものとなる。

本章で述べる再生方法は2枚の画像を用いることにより、ホログラムをフーリエ変換し

た際に生じる自己相関スペクトルの影響を除去し、搬送空間周波数自体が再生された振幅分布、位相分布の空間周波数を与えるようにするもので、従来の方法に比べ最大の場合3倍の空間分解能向上が期待される方法である (Harada and Shimizu, 1991)。実行した基礎実験の結果のついて述べるほか、この実験を遂行するに当たって開発した電子線ホログラムのオンライン解析処理システムについても述べる。

## 4-2 原理

## 4-2-1 再生像の分解能

一般に電子線ホログラムの強度分布は、式 (1-3) より以下のように表わされる。

$$I_{\text{coh}}(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x) \quad (4-1)$$

ここで、 $\phi(x,y)$ 、 $\eta(x,y)$  はそれぞれ物体波の振幅、位相分布を表わす。 $x$ 、 $y$  座標はホログラム面上に取り、電子線バイプリズムのフィラメントは  $y$  軸上に投影されていると仮定している。干渉縞の空間周波数  $R_0$  は式 (1-4) より

$$R_0 = \frac{\sin \alpha}{\lambda} \quad (4-2)$$

で与えられる。ここでは、 $\alpha$  は物体波と参照波のなす角、 $\lambda$  は電子線の波長である。電子線ホログラフィーは一般的にイメージホログラフィーであり、 $|\phi(x,y)|^2$  は物体波の強度分布を表わす。すなわち、電子線ホログラムは物体像に物体波の振幅に見合った強度を持ち、物体波の位相分布に対応して変調を受けた干渉縞により形成されている。現実には、電子線バイプリズムのフィラメントの端で回折を受けた波によって生じるフレネル縞がさらに重畳されている。

式 (4-1) で表わされるホログラムの強度分布をフーリエ変換すると、式 (1-9)、(1-10) と同様に

$$F[I_{\text{coh}}](R_x, R_y) = A(R_x, R_y) + B(R_x - R_0, R_y) + B^*(R_x + R_0, R_y) \quad (4-3)$$

$$A(R_x, R_y) = F[|\phi(x, y)|^2 + 1](R_x, R_y) \quad (4-4)$$

$$B(R_x, R_y) = F[\phi \exp(i\eta)], \quad B^*(R_x, R_y) = F[\phi \exp(-i\eta)]$$

となる。 $R_x$ 、 $R_y$  は、それぞれ  $x$  軸、 $y$  軸方向の空間周波数軸に対応する。

第1項の  $F[|\phi|^2](R_x, R_y)$  は

$$F[|\phi|^2](R_x, R_y) = \iint F[\phi](R'_x, R'_y) F[\phi]^*(R'_x - R_x, R'_y - R_y) dR'_x dR'_y \quad (4-5)$$

より、振幅分布のフーリエ変換  $F[\phi](R_x, R_y)$  の自己相関関数で表わされており、物体波の振幅分布のスペクトルが  $R_{\text{max}}$  まで分布していたと仮定すると、その自己相関関数のフーリエ変換  $F[|\phi|^2](R_x, R_y)$  は原点  $R=0$  を中心に  $2R_{\text{max}}$  まで広がって分布することになる。結果的にこの物体波を完全に再生するには搬送空間周波数  $R_0$  は  $R_0 \geq 3R_{\text{max}}$  でなければならない。逆に言えば、分解能を与える空間周波数は  $\frac{R_0}{3}$  である。

物体波が振幅分布を持たず位相分布のみを持つ場合を考えてみる。これは試料がカーボン薄膜や生物試料の時に対応する。in-focus、無収差光学系のみを考え、out-of-focus や収差による振幅分布の発生は考えないことにする。この時振幅分布は  $\phi(x, y) = 1$  とおけば、

$$F[|\phi|^2](R_x, R_y) = \delta(R_x, R_y) \quad (4-6)$$

より原点に1本の  $\delta$  関数が立つだけで分布は持たない。従って搬送空間周波数  $R_0$  は  $R_0 = R_{\text{max}}$  で十分である。つまり透過波による位相物体の像コントラストは、in-focus、無収差のもとでは消失するため、スペクトル上では原点周囲の情報が存在せず、搬送空間周波数  $R_0$  までの分解能で再生ができることになる。さらに弱振幅物体の場合、 $F[|\phi|^2](R_x, R_y)$  も  $R > R_{\text{max}}$  の範囲では2次の微小項として減衰が早いため、分解能を与える空間周波数は  $\frac{R_0}{2}$  程度である。

図 4-1 に振幅分布の異なるホログラムとそのフーリエスペクトルを示す。図 4-1 (a)、及び (b) は MgO の微結晶、図 4-1 (c) は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の微結晶のホログラムである。(a)、(b)、(c) の順で、振幅分布は小さくなっていく。(d)、(e)、(f) はそれぞれ (a)、(b)、

(c) のフーリエスペクトルである。各々のホログラムの記録された拡大倍率、フィルムへの露光量など条件が異なるため、物体波の振幅分布にどの程度の大きさの違いがあるのか一概には言えないが、少なくともホログラムに記録された物体像の強度分布が小さくなるに従って0次回折波に相当する原点近傍の自己相関スペクトルが急激にその分布範囲を小さくしていくことがわかる。以上より、ホログラムからの再生像の分解能は記録されている干渉縞の空間周波数  $R_0$  に依存し、0次スペクトルと±1次スペクトルが搬送空間周波数  $R_0$  によって分離された場合、その分解能は  $\frac{R_0}{3}$  から  $R_0$  までの空間周波数によって決定される。完全な位相物体というものはほとんどないため、一般には  $\frac{R_0}{3}$  から  $\frac{R_0}{2}$  が、再生像に取り込める最大の空間周波数である。

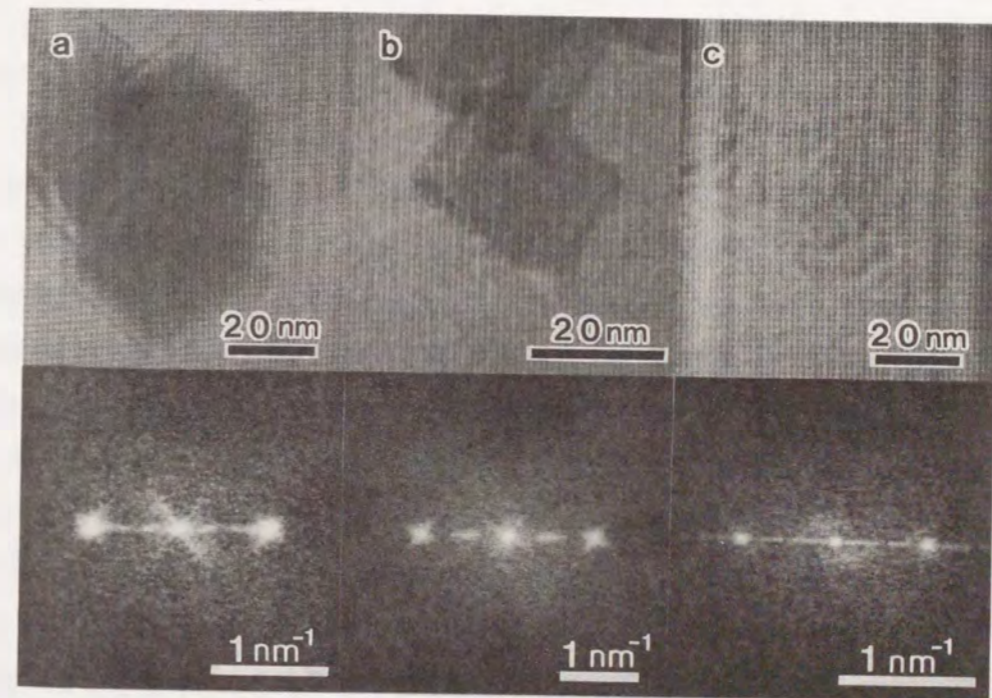


図 4-1 電子線ホログラムとそのフーリエスペクトル  
(a)、(b) MgO 微結晶, (c)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  微粒子

#### 4-2-2 空間周波数拡張再生法の原理

本章で述べる方法はもう1枚別の画像を必要とする。何らかの手段により物体波と参照波の位相関係を乱した場合を想定してみる。この時のフィルム面上の強度分布は物体波、参照波間の干渉項が欠落する結果

$$I_{inc}(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 \quad (4-7)$$

で表わされる。便宜上、ここでは式(4-1)で表わされるホログラムの強度分布をコヒーレント強度分布、式(4-7)によるものをインコヒーレント強度分布と呼ぶことにする。このコヒーレント強度分布、インコヒーレント強度分布の2枚の画像の減算処理を行なうと、

$$\begin{aligned} I_{sub}(x,y) &= I_{coh}(x,y) - I_{inc}(x,y) \\ &= 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x) \end{aligned} \quad (4-8)$$

を得る。ここで減算を行なった後の強度分布  $I_{sub}(x,y)$  は、その値に負の強度を持たねばならない。従って、この演算処理は写真技術のみに頼っていたのでは困難であり、コンピュータによる画像処理によって初めて可能となるものである。減算後の強度分布式(4-7)では干渉縞だけが存在し、縞の振幅が物体波の振幅分布に、縞の変位の様子が位相分布をそれぞれ表わすことになる。物体波の強度分布が既に失われているため、フーリエ変換を行なっても0次スペクトルは現われない。すなわち、

$$F[I_{sub}](R_x, R_y) = B(R_x - R_0, R_y) + B^*(R_x + R_0, R_y) \quad (4-9)$$

である。それゆえ、 $R_0$ までの空間周波数を再生像に取り込むことが可能となり、それに伴い空間分解能も3倍向上することになる。もしくは、同じ物体のホログラムを記録するのであれば、この方法によれば従来のホログラムよりも3倍間隔の広い干渉縞を物体像に重畳させれば十分である。

減算を行なう強度分布に参照波を加えない物体像  $|\phi(x,y)|^2$  のみを用いた場合、ホロ

グラム上に参照波の強度分布1が残ってしまうが、これはホログラムのバックグラウンドであり、周波数空間では原点に収束した  $\delta$  関数となるので上記と同様の空間周波数の拡張が可能である。しかしながら、第3-8-2節、図3-24に示したごとく電子線パイプリズムフィラメントに電圧を印加し物体波と参照波を重ねるにつれて物体波が結像面上を移動する。電子光学系の構造上この移動が本質的に除けない電子線ホログラフィーの場合、実空間での2枚の画像の演算処理を必要とする空間周波数拡張再生法においては、像の移動は即座に再生像の中に artifact を招くことになり現実的ではない。物体波と参照波によるインコヒーレント強度分布の方が実現に可能性がある。しかし、この場合でも2枚の画像のバックグラウンドの強度分布が異なった場合、減算を行なった後の強度分布中にバックグラウンドの差に対応した強度分布が残存し、これが空間周波数領域では原点上に  $\delta$  関数として現われる。

式(4-9)より以降の演算処理は第1-5節で述べたフーリエ変換による再生方法と全く同じであり、±1次のスペクトルのいずれかを選択し、フーリエ逆変換することにより直ちに振幅分布、位相分布を再生できる。

#### 4-3 実験装置

空間周波数拡張再生法を具体的に実現するにあたって必要とされることは、第1に2枚の画像を干渉縞の有無以外は全く同じ明るさ、コントラストで画面上の同じ位置に記録しなければならないこと、第2に物体波には影響を与えず干渉縞のコントラストのみを消すような物体波、参照波間の位相の乱れをつくり出すこと、の2点である。

従来通りの電子顕微鏡フィルムに露光して2枚のホログラムを得る方法は、コントラストやフィルムの粒状性(M.T.F.)などから見て得られたホログラムは優秀なものではあるが、画像処理システムに入力するまでに最低2回の写真処理が必要となり、2枚の明るさ、コントラストを同一に保てない恐れがあること、2枚の画像の同じ位置への入力が困難であることなどが、実験に際しての問題点となると予想される。

これらの問題点を解決するために、電子線ホログラフィー顕微鏡で得られたホログラムのオンライン処理システムを開発した。

図4-2に開発したオンライン画像処理システムのブロック図を示す。使用した電子顕微

鏡は、JEM-100C-FEG、加速電圧は 80 kV である。電子顕微鏡の蛍光板上に形成された電子線ホログラムは TV カメラを通じてビデオテープに記録され、必要に応じてフレームインテグレーターにより画像積算処理を行なうことができる。TV カメラは GATAN 社製 Model 622 電子顕微鏡用 TV カメラで、加速電圧 100 kV の電子線に対して YAG シンチレーターへの照射が  $10^{-14}$  A/cm<sup>2</sup> 時、線分解能 6 本/mm、 $10^{-11}$  A/cm<sup>2</sup> 時、20 本/mm という現在市販されている中では最も高感度、高精度のものである。画像演算処理には、画素数 256 x 256 pixels、256 階調の処理が可能なミニコンピューター VAX Station 2000 を用いた。ホログラムは電子顕微鏡より直接に、またはビデオテープの再生により入力できる。今回の実験では多数枚の画像を記録する必要があること、画像データの VAX Station 2000 への転送に若干時間を要するなどの事情から、まずビデオテープに録画し、後に必要なデータのみを VAX Station 2000 へ転送した。フレームインテグレーターによる画像積算処理は画面上のノイズを軽減する効果的な方法であり、特に電子線のドーズ量が少ないために生じているホログラム面上の量子ノイズの軽減に有効であった。ただし、通常 8 フレームの画像積算が行なわれるのに対し、今回の実験においては試料移動など機械的な振

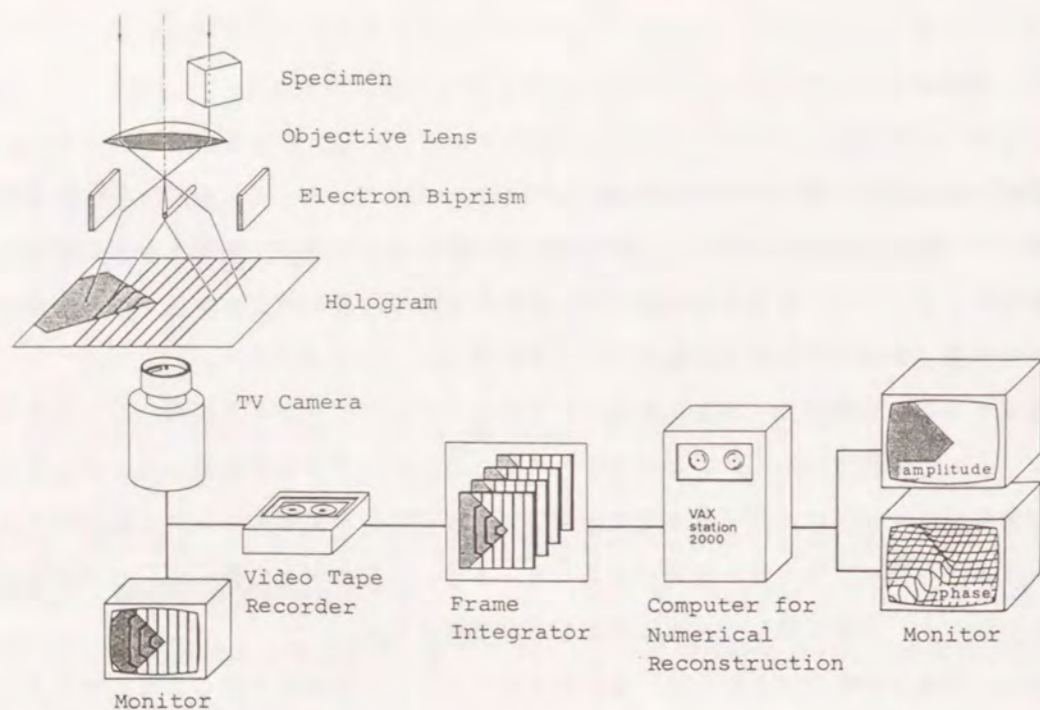


図 4-2 オンライン画像処理システム

動のため、4 フレームの積算にとどめた。本章の全ての電子顕微鏡像、及びホログラムは 4 フレームの積算を行なったものである。

インコヒーレント強度分布を得るために物体波、参照波間の位相スクランブラーとして空間的、時間的に変動する磁界を電子顕微鏡外部より電子線に作用させる方法を考案した。すなわち、鉄材を芯にしたコイルにて 60 Hz で変動する磁界をつくり出し、特に照射光学系に作用するように配置する。その様子を図 4-3 に示す。電子線の入射方位が電子線バイプリズムフィラメントに垂直な方向に変化すると、それに伴い干渉縞もその位置が変位する。低倍率、低分解能であれば、入射方位の変化は試料を透過した波による結像に大きな影響を与えず、ホログラム中の干渉縞のみが変位して観察される。1 画像の記録中に、入射方位の変化が 1 周期以上生じれば見かけ上干渉縞が失われ、入射電子線の開き角が広がって観察される。外部より与える磁界が強すぎる場合、像に歪や振動を招くが、強度、方向を適正に調整すれば、ホログラム上の干渉縞のコントラストのみを変化させることができる。

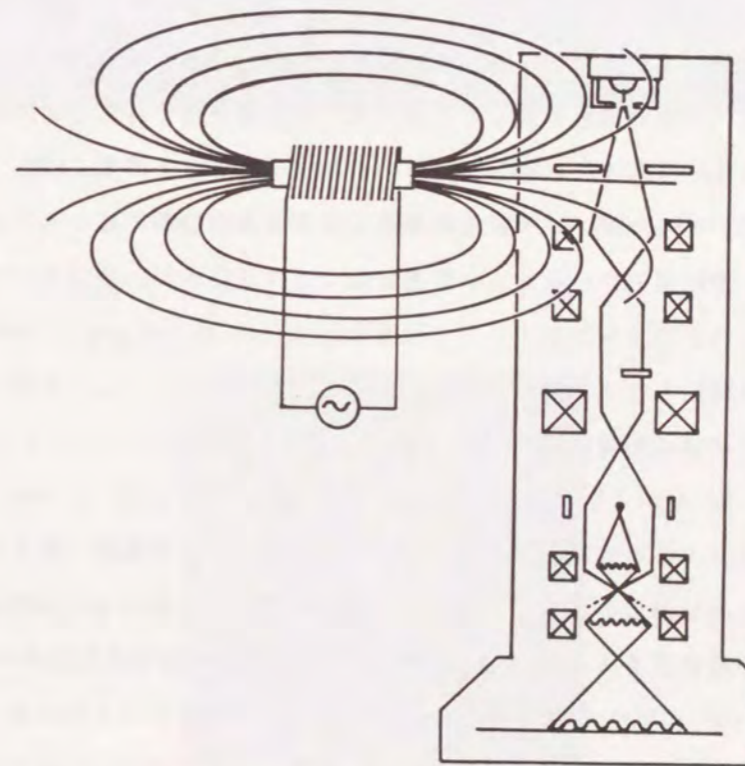


図 4-3 位相スクランブラーと電子顕微鏡の位置関係の模式図



#### 4-4 結果及び考察

本実験に当たっては、試料には例えば格子像など高い空間周波数まで含んだもの、そして振幅分布の大きな物体波が得られるよう、いわゆる強散乱物体が望まれる。しかしながら、JEM-100C-FEGの輝度  $8.5 \times 10^7 \text{ A/cm}^2 \cdot \text{st}$  (加速電圧 80 kV 時) は格子像のホログラムを数秒以内の露光時間で作製するにはまだ不足しており、ましてやTVカメラによってホログラムを記録する場合1フレームは1/30秒である上にシンチレータへの電子線のドーズ量が規定されてくるため、電子顕微鏡での直接拡大倍率は10万倍以下にせざるを得なかった。

##### 4-4-1 MgO 微結晶の観察

試料には酸化マグネシウムの単結晶微粒子を用いた。MgO 微結晶は前述の通り燃焼煙より容易に作る事ができる。また、絶縁体であるため試料の微小帯電により、物体波の位相変化が大きく、ホログラムの干渉縞にその変化が大きく現われるという利点がある。しかし、一方では高い空間周波数を含んでいない上、弱振幅物体であるため振幅分布のコントラストが現われ難いという欠点を持つ。カーボングラファイト薄膜、 $\text{MoS}_2$  薄膜、金微粒子などを試料に用いてみたが、いずれも現段階では本実験の目的にはより不相当であった。

図4-4にMgO微結晶のコヒーレント強度分布(ホログラム)、及びインコヒーレント強度分布を示す。(b)のインコヒーレント強度分布は(a)のコヒーレント強度分布を記録直後に、外部交流磁場を与えて記録したものである。各々4フレームの画像を積算処理している。(a)の干渉縞の間隔は約1.4nm、電子線バイプリズムのフィラメントには10Vの電位を加えた。図4-4ではMgO微結晶の一部のみに干渉縞を重畳させホログラムとしているが、フィラメント印加電圧を大きくした場合同時に電子顕微鏡の拡大倍率も大きくせざるを得ず、これは輝度の不足が許さなかった。また、干渉縞の空間周波数を高めることは、本実験の目的に反する。図4-4記録時の電子顕微鏡の直接拡大倍率は68000倍であった。図4-4(b)においてMgO微結晶の像は位置、コントラスト共にほとんど変化なく干渉縞だけが失われていることが良くわかる。また、バイプリズムフィラメントの端により生じたフレネル縞は、干渉縞よりも低い可干渉性の電子線であっても形成されるため

図4-4(b)でもコントラストの低下は見られるがそのまま残存している。いずれの図においても白枠で囲った部分を256x256pixelsで画像処理システム内に取り込み、位相分布、振幅分布の再生処理を行なった。

図4-5に減算処理後の強度分布を示す。ここでは負の強度が存在するため、強度0が中間調の129階調になるように画像表示の際に調整を行なっている。MgO微結晶の像とフィラメント端からのフレネル縞のコントラストが強調されている事がわかる。式(4-8)より、MgO微結晶像の存在した部分の干渉縞のコントラストの低下、及び干渉縞の変調がそれぞれ物体波の振幅分布、位相分布を表わしている。

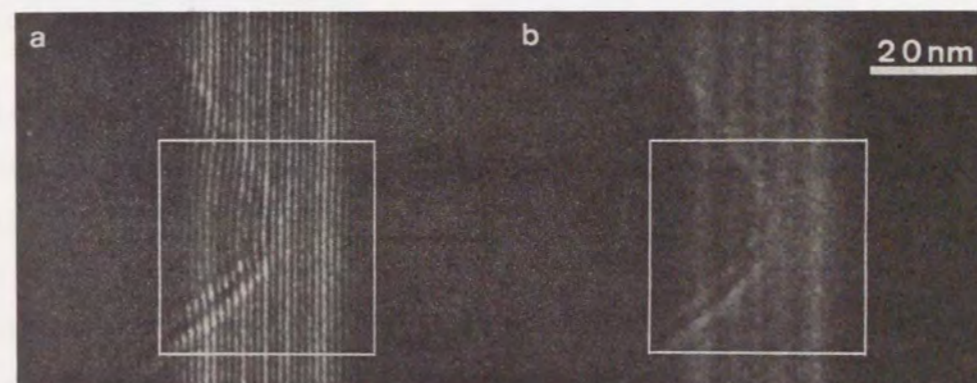


図4-4 画像処理システムへの入力画像(MgO微結晶)

(a) コヒーレント強度分布, (b) インコヒーレント強度分布

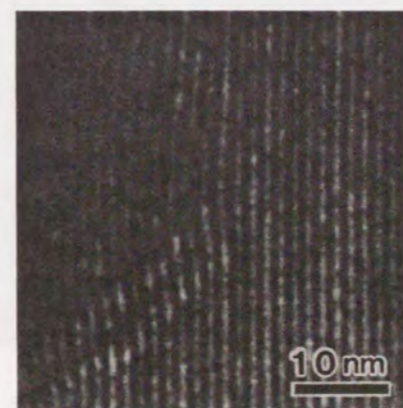


図4-5 減算処理後の強度分布

図 4-6 (a)、(b) にそれぞれ図 4-4 (a)、及び図 4-5 のフーリエスペクトルを示す。図 4-6 (a) では MgO 微結晶は弱振幅物体であるため、フーリエスペクトル中の 0 次スペクトル分布も 1 次スペクトル分布も同じ程度の広がりをも空間周波数領域において持っている。このような場合、従来のフーリエ変換法による像再生では、搬送空間周波数  $R_0$  の  $\frac{1}{2}$  の空間周波数を再生像の中に取り込むことが可能である。図 4-6 (b) では、周波数空間の原点近傍に分布していた自己相関スペクトルが消失している。物体像の強度分布だけでなくフレネル縞を含む画像全体のバックグラウンドの強度が図 4-5 において除かれていたため、原点近傍の低い空間周波数領域にまで広がった 1 次回折波中の高い空間周波数を S/N 比が十分大きければ抽出できる可能性があり、原理的には搬送空間周波数  $R_0$  と同じだけの空間周波数を再生像に再現できる。各図中の破線の円は、像再生に用いた空間周波数領域を表わしており、それぞれ半径が (a)  $R=0.35 \text{ nm}^{-1}$ 、(b)  $R=0.70 \text{ nm}^{-1}$  である。

図 4-7、及び図 4-8 にそれぞれ図 4-6 (a)、(b) より再生した振幅分布、位相分布を示す。図 4-5 では MgO 微結晶の像は消失していたにもかかわらず図 4-8 (a) では振幅分布がはっきりと再生されている。図 4-7 と図 4-8 とを比較して図 4-8 の方が高い空間周波数を含んで再生されており、分解能の向上していることが明らかである。とりわけ MgO 微結晶の試料端とそこに付着していた汚れについて再生像を比較すれば振幅分布、位相分布とも、図 4-8 の方が鮮鋭である。しかしながら、図 4-8 では量子ノイズもまた同時に強調されており、この空間周波数拡張再生法の有効性を明確に見いだすにはいま一歩という

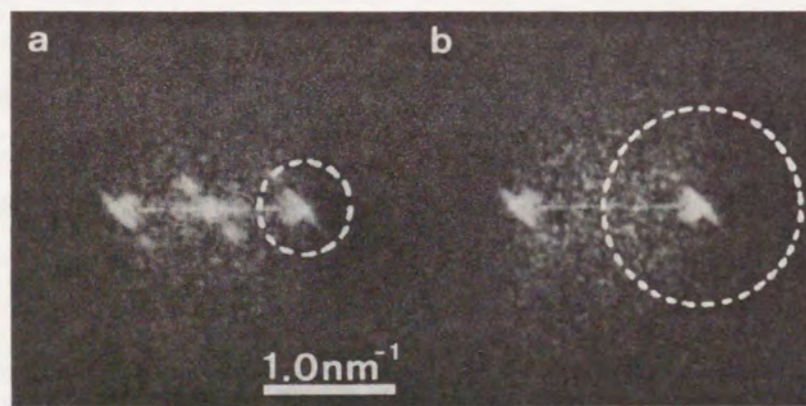


図 4-6 フーリエスペクトル (a) 図 4-4 (a) より  
(b) 図 4-5 より

感がある。より高輝度な電子銃を用いホログラムの S/N 比を向上させるとともに、より高い空間周波数を含んだ試料を用いれば高い分解能の再生像が得られ、明確な結果が見いだせると期待できる。

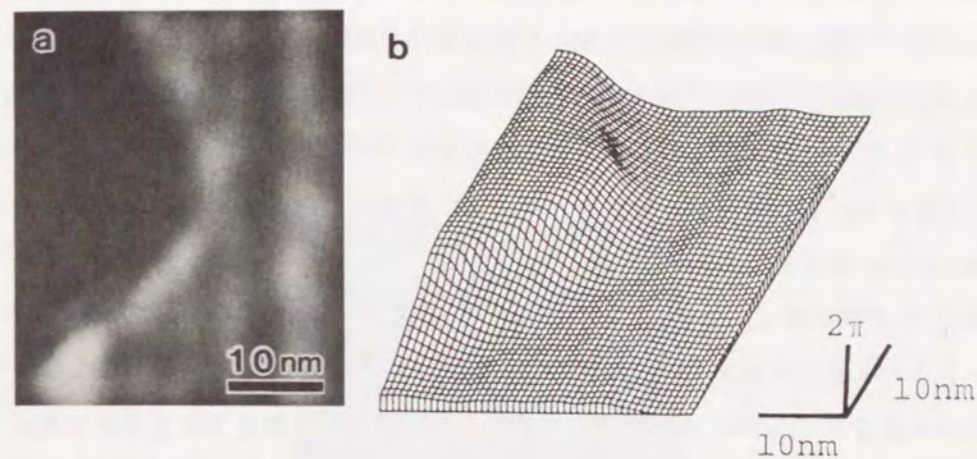


図 4-7 フーリエ変換再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

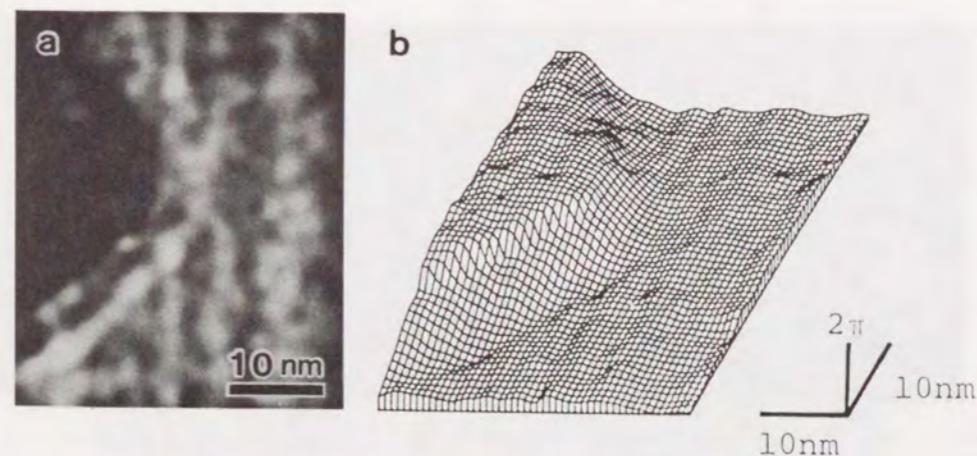


図 4-8 空間周波数拡張再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

#### 4-4-2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子の観察

もう一例として試料に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子を用いた実験を行なった。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子は、いわゆる Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 研磨材で、粒径 20 nm のものまでは市販されている。ここでは、粒径 30 nm の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末を空气中で攪拌し試料に用いた。MgO 微粒子よりも小さいため、微粒子全体のホログラムを得ることができる。また、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子も絶縁体であるため微小帯電により物体波に対して微粒子の大きさに比較して大きな位相変化が期待できる。しかしながらやはり高い空間周波数を含んでいないこと、弱振幅物体であることなどの欠点を持つ。

図 4-9 に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子のコヒーレント強度分布（ホログラム）及びインコヒーレント強度分布を示す。実験の手順、条件などは、MgO 微結晶の時と全く同じであるが、(a) の干渉縞の間隔は若干広く、約 1.5 nm である。

図 4-4 とほぼ同様に、コヒーレント強度分布とインコヒーレント強度分布とは干渉縞のコントラストのみが異なり、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の位置、並びにコントラストは変化していない。(b) では干渉縞が完全には消えていないが、これは外部より加える交流磁界の強度が不足していたためと推定される。白枠で囲った部分を 256 x 256 pixels で画像処理システムに入力し、空間周波数拡張再生法としての再生処理を行なった。

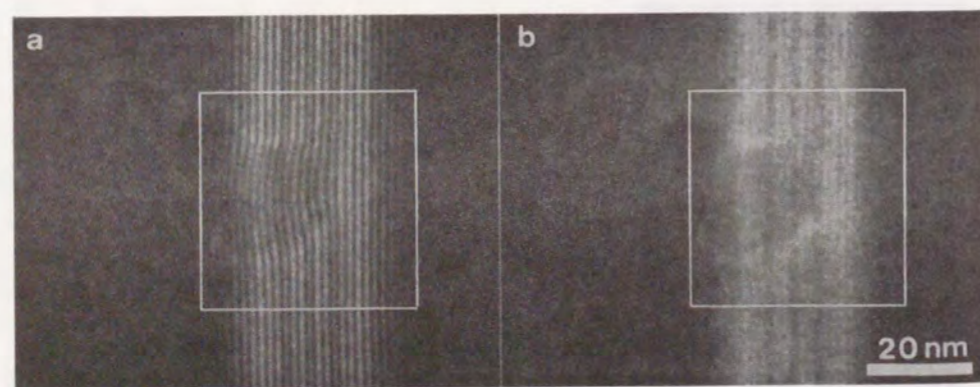


図 4-9 画像処理システムへの入力画像 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子)  
 (a) コヒーレント強度分布  
 (b) インコヒーレント強度分布

図 4-10 に減算処理後の強度分布を示す。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子の像が消え、干渉縞が強調されている。MgO 微粒子の場合よりも物体波の減算が完全に成されていることがわかる。

図 4-11 (a)、(b) にそれぞれ図 4-9 (a)、及び図 4-10 のフーリエスペクトルを示す。やはり、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子も弱振幅物体であるため、図 4-11 (a) のフーリエスペクトル中の 0 次スペクトル分布も ±1 次のスペクトル分布も同程度の範囲に分布しており、搬送空間周波数  $R_0$  の  $\frac{1}{2}$  の領域を再生像に使用できる。図 4-11 (b) では、0 次スペクトルが除かれており、フーリエスペクトル中の S/N 比が十分大きければ、搬送空間周波数  $R_0$  と同じだけの空間周波数を再生像に再現できる。各図中の破線の円に、像再生に用いた空間周波数領域を表わしている。それぞれ半径が (a)  $R=0.33 \text{ nm}^{-1}$ 、(b)  $R=0.67 \text{ nm}^{-1}$  である。

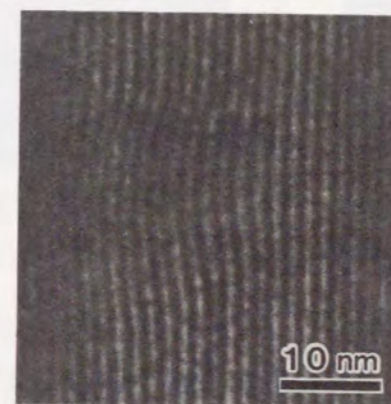


図 4-10 減算処理後の強度分布

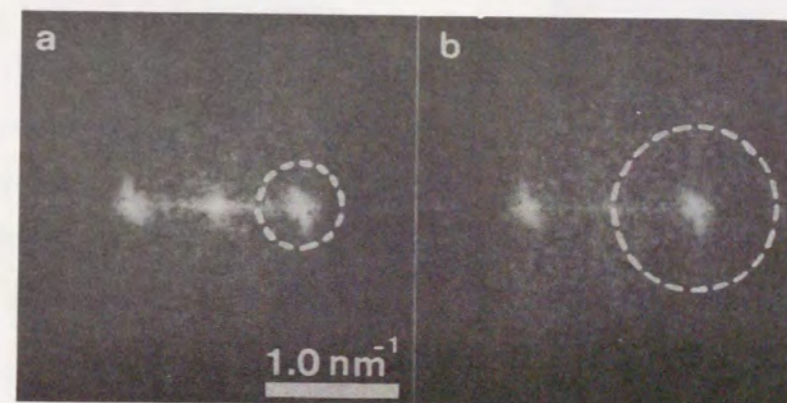


図 4-11 フーリエスペクトル (a) 図 4-9 (a) より  
 (b) 図 4-10 より

図 4-12、及び図 4-13 にそれぞれ図 4-11 (a)、(b) より再生した振幅分布、位相分布を示す。両図とも振幅分布が明確に再生されている。前節と同じく、図 4-13 の方が図 4-12 よりも高い空間周波数まで含んだ像となっているが、同時にノイズも強調されており、空間周波数拡張再生法の有効性を明確に示すにはやはり不十分なようである。

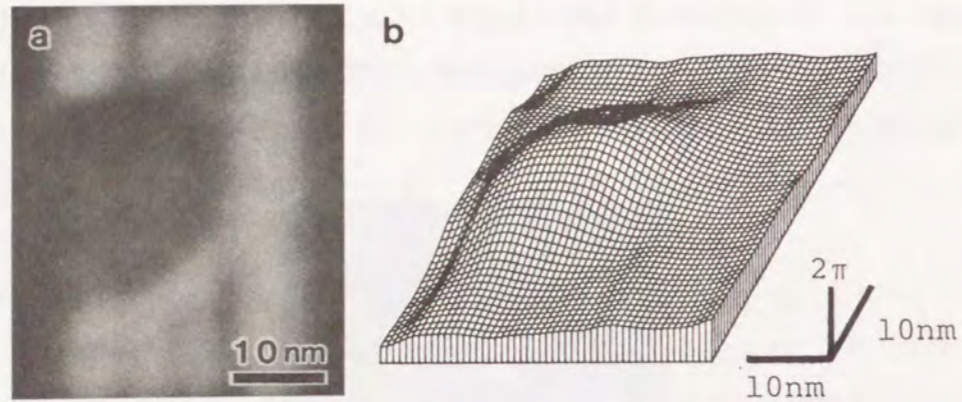


図 4-12 フーリエ変換再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

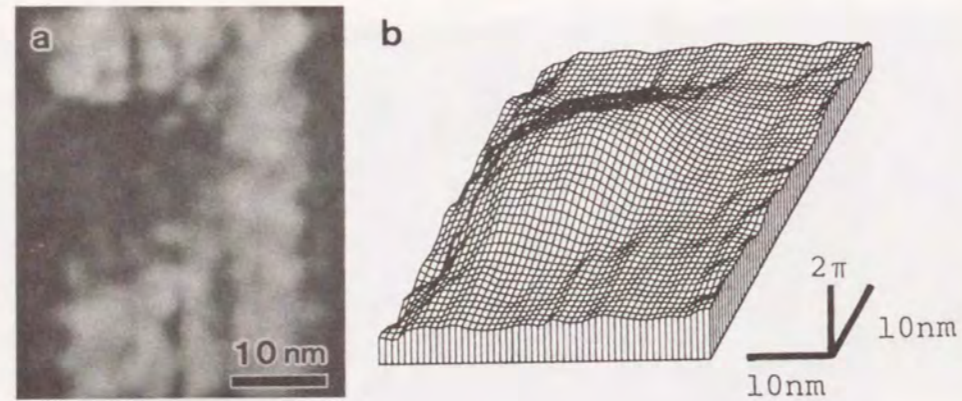


図 4-13 空間周波数拡張再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

#### 4-4-3 考察

本章での基礎的な実験では、空間周波数拡張再生法の従来のフーリエ変換再生法より優れた特徴を、再生像で顕著に示すには至らなかった。これは電子銃の輝度の不足のため、ホログラムの S/N 比が低く試料の十分な情報を特に高い空間周波数領域で得られなかったこと、結晶格子像のように十分に高い空間周波数を含んだ試料を用いることができなかったこと、などが原因として考えられる。しかしながら、図 4-6、図 4-11 のフーリエスペクトル中において 0 次スペクトルの消失によってこの空間周波数拡張再生法の持つ特徴が示されており、図 4-8 (a)、図 4-13 (a) で振幅分布が明確に再生されたことにより、この方法の可能性は十分に証明されていると考えられる。この方法は、再生像中に含まれる空間周波数を拡張できるとともに、振幅分布、位相分布のいずれの再生像においてもノイズとなっていたフレネル縞の影響を軽減できると考えられる。

本章では、物体波と参照波の位相関係を乱して得られたインコヒーレント強度分布なるものを照射光学系に交流磁界を印加することによって作りだし、これを従来のホログラムから直ちに減算するという処理を試みた。しかしながら、この実験のように照射電子線の入射方位に影響を与える場合、厳密には 2 枚の画像の間で結像光学系の透過関数、特に入射角に依存した相互透過係数 (T.C.C.) がわずかだけ異なり、結晶格子レベルの高分解能観察時に新たな artifact を生じせしめる可能性がある。

この空間周波数拡張再生方法において重要なことは、ホログラフィーの強度分布より物体波と参照波によるバックグラウンドの強度分布を除き、 $\phi(x,y)\cos(\eta(x,y)+2\pi R_0 x)$  で表わされる負の値を含んだ干涉縞の強度分布のみを抽出することである。そのためには干涉縞を失っただけの像を得ることが必要であり、他の全ての状態を変えことなく式 (4-1) の  $\cos$  関数の項が消失すればよいことになる。このための有効な手段の 1 つはホログラムの露光中に干涉縞を 1 周期分だけ移動させる方法である。これを式で表わすと、 $\theta$  が物体波と参照波の相対的な位相を表わすとして

$$I_{inc}(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + \int_0^{2\pi} 2\phi(x,y)\cos(\eta(x,y)+2\pi R_0 x + \theta) d\theta \quad (4-10)$$

$$= |\phi(x,y)|^2 + 1 \quad (4-7)$$

となる。

以下、この方法を実験的に実現する方法を2つ提案する。第1は、電子光学系内に Aharonov-Bohm 効果を利用した位相シフターを設置する方法である。これは、ベクトルポテンシャルを利用して物体波と参照波の相対的な位相を変化させる方法である。図 4-14 に概念図を示す。電子線バイプリズムのフィラメント内部に微小ソレノイドなどにより磁束を局在させ、磁束密度を変化させることによってベクトルポテンシャル、及び電子線の位相を変化させる。実験装置としては、Möllenstedt and Bayh (1962), Möllenstedt et al. (1982) によって行なわれた Aharonov-Bohm 効果の検証実験がよい例となる。第2の方法は、電子線バイプリズム自体をフィラメントに垂直な方向に、かつ光軸に対しても垂直な方向に機械的に移動させる方法である。図 4-14 (b) に概念図を示す。フィラメントの線径は  $\text{sub-}\mu\text{m}\phi$  のオーダーであるから、PZT などの圧電体により、フィラメントの線径の  $\frac{1}{10}$  程度移動させる事ができれば十分である。電子顕微鏡本体及びフィラメント自体に機械的振動を与えることがなければ、第2方法の方が実現は容易であろう。

いずれにせよ、空間周波数拡張再生法ではオンライン処理によるホログラムの取扱が必要であり、そのためにはより高輝度な電子銃が必要不可欠である。

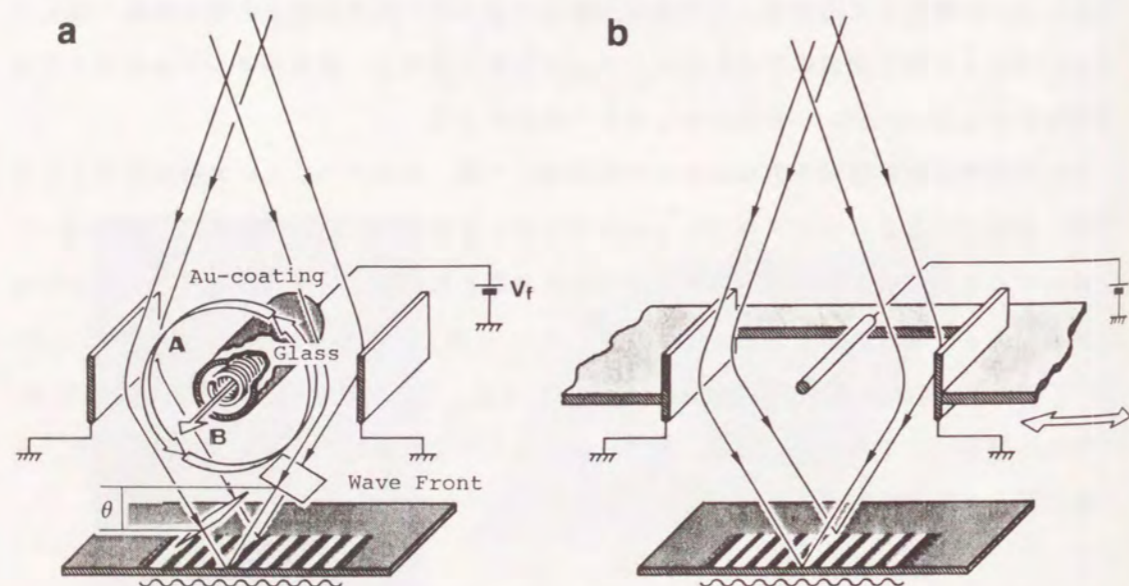


図 4-14 干渉縞のみを変位させる方法

(a) A-B 効果を利用する方法

(b) 電子線バイプリズムを機械的に移動させる方法

#### 4-5 結言

本章では、フーリエ変換再生法を応用した新しい空間周波数拡張再生法について説明し、その基礎的な実験の結果について述べた。結果は、この方法の高周波数領域再生の有効性を間接的に示しており、従来のフーリエ変換再生法と比較して3倍の再生像の分解能向上の可能性を示唆している。また、基礎実験を行なうに当たって電子線ホログラムのオンライン処理による再生システムを開発した。これにより、全く写真処理を必要としない電子線ホログラフィーが可能となった。

## 5-1 緒言

通常、電子線ホログラフィーで得られるイメージホログラフィーは、物体波の強度分布と、物体波の持つ位相分布に見合った位相だけ変調を受けた干涉縞からなる像であり、ホログラムはこのままで干涉顕微鏡像である。ホログラフィーの目的は、干涉縞の変調を量的に位相分布として表わすことに他ならない。従来より干涉縞を含んだ像に対しては縞解析法が有効な手段であり、演算処理により高精度に位相分布を検出することが可能である。

フーリエ変換によるイメージホログラムの再生の場合、縞を認識するのに用いる画素数はサンプリング定理より、縞1本当たり最小でも2画素が必要となる。経験的には精度良く再生像を得ようとするとき縞1本当たり4画素以上が必要である。本研究では 256 x 256 pixels にて画像処理を行なっているため、縞数 64 本程度が1画面の基準となる。大きな試料のホログラムを作成する場合、または試料中の高周波成分をもホログラムとして記録する場合干涉縞の本数を増やさざるを得ず、画像処理の際必要となる画素数もそれに伴って増加する。また、再生像の精度は1本の干涉縞に用いる画素数が増加すれば、ある程度までは向上するため、高精度の再生像を得ようとする必要となる画素数も増加する。最も大きな画素数により電子線ホログラムを再生した例としては、Lichte (1986) により 2048 x 2048 pixels を用いた例が報告されている。この時演算処理されたホログラム中の干涉縞の本数は約 200 本で、縞1本当たり約 10 画素が使用されている。現在行なわれている画像処理はミニコンピュータの容量や、入力、出力装置の能力を考慮すると 256 x 256、または 512 x 512 pixels の演算処理が一般的であり、1024 x 1024 pixels への対応は近年ようやく始まったばかりであり、それ以上の画素数による画像処理が一般化するにはまだ多少時間がかかるものと思われる。

他の電子線ホログラムの再生法として縞走査法を利用したものがある (Yatagai et al., 1987; Hasegawa et al., 1989)。これは、光学的に再生を行ない、再生物体波と参照波とを同じ光軸上に入射させた干涉顕微鏡像、すなわち、等位相線による像のうち、参照波の位相を相対的に  $\frac{\pi}{2}$  ずつ変化させた像を基に位相分布を検出する方法である。この場合高精度に調整された光学系が必要となる反面、ホログラム上で最も高周波である搬送空間周波数が既に再生段階で光学的に filtering されているため、画像処理装置の画素数

は通常のもので十分である。

本章で述べる再生方法は、モアレトポグラフィー (Takahashi, 1970) の手法を応用した縞走査法と同一原理に基づくものである。モアレトポグラフィーに用いられると同様な光学的参照格子を使用することにより、高度に調整されたコヒーレント再生光学系を必要とせず、かつフーリエ変換再生法であれば 1024 x 1024 pixels の画像処理システムを必要とするようなホログラムを 256 x 256 pixels で、しかもフーリエ変換再生法よりも短時間で高分解能に処理できる方法である (Harada et al., 1990b)。以下に実際の実験結果とともに述べる。また、さらに縞走査法を改良した格子移動法についても述べる。

## 5-2 原理

## 5-2-1 モアレトポグラフィーの応用による干涉顕微鏡像の作成

式 (1-3) と同様に一般的に電子線ホログラムの強度分布は以下のように表わされる。

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + \phi(x,y)\exp[i(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x)] + \phi(x,y)\exp[-i(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x)] \quad (5-1)$$

ここで  $\phi(x,y)$ 、 $\eta(x,y)$  はそれぞれ物体波の振幅分布、位相分布を表わす。x、y 座標はホログラム面上に取り、電子線バイプリズムのフィラメントは y 軸上に投影されていると仮定している。搬送空間周波数  $R_0$  は、式 (1-4) より

$$R_0 = \frac{\sin \alpha}{\lambda} \quad (5-2)$$

で与えられる。ここでは、 $\alpha$  は物体波と参照波の成す角、 $\lambda$  は電子線の波長である。式 (5-1) で表わされるホログラムと同じ空間周波数を持ち、cos 関数で表わされるような強度透過率分布を持った参照格子を考える。ホログラムとこの参照格子との成す方位角を  $\theta$

とおくと

$$I_{ref}(x,y,\Delta) = 1 + \frac{1}{2} \{ \exp[2\pi i(R_{0x}x + R_{0y}y - \Delta)] + \exp[-2\pi i(R_{0x}x + R_{0y}y - \Delta)] \} \quad (5-3)$$

$$R_{0x} = R_0 \cos \theta \quad (5-4)$$

$$R_{0y} = R_0 \sin \theta$$

で表わされる。ここで  $2\pi\Delta$  はホログラムと参照格子との間の相対的な位相ずれを表わす。この参照格子をホログラム上に重ね合わせると、合成された強度透過率分布は、

$$\begin{aligned} I'(x,y,\Delta) &= I(x,y) \cdot I_{ref}(x,y,\Delta) \\ &= (|\phi(x,y)|^2 + 1) \\ &\quad + \{ \phi \exp[i(\eta + 2\pi R_{0x}x)] + \phi \exp[-i(\eta + 2\pi R_{0x}x)] \} \\ &\quad + \frac{1}{2} (|\phi|^2 + 1) \{ \exp[2\pi i(R_{0x}x + R_{0y}y - \Delta)] \\ &\quad \quad + \exp[-2\pi i(R_{0x}x + R_{0y}y - \Delta)] \} \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[i\eta] \{ \exp[2\pi i((R_0 + R_{0x})x + R_{0y}y - \Delta)] \\ &\quad \quad + \exp[2\pi i(R_0 - R_{0x})x - R_{0y}y + \Delta] \} \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[-i\eta] \{ \exp[-2\pi i((R_0 + R_{0x})x + R_{0y}y - \Delta)] \\ &\quad \quad + \exp[-2\pi i(R_0 - R_{0x})x - R_{0y}y + \Delta] \} \end{aligned} \quad (5-5)$$

と表わされる。物体像  $|\phi|^2$  の空間周波数が搬送空間周波数と比べ、はるかに低い空間周波数領域に集中しているとき、 $R_0$  以上の空間周波数を適当な方法で filtering し取り除くと、

$$\begin{aligned} I'_{high-cut}(x,y,\Delta) &= (|\phi|^2 + 1) \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[i\eta] \exp[2\pi i((R_0 - R_{0x})x - R_{0y}y + \Delta)] \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[-i\eta] \exp[-2\pi i((R_0 - R_{0x})x - R_{0y}y + \Delta)] \\ &= |\phi|^2 + 1 + \phi \cos(\eta + 2\pi(R_0 - R_{0x})x + 2\pi(-R_{0y})y + 2\pi\Delta) \end{aligned} \quad (5-6)$$

を得る。ここで第2項の  $\cos$  関数はホログラムと参照格子との重ね合わせにより生じたモ

アレ縞を示し、その空間周波数  $R_m$  は

$$R_m = R_0 [2(1 - \cos \theta)]^{1/2} \quad (5-7)$$

である。モアレ縞の形状はホログラムに記録されていた物体波の位相分布  $\eta(x,y)$  に対応している。すなわち、式(5-6)で表わされる強度分布は第1章の式(1-7)と見比べれば明らかなようにこのままで干渉顕微鏡像となっている。その干渉顕微鏡像に対応するモアレ縞の間隔、及び方位は式(5-4)、式(5-7)に表わされるごとくホログラムと参照格子との成す方位角  $\theta$  の関数となっており様々に選ぶことができる。

$\theta=0$  の場合、すなわちホログラムの干渉縞と参照格子の縞が完全に重なる場合、式(5-6)は

$$\begin{aligned} I'_{high-cut}(x,y,\Delta) &= (|\phi|^2 + 1) \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[i\eta] \exp[2\pi i\Delta] \\ &\quad + \frac{1}{2} \phi \exp[-i\eta] \exp[-2\pi i\Delta] \\ &= (|\phi|^2 + 1) + \phi \cos(\eta + 2\pi\Delta) \end{aligned} \quad (5-8)$$

と簡単に表わされ、得られる強度分布は物体波の等位相線を表わすことになる。また、干渉顕微鏡像においては物体波と参照波との位相差によって決まる干渉縞の位置は、式(5-6)で表わされる強度分布においては、ホログラムと参照格子との相対的な位相  $\Delta$  によって可変であることがわかる。

この方法は参照格子をホログラムに重ねるだけで物体波の位相分布の凹凸関係やその大きさに至るまでの情報を、干渉顕微鏡像による観察と同じように極めて容易に得ることができる。参照格子については第5-3節で述べるが、ホログラム作成時に試料を取り除いた干渉縞のみを1枚余分に撮影しておくか、ホログラム上で試料の存在しない部分を参照格子として用いればよい。

5-2-2 縞走査再生法の原理

ホログラムの再生は、記録された物体波の位相分布を検出するのがその主たる目的であり、式(5-8)で表わされる物体波の等位相線を表わす強度分布について考える。

式(5-8)は強度分布中の1点において、位相差  $\Delta$  の変化に対して強度は正弦波的に変化し、その正弦的变化の初期位相が物体波の位相分布を与えることを意味している。現実の再生実験において参照格子は必ずしも正弦波的とは限らず、式(5-8)には  $\Delta$  に関する高周波成分を含む可能性がある。実験で求められた  $I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta)$  を位相差  $\Delta$  についてフーリエ級数展開すると

$$I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta) = \frac{C_0}{2} + \sum_j C_j \cos 2\pi j \Delta + \sum_j S_j \sin 2\pi j \Delta \quad (5-9)$$

$$C_j(x,y,\Delta) = \frac{2}{N} \sum_{n=0}^{N-1} I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta) \cos 2\pi j \frac{n}{N} \quad (5-10)$$

$$S_j(x,y,\Delta) = \frac{2}{N} \sum_{n=0}^{N-1} I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta) \sin 2\pi j \frac{n}{N}$$

である。N は位相差を N 段階に変化させることを意味し、演算処理を行なう画像の枚数を表わす。sin、cos 関数の直行性より直ちに、j=1 の基本項は物体波の複素振幅の実部と虚部を表わすことがわかる。

$$C_1(x,y) = \frac{2}{N} \sum_{n=0}^{N-1} I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta = \frac{n}{N}) \cos 2\pi \frac{n}{N} = \phi \cos \eta \quad (5-11)$$

$$S_1(x,y) = \frac{2}{N} \sum_{n=0}^{N-1} I'_{\text{high-cut}}(x,y,\Delta = \frac{n}{N}) \sin 2\pi \frac{n}{N} = -\phi \sin \eta$$

すなわち、sin、cos 関数の値を重みとし、それぞれ N 枚の画像を加算すれば実部及び虚部の分布関数を得ることになる。位相を変化させる階数 N が大きいほど得られる物体波の複素振幅の精度が高くなる。しかしながら、演算処理に要する時間も長くなるため、実用的には適当な階数で止める必要がある。N=4 の時は用いる画像の枚数は 4 枚であるが、相対

的な位相変化  $\Delta$  は  $\frac{\pi}{2}$  ずつであり、式(5-11)に基づく sin、cos 関数の重みの値は 4 回の加算中にそれぞれ 2 回ずつゼロとなる。すなわち、事実上演算量は本来必要とされる  $\frac{1}{3}$  で済み、N=3 の場合の  $\frac{1}{2}$  でよいことになる。本研究の実験においては、この N=4 の場合の 4 枚の画像の演算処理を行なうこととした。具体的に表わすと、

$$\begin{aligned} \phi \cos \eta &= \frac{1}{2} \{I'_{\text{high-cut}}(\Delta=0) - I'_{\text{high-cut}}(\Delta = \frac{1}{2})\} \\ \phi \sin \eta &= \frac{1}{2} \{I'_{\text{high-cut}}(\Delta = \frac{3}{4}) - I'_{\text{high-cut}}(\Delta = \frac{1}{4})\} \end{aligned} \quad (5-12)$$

となり、それぞれ 2 枚の画像の減算処理のみにて複素振幅の実部、虚部が求まる。これより物体波の振幅分布、位相分布は

$$\begin{aligned} \phi(x,y) &= [C_1^2 + S_1^2]^{1/2} \\ \eta(x,y) &= -\text{Tan}^{-1} \frac{S_1}{C_1} \end{aligned} \quad (5-13)$$

で求められる。以下の位相差増幅などの手法はフーリエ変換再生法の場合と全く同じである。

5-3 実験装置及び方法

図 5-1 にオフライン縞走査法の再生装置の模式図を示す。フィルム上に撮影されたホログラムの上に参照格子を置き、合成された画像を拡散板を通して観察し TV カメラを通じてミニコンピュータに入力する。参照格子はホログラムの上に接するように置かれ、x、y 方向及び方位角  $\theta$  はいずれもマイクロメーターにて微動できる。その移動精度は、数ミクロン程度である。この参照格子には、記録したホログラムのうち試料の存在しない干渉縞のみが記録されている部分を用いた。

電子線バイブリズムフィラメントの線径などに変化がない限り、フィルムへの露光量、現像条件などはホログラムと全く同じであり、参照格子として用いるには最適と考えられ



る。また、ホログラムと参照格子の位置合わせについてはマイクロメーターによる微動で十分な精度が得られるよう、写真処理により干渉縞の間隔を 1 mm 前後にまで拡大した。拡散板は高周波カットフィルターとして参照格子の上方に配置された。拡散板は対象としている画像との距離を大きくするほど、透過する最高空間周波数が小さくなる性質があるため、ホログラムとTVカメラとの間で拡散板を置く位置を調整することにより、ミニコンピュータに入力する画像の空間周波数を制御した。具体的には、ホログラム及び参照格子上の干渉縞が見えなくなるような位置を選ぶことによって、搬送空間周波数  $R$ 。以上の高周波を取り除いた。入力した画像の演算処理は、ミニコンピュータ VAX Station 2000 にて処理画素数 256 x 256 pixels で行なった。

ホログラムの作成記録に用いた透過型電子顕微鏡は、タングステン熱電界放射型電子銃を搭載した JEM-100C-FEG、加速電圧は 80 kV である。試料には MgO 微結晶を用いた。

演算処理画素数が 256 x 256 pixels であるため、干渉縞数、数百本を含むホログラムはフーリエ変換法では再生不可能であるが、この縞走査再生法ではホログラムを入力でき

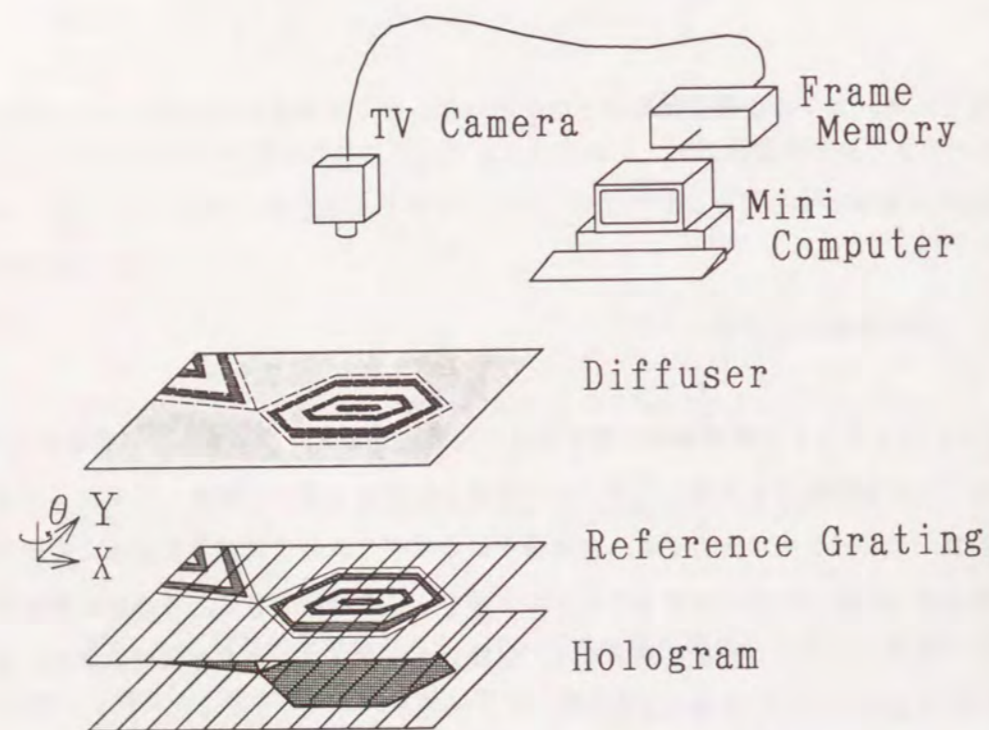


図 5-1 オフライン縞走査再生法画像処理システム

れば再生可能である。

本研究の実験に置いては上記のようにフーリエ変換法では再生できないようなホログラムの再生を試みるとともに、フーリエ変換再生法との比較のため、干渉縞の本数が 60 本程度となるホログラムも合わせて再生し、再生像についての比較検討を行なった。

#### 5-4 結果及び考察

##### 5-4-1 縞走査再生法による再生結果

図 5-2 に MgO 微結晶の電子線ホログラムを示す。これは図 3-25 と同じものである。電子線バイプリズムフィラメントへの印加電圧は 40 V、干渉縞の試料上へ換算した間隔は約 0.92 nm、総本数は約 300 本である。参照格子移動時に十分な精度が得られるよう、ホ

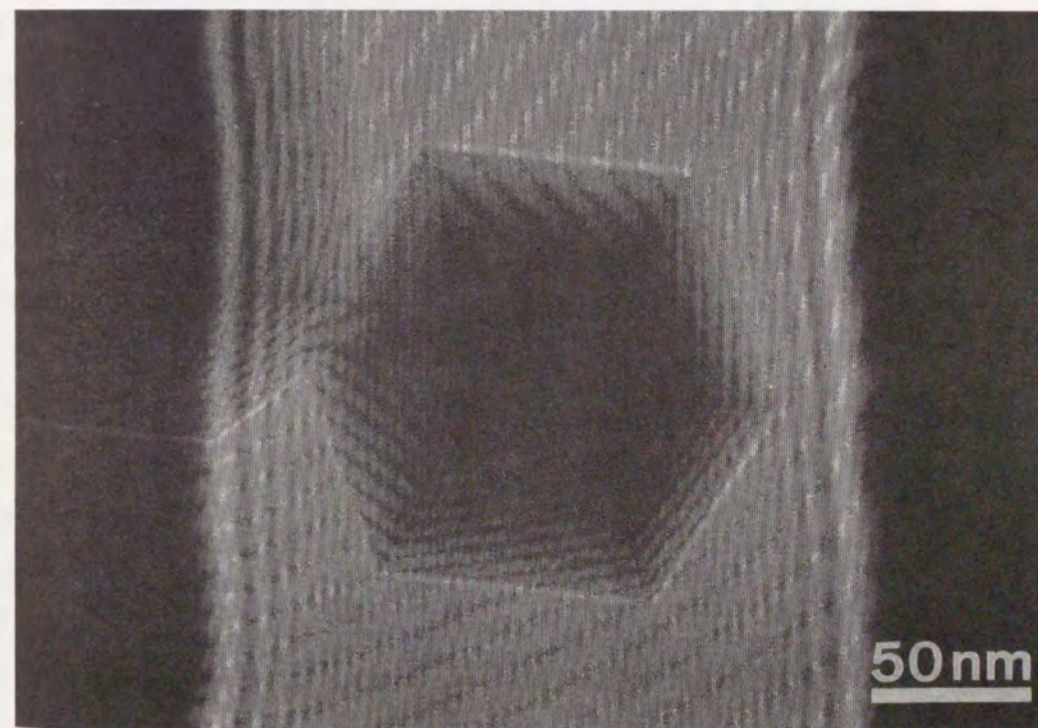


図 5-2 MgO 微結晶の電子線ホログラム

プログラム、参照格子共に写真処理により拡大し干渉縞の間隔は約 0.70 mm とした。256 x 256 pixels で演算処理を行なう画像処理システムであるため、このプログラムの場合干渉縞 1 本当りに使用できる画素数は 0.85 pixels である。このプログラムをフーリエ変換法によって再生しようとするれば、サンプリング定理により少なくとも 1024 x 1024 pixels で演算処理できる画像処理システムが必要である。実際に拡大焼付けを行なったプログラム、参照格子の大きさは約 250 mm になり、TVカメラとプログラムとの距離は約 3.5 m を要した。

図 5-3 に式 (5-8) において、プログラムと参照格子との位相を相対的に  $\frac{\pi}{2}$  ずつずらせた像 4 枚を示す。すなわち、(a)、(b)、(c)、及び (d) はそれぞれ相対位相  $\Delta=0$ 、 $\frac{\pi}{2}$ 、 $\pi$ 、 $\frac{3\pi}{2}$  の時の干渉顕微鏡像に対応しており、等位相を示すモアレ縞が相対位相  $\Delta$  の変化に応じて  $\frac{1}{4}$  ずつ移動していくのがわかる。このモアレ縞の位置、及び移動による変化の具合が物体波の位相分布を示している。また、このモアレ縞はかなり低い

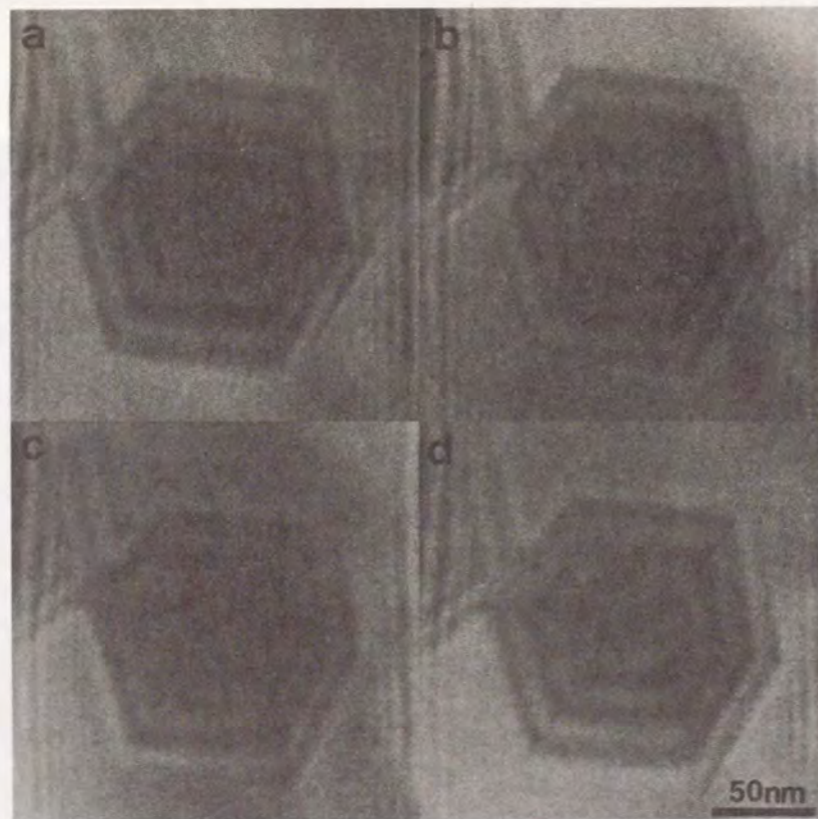


図 5-3 モアレトポグラフィーを応用した干渉顕微鏡像  
(a)  $\Delta=0$ , (b)  $\Delta=\frac{\pi}{2}$ , (c)  $\Delta=\pi$ , (d)  $\Delta=\frac{3\pi}{2}$

空間周波数により構成されてる縞であるため、その変化もゆるやかであり 256 x 256 pixels の画素数で十分精度良く取り扱えると考えられる。演算処理としては処理画像数 4 枚の場合 ( $N=4$ )、式 (5-12) に示したごとく図 5-3 (a)、(c)、及び図 5-3 (d)、(b) をそれぞれ減算し、物体波の複素振幅の実部と虚部を得る。演算そのものは 2 つの整数値の減算を繰り返すのみであるから短時間に行える。参照格子の縞間隔がプログラムの干渉縞間隔と異なるような不適切な参照格子を用いた場合、または適切な参照格子であってもプログラムとの方位角  $\theta$  がゼロでなかった場合、物体波の位相分布に対応しないモアレ縞を干渉顕微鏡像として合成された画像中に生じさせることになり、再生された位相分布に artifact を招く結果となる。方位角  $\theta$  のみが異なる場合は式 (5-6)、(5-7) より  $\theta$  の値が既知であれば比較的容易に補正が可能であるが、他の場合、特に参照格子の縞が局所的に他の部分と異なっている場合には、この補正はほぼ不可能である。縞走査再生法の場合、適切な参照格子を用いることが肝要である。

図 5-4 に図 5-2 のプログラムより再生された振幅分布、位相分布を示す。図 5-4 (a) に置いて MgO 微結晶の内部ほど、黒いコントラストとなっているのは結晶の厚さに対応した振幅コントラストである。また、MgO 微結晶の形状に沿って等厚干渉縞のような縞が形成されているが、これは図 5-3 各図のモアレ縞とその本数が対応しているところから、参照格子の移動精度が不足していたため、または写真処理によるコントラストの変調から図 5-3 各図のモアレ縞そのもののコントラストが式 (5-8) に表わされるような  $\cos$  関数だけでなく、その 2 倍、3 倍の高周波まで含んだ関数で表わされる幅の狭いモアレ縞となっていたためと推測される。すなわち、縞走査再生法においては、写真処理の非線形性も再生された画像に artifact を生じさせる可能性がある。この解決方法としては式 (5-11) に基づいて取り扱う画像数  $N$  を十分大きくとり、正確に移動させればよい。または、後述する格子移動法もこの解決策の 1 つである。しかしながら、振幅分布については、その分布の形状を強度分布としてプログラムによらず電子顕微鏡像より直接知ることができると大きな問題にはならないと思われる。図 5-4 (b) は 2 倍に位相差増幅を行なった位相分布であり、縞 1 本の位相変化は  $\pi$  に対応している。 $\tan^{-1}$  のアルゴリズムによって作成した等位相線であるため、第 1 章で述べたように縞のコントラストの変化の方向を考慮して MgO 微結晶内部で位相が大きくなるような分布であることがわかる。図 5-4 (c) は位相分布を波面として表わしたものである。(b)、(c) どちらの位相分布においても MgO 微結晶の辺の部分が良く表わされている。また、(b)、(c) とも図の右側においてパツ

クグラウンドの位相分布に緩やかではあるが比較的大きな変化が認められる。これはホログラムと参照格子に相対的に干涉縞の局所的に異なる部分が存在したための artifact と推測される。この部分は、バイプリズムフィラメントの端にも近いため、フィラメント形状の局所的な変化や、フィラメントに付着した汚れのわずかな帯電が原因と考えられる。この artifact に対する解決策として、二重露光法を応用する方法が考えられる。すなわち、オフライン縞走査再生法の場合は、ホログラムを記録した直後に試料を移動させ、全く同じ条件にて干涉縞のみを別に記録しておく。露光量、現像条件に注意すれば、コントラストのみならず artifact の原因となるフィラメントに起因した干涉縞の位置の変調までホログラムと全く同じ参照格子を得ることができる。このホログラムと、参照格子の2

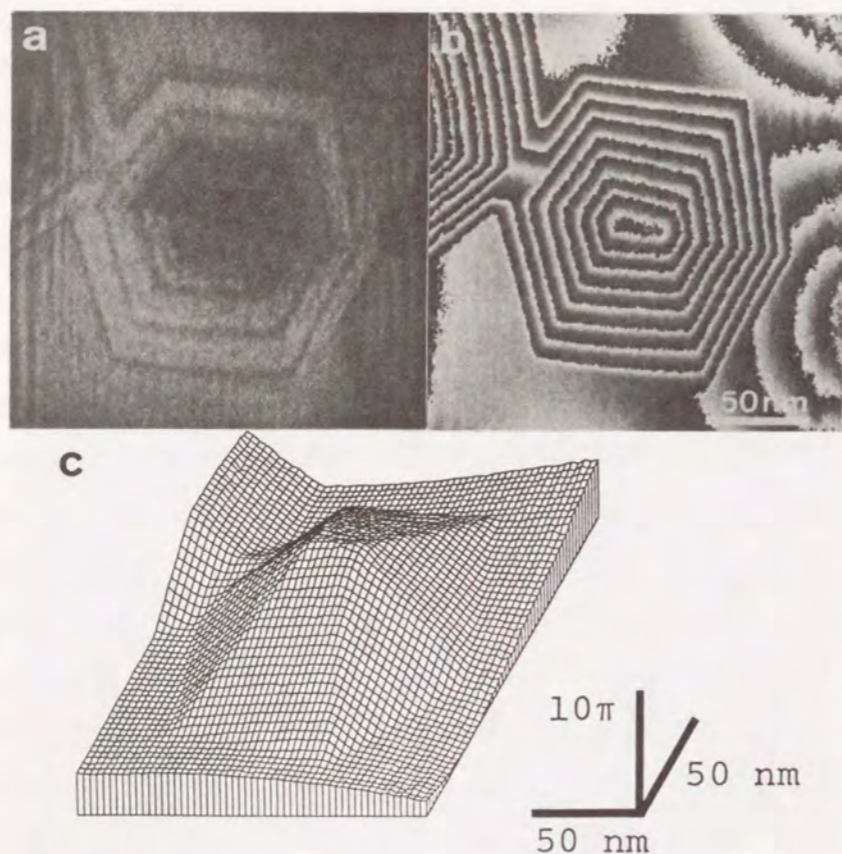


図 5-4 MgO 微結晶の再生像  
 (a) 振幅分布, (b) 位相分布 (2 倍位相差増幅、 $\text{Tan}^{-1}$  像)  
 (c) 位相分布 (波面表示として)

枚を用いれば少なくともフィラメントの形状や、フィラメント上の局所的な微小チャージアップが原因となった artifact は除くことができる。さらに後述するオンライン縞走査再生法の場合は、参照格子にホログラム記録時の干涉縞を用いることが不可能なため、1枚のホログラムから artifact を含んだままの位相分布を再生しておき、次に試料を移動させ、バックグラウンドの位相分布を干涉縞に対して縞走査再生法を行ない再生する。この時干涉縞は、いわば artifact のホログラムに相当する。この2枚の再生位相分布を減算し、artifact を除いた位相分布を再生できる。

#### 5-4-2 フーリエ変換再生法との比較

縞走査法による再生像と、フーリエ変換法による再生像とを比較するため、図 5-5 に示すホログラムを改めて作成した。これもまた MgO 微結晶を試料として用いており、大きさ

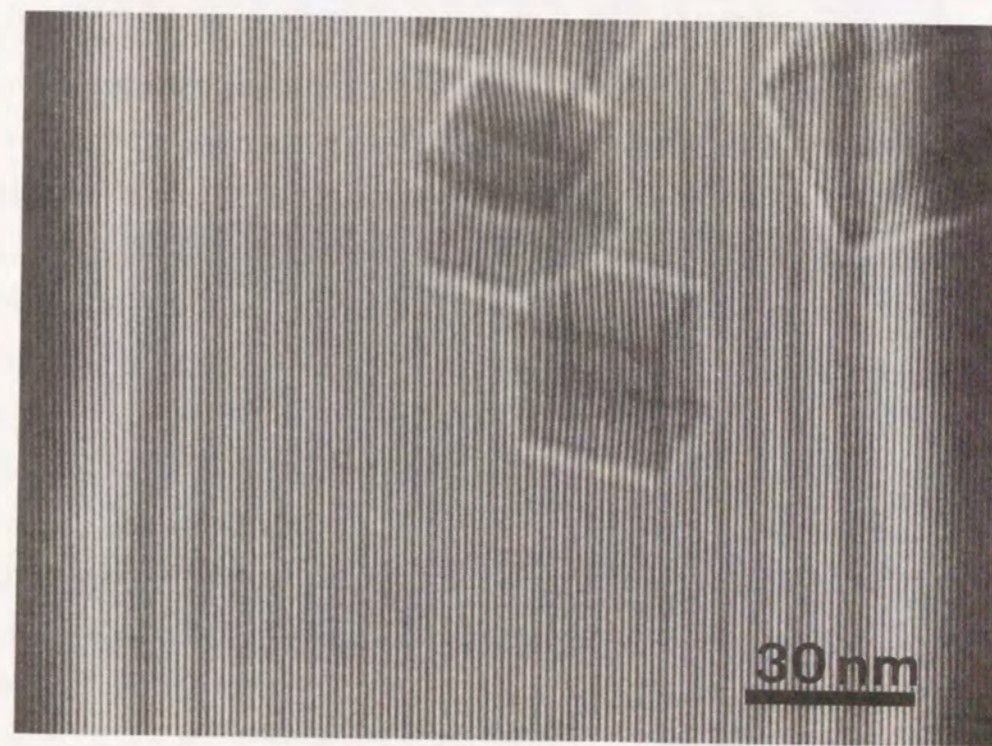


図 5-5 MgO の電子線ホログラム

は図 5-2 の微結晶と比べて  $\frac{1}{5}$  程度の小さなものである。そのため、少数本の干渉縞で微結晶全体のホログラムを得ることができる上、干渉領域の中央部分の電子線パイプリズムフィラメントの端から生じるフレネル縞の影響や、図 5-4 の位相分布に現われた artifact の影響の小さい部分のみを使用して作成できる。フィラメントへの印加電圧は 20 V、干渉縞の間隔は試料上に換算して約 1.36 nm であった。MgO 微結晶はもともと弱振幅物体である上、図 5-5 の MgO 微結晶はその大きさそのものが小さいため、振幅コントラストが小さく、そのため、約 200 nm の under-focus 条件でホログラムの記録を行ない、MgO 微結晶のコントラストを強める工夫を行なった。縞走査再生法のため写真処理による拡大を行ない、干渉縞の間隔を約 1.85 nm とした。参照格子には前節と同様、同時に記録された干渉縞を用いた。図 5-5 のホログラムのうち、MgO を中心に約 60 本の干渉縞からなる部分をホログラムとしてミニコンピュータに入力した。これは干渉縞一本当たり 4.3 pixels を使用しており、フーリエ変換法にて再生するには十分な状態である。

図 5-6 に縞走査法による振幅分布、位相分布の再生像、図 5-7 にフーリエ変換法による振幅分布、位相分布の再生像を示す。フーリエ変換再生法では、搬送空間周波数  $R_0$  の  $\frac{1}{2}$  までを再生に使用している。両再生法とも、図 5-6 (a)、図 5-7 (a) に示す振幅分布のコントラストは小さいものでしかない。しかしながら微結晶の形状は良く再生されている。位相分布は、図 5-6 (b)、図 5-7 (b) 共に 4 倍に位相差増幅されて再生されており、等位相線の間隔は  $\frac{\pi}{2}$  の位相変化に対応する。両位相分布像において、バックグラウンドの位相の変化の方向が異なっているが、これは縞走査再生法ではホログラムと参照格子の方位角のわずかなずれ、フーリエ変換再生法では画像データのデジタル化に伴って生じる、フーリエ変換面での 1 次回折スペクトルのピーク位置の単位画素数以下のわずかなずれによるものと考えられる。現時点では両者ともこれ以上の精度で取り扱うには困難が大きいと思われる。上記の点を除けば、2 種類の再生法で得られた再生像は振幅分布 (図 5-6 (a)、図 5-7 (a))、位相分布 (図 5-6 (b)、図 5-7 (b)) 共に良く一致しており、縞走査法の電子線ホログラフィーにおける再生法としての有効性を示している。

図 5-6、図 5-7 の 4 枚の再生像全てにフレネル縞の影響が見られるが、特に縞走査法による振幅分布の再生像 (図 5-6 (a)) に顕著である。位相分布よりも振幅分布の方にフレネル縞の影響が残存する傾向は図 5-4 にもみられたが、これは同じフレネル縞の影響が記録されている干渉縞を参照格子として用いている事に原因があると思われる。しかしなが

ら前述のように、振幅分布については強度分布として電子顕微鏡像よりその分布の様子を知ることができるため、位相分布が得られれば電子線ホログラフィーの再生法としての意義は大きいと考えられる。

図 5-6 と図 5-7 を比較すると図 5-6 の方がより高い空間周波数まで含んだ像となっている。これは、フーリエ変換再生法では完全な位相物体でない限り、0 次回折波である自己相関スペクトルを除去するため、そのスペクトル分布の広がりだけ小さな空間周波数領

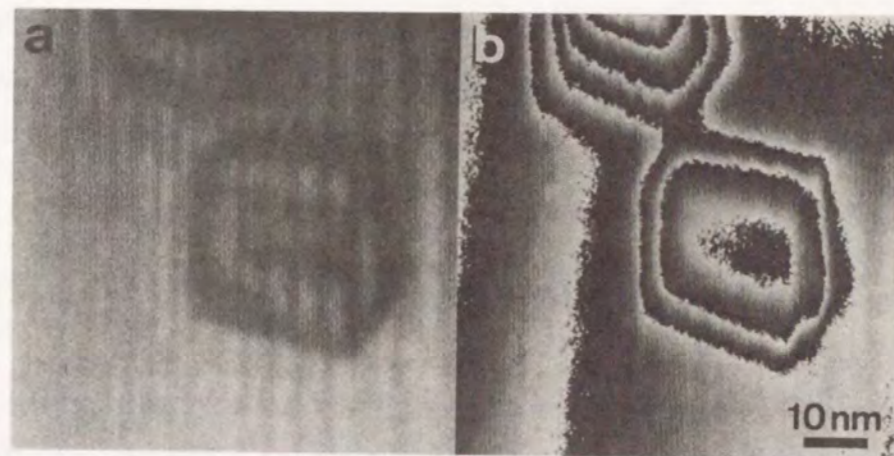


図 5-6 縞走査再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

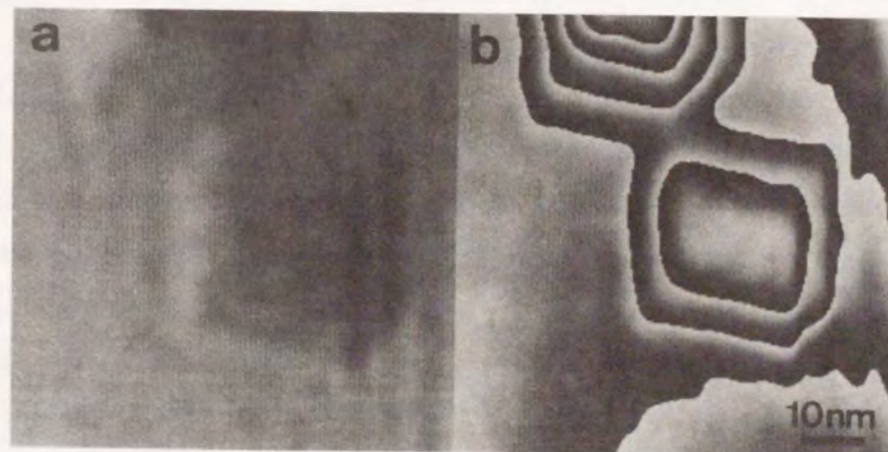


図 5-7 フーリエ変換再生法による再生像  
(a) 振幅分布, (b) 位相分布

域に限って像再生を行わなければならない、搬送空間周波数  $R_0$  の  $\frac{1}{2}$  または  $\frac{1}{3}$  がその再生画像に含まれる空間周波数の最大値となる。一方、縞走査再生法では干渉縞が消えさえすれば良く、原理的には再生像に搬送空間周波数  $R_0$  まで用いることができる。つまり、縞走査再生法は前章で述べた空間周波数拡張再生法に匹敵する高い分解能を持った再生法であると言える。

画像データ入力後、再生像を得るまでの演算処理に要する時間を比較すると、縞走査法はフーリエ変換法の約  $\frac{1}{4}$  の処理時間しか必要としなかった。フーリエ変換法では2回のフーリエ変換を必要とするのに対し、縞走査法では2回の減算処理で済むからである。この縞走査法は高輝度電子銃と高感度カメラを用いた場合、フーリエ変換法よりもより実時間性に富んだ再生方法であろう。

#### 5-4-3 オンライン縞走査実時間再生法について

ホログラフィーは一般的に2回の写真処理を必要とするため実時間性に欠ける。もちろん、例えば電子線ホログラフィーの場合、前章で述べたように高輝度電子銃と高感度カメラを用いたオンライン処理システムを構成し、写真処理無しにホログラムを高速コンピューターに入力し、高速フーリエ変換を行えば準実時間での再生像観察は可能である。しかし縞走査法であれば高速コンピューターの  $\frac{1}{4}$  程度程度の演算速度のコンピューターで、しかも前節に述べた理由から、より高分解能の再生像を同じ準実時間で観察できる可能性がある。その方法について述べる。

高輝度電子銃、高感度TVカメラは縞走査再生法にとっても必要不可欠である。高感度TVカメラのシンチレーターに参照格子を切る、またはシンチレーター上に参照格子を重ねる。例えば前章の実験で用いた Model 622 TVカメラは 20 本/mm という分解能であるから、これを上回る 30 本/mm のグレイティングをシンチレーターに切れば、もはやTVカメラはこの格子縞を分解できない。このシンチレーター上に 30 本/mm の干渉縞を持つホログラムを投影すれば、モアレ縞による干渉顕微鏡像のみがTVカメラを通じて再生処理システムに入力されるはずである。その様子を図 5-8 にブロック図として示す。

シンチレーター、もしくはシンチレーター上に作られた参照格子を  $x$  軸方向に移動させ、

ホログラム上の干渉縞との相対位相差  $\frac{\pi}{2}$  ごとに4枚の画像をミニコンピュータに入力することができれば、以下の手順は本章で述べた通りである。この方法にて得られる像の分解能は、TVカメラのサンプリング定理により規定されるものであって、ホログラム上の干渉縞に依存するものではない。

シンチレーター上の参照格子とホログラム上の干渉縞を合わせる方法については、モアレを観察しながらであれば、かなりの高精度で合わせることができると考えられる。また、方位角  $\theta$  に関しては、シンチレーターに  $x$ 、 $y$  軸方向と同様に微動回転機構を設ける、電子線バイプリズムに回転機構を加える、あるいは電子線バイプリズムより下段の中間レンズ、投影レンズ等の拡大レンズによる電子顕微鏡像(ホログラム)の回転を利用すればよい。この時生じる倍率の変化は問題とならないであろう。もし問題となる場合は、中間

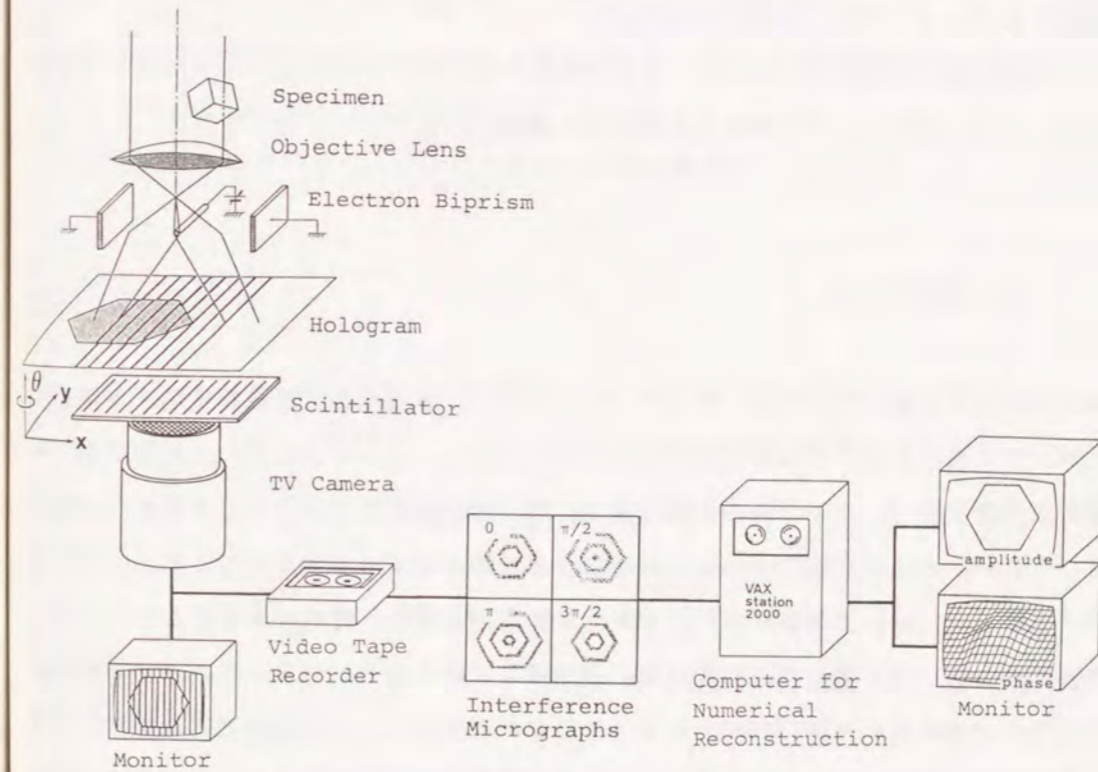


図 5-8 オンライン縞走査実時間再生処理システム

レンズ、投影レンズの2段のレンズ系を用いて補正すればよい。むしろ微妙な調整についてはレンズ系による回転を利用した方が、装置の振動などの問題が生じず適切だと推定される。

このように、シンチレーター上の参照格子を  $\frac{\pi}{2}$  ずつ移動させて得られた4枚の画像を再生処理システムに入力することにより、準実時間でしかも高い分解能を有したホログラムの再生が可能になると考えられる。シンチレーターに直接格子縞を切ってしまった場合、通常の電子顕微鏡像を観察する際にもモアレ縞が発生してしまうが、シンチレーターの交換機構あるいは、シンチレーターを観察中連続的に振動させることにより解決されるであろう。

他の方法として、コンピューターの内部に参照格子に対応した重み関数を用意しておくことも可能であるが、この場合は演算量が4倍増える上、何らかの方法で参照格子の周波数成分を除去しなければならず再生像の分解能は低下する。この場合は次節で述べるホログラム上の干涉縞を移動させながら、それに合わせて参照格子も移動させる格子移動法が、高分解能化にとって有効となるであろう。

十分に高輝度な電子銃さえあれば、現在の技術レベルで十分に上述のオンライン縞走査再生システムを実現し、準実時間での再生像の観察が可能であると考えられる。

## 5-5 格子移動再生法

縞走査再生法では、本章で述べたようにモアレ縞による干涉顕微鏡像を使用する場合でも、第1章で述べた光学再生を併用する場合においても、ホログラムとして記録されている搬送空間周波数  $R_0$  の干涉縞が不要であり、なんらかの方法によってこの縞を除かなければならない。このためホログラムの画像は全体に高周波成分を除かれてしまう。モアレトポグラフィーにおいては照射格子と参照格子を同期を取り、露光中に移動させてモアレ縞のみを残し格子縞を消す格子移動法が初期の頃より行なわれている。この格子移動法のホログラムへの応用は生田(1989)によって行なわれており、実時間及び高周波成分を含んだ画像再生に対してよい結果を得ている。電子線ホログラムで行なわれた例はまだないため、ここではその原理と方法について述べる。

モアレトポグラフィーにおける照射格子がホログラムに対応するため、ホログラム記録

光学系自体に干涉縞に変調を与えられる機構が必要となる。物体波、または参照波のどちらかに任意に位相変調を与えられるものとし、その位相量を  $2\pi\Delta_0$  とおくと電子線ホログラムの強度分布は、式(5-1)と同様に、

$$I(x,y) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + \phi(x,y)\exp[i(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_0)] + \phi(x,y)\exp[-i(\eta(x,y) + 2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_0)] \quad (5-14)$$

と表わされる。同様に参照格子の強度分布を

$$I_{ref}(x,\Delta) = 1 + \frac{1}{2} \{ \exp[2\pi i(R_0 x + \Delta_r)] + \exp[-2\pi i(R_0 x + \Delta_r)] \} \quad (5-15)$$

とする。ここで、 $2\pi\Delta_r$  は参照格子に与えられる任意の位相量を表わす。但し、簡単のため参照格子の空間周波数はホログラムと全く同じで、かつ  $y$  軸に対するずれはなく、式(5-3)において  $R_{0x}=R_0$ 、 $R_{0y}=0$  を仮定している。

この参照格子をホログラムに重ねた場合の合成強度分布  $I'(x,y)$  は

$$I'(x,y,\Delta_0,\Delta_r) = I(x,y) \cdot I_{ref}(x,\Delta) = |\phi(x,y)|^2 + 1 + \phi \exp[i(\eta + 2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_0)] + \phi \exp[-i(\eta + 2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_0)] + \frac{1}{2} (|\phi|^2 + 1) \{ \exp[i(2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_r)] + \exp[-i(2\pi R_0 x + 2\pi\Delta_r)] \} + \frac{1}{2} \phi \{ \exp[i(\eta + 2\pi(2R_0)x + 2\pi(\Delta_0 + \Delta_r))] + \exp[-i(\eta + 2\pi(2R_0)x + 2\pi(\Delta_0 + \Delta_r))] \} + \frac{1}{2} \phi \{ \exp[i(\eta + 2\pi(\Delta_0 - \Delta_r))] + \exp[-i(\eta + 2\pi(\Delta_0 - \Delta_r))] \} \quad (5-16)$$

となる。ホログラムの干涉縞と参照格子の相対的な位相ずれを  $2\pi\Delta = 2\pi(\Delta_0 - \Delta_r)$  で表わし、この位相差を保ったまま、 $\Delta_0$ 、 $\Delta_r$  の両方を同時に1周期変化させ画像積分をとると、

$$I'_{\text{total}}(x, y, \Delta) = \int_0^1 I'(x, y, \Delta_0) d\Delta_0$$

$$= |\phi|^2 + 1 + \phi \cos(\eta + 2\pi \Delta) \quad (5-17)$$

を得る。これは、式(5-6)で表わされた干渉顕微鏡像と全く同じものであるが、ホログラムの搬送空間周波数  $R_0$  には全く依存せず、振幅分布、及び位相分布には空間周波数 filtering 処理が全く行なわれていないことに注意すべきである。式(5-17)以降の手順は縞走査再生法と同様である。しかしながら、干渉縞1周期分の連続画像積分を取っており、たとえホログラムの干渉縞、及び参照格子に高周波成分を含む場合においても式(5-17)は成立する。従って式(5-11)に基づき多数の画像を演算処理する必要はなく、 $N=4$  として、相対位相差  $2\pi \Delta$  を4段階に変化させて、その各々の場合にホログラム及び参照格子の干渉縞を1周期ずつ移動させ画像積分し4枚の干渉顕微鏡像を得、これらに式(5-12)の演算を施し、物体波の複素振幅の実部、虚部を求めればよい。

この格子移動再生法は、ホログラム自体に変調を加えることを必要とするため、実時間再生に対応した方法である。ホログラムの干渉縞に変調を加える具体的な方法は既に第4章で述べた Aharonov-Bohm 効果を利用する方法、電子線バイプリズムを動かす方法が考えられる。Aharonov-Bohm 効果を利用する方法は、本章で述べた物体波、及び参照波の位相に直接変調を加える方法である。電子線バイプリズムを動かす方法は、電子線の位相に対して変調を与えるものではないが、結果的には同じ効果を得る。参照格子に関しては、シンチレーターに格子縞を切る、またはシンチレーター上に参照格子を重ねればよい。参照格子の間隔が細くなり処理画素数を上回った場合は、搬送空間周波数  $R_0$  を除去する必要がなくなり、本章で述べた縞走査再生法も格子移動再生法も全く同じ結果を得る。しかしながら格子移動法では極端な場合、再生を行なう範囲内にホログラフィーの干渉縞が極小数しか存在しない場合でも再生が可能であり、高分解能電子線ホログラフィーを行なう場合でも電子銃の輝度に対する要求は小さくて済むと考えられる。また、このような場合には、もはやシンチレーターに格子縞を切る必要はなく、外部画素処理システムに電子的な乗算器を追加することで代用可能である。

## 5-6 結言

本章では、縞走査法に基づく振幅分布、位相分布の再生方法について述べた。特に、ホログラムと同じ空間周波数からなる参照格子を用い、モアレ縞を発生させればそれが直ちに干渉顕微鏡像に対応しており、モアレトポグラフィの技術を応用すれば、従来高度に調整されたコヒーレント光学系を必要としていた縞走査再生法が、参照格子の  $x$ 、 $y$ 、 $\theta$  微動機構のみにて再生できることを実験的に示した。その過程で、縞走査再生法においてはフーリエ変換法では再生できない多数本の干渉縞を含んだホログラムから再生が可能である事も実験的に示した。また、フーリエ変換法と比較して原理的には先の空間周波数拡張再生法と同様に、高分解能化に対応した再生方法であること、しかもフーリエ変換法より演算処理に要する時間が  $\frac{1}{4}$  程度で済むことを述べ、実時間再生法としての縞走査法の可能性について考察した。また、その実現のための具体的な方法についての提案を行なった。最後に、縞走査再生法を改良し干渉縞の空間周波数に対する要求が全く無く、準実時間再生に対応した格子移動再生法について述べた。

## 6-1 緒言

電子顕微鏡はその発明後わずかの間にウイルスの発見や結晶格子欠陥の存在の確認など、光学顕微鏡では成し得なかったすばらしい成果を上げた。しかし、光学顕微鏡では分解能はその波長レベルに達しているのに対し、電子顕微鏡では波長よりもはるかに大きなところで限界に突き当たっている。電子線の波長は平均的な原子の大きさよりも約2桁も短いものにも拘らず、1個の原子を観察できたという報告はきわめて少ない (Crewe et al., 1970; Formanek et al., 1971; Crewe, 1979; Takayanagi et al., 1987)。しかも、暗視野法によるなど特殊な条件下での観察である (Hashimoto et al., 1971, 1973)。これは、そもそも電子レンズには凹レンズが存在せず (Scherzer, 1936)、光学顕微鏡のように凹レンズと凸レンズを組み合わせることによって球面収差を相殺できないところに原因がある。電子顕微鏡開発当初より長年にわたって球面収差そのものの小さいレンズを作る努力も払われてきたが現在のところ点分解能で 0.1 nm 程度であり、ポールピースにコイルで発生させた磁界をヨークを通じて導入するという方法は技術的に、行くところまで行きつくした感がある。超伝導レンズが注目を浴びているのはこのためである (Lefranc et al., 1982; Iwatsuki et al., 1986)。一方、球面収差を別の手段によって補正する試みも、かなり早い段階より成されており、Möllenstedt (1956) による四重極-八重極レンズや、Hibino et al. (1978)、Kuzuya et al. (1984) による薄膜レンズなどはその代表的なものである。また、光学系の結像条件を様々に調整することによって、球面収差の影響のない像を得る試みも成されており、Hashimoto et al. (1977) による無球面収差結像法 (A.F.F.) や、Ikuta (1989)、Taniguchi et al. (1990a, 1990b) による焦点位置変調画像処理などがある。これらの方法はそれぞれに利点、欠点を持っているが、現在までのところ広く一般の普及にまで至っていないのは実用化に際して何らかの障害が残っているからに他ならない。

ホログラフィーは、元来電子レンズの球面収差補正の1つの方法として発明されたものであった。試料を観察した電子の波をそっくりそのまま記録しておき、これを光の波に置き換え、光学ベンチ上で凹レンズを用いて電子レンズの球面収差を補正しようという考えに基づくものであった。光学ではレーザーによるホログラフィーの実用化後直ちに球面収

差の補正が実験的に確認されている (Upatnieks et al., 1966)。電子線では実用に耐え得る高輝度電子銃が開発されたにもかかわらず、発明当初の目的であった電子レンズの収差補正の試みはわずかな報告があるのみである (Tonomura et al., 1979b; Lichte 1986)。これは、電子顕微鏡そのものの性能が、ホログラフィーを用いずとも結晶を格子像レベルで観察できる段階にまで発展していること、また、高分解能用電子レンズの場合、その収差が問題となる 0.1 nm 以下のレベルでは、電子線ホログラフィーを行なうにはいま一步電子銃の輝度が不足していることなどが原因として上げられる。

本章においては、電子レンズの持つ収差を、ホログラムからの像再生時に数値演算処理により取り除く手段について述べる。この場合、収差補正時に想定する収差関数がどの程度現実の光学系の収差に対応しているか、また、補正処理での演算精度が十分確保できているか、などの点が問題となる。同様の試みは Lichte (1986) により結晶格子のホログラムに対して実効されており、収差補正後の再生像において格子像のコントラストが改善されていることなどから、収差が補正される方向にあることは分かっている。しかしながら、そもそも電子レンズには無収差レンズは存在せず、どの程度の像が得られれば収差補正処理が正しく実行されたかを判断するのは著しく困難である。

本章では、球面収差に類似した収差関数で表わされる焦点はずれによる広義の収差に着目し、電子レンズが固有に持っている球面収差がほぼ無視できる低倍率、低分解能での補正処理を試みた (Harada et al., 1989, 1990c)。これには2つの利点がある。第1は焦点はずれによる広義の収差は、球面収差が無視できるような低分解能の領域であっても容易に測定にかかる程度の大きな値を作り出すことが可能である。従って、実験的に無収差、並びに収差の存在する状態を作り出すことが可能であり、両者のホログラムからの再生像を見比べることによって収差補正の程度を知ることができる。第2に低倍率では、試料を照射する電子線の開き角を十分に小さくすることができ、完全可干渉な場合の結像理論を用いることができる。完全可干渉な結像理論での光学系の伝達関数の取り扱い、部分可干渉な場合のそれと比較して極めて容易であり、再生時の取り扱いにおいて不明瞭なパラメータを減らす上で有意義である。

以下、電子線ホログラフィーでの収差補正における、収差関数の取り扱いと、その精度評価を行なうと共に実験結果について述べる。



## 6-2 原理

### 6-2-1 収差補正の原理

数値演算によるイメージホログラムからの再生処理の際に、同時に光学系の収差を補正する方法について述べる。最も基本的な取り扱いであるため、現実の電子線ホログラフィーの場合と異なるいくつかの仮定がこの方法論の中に存在する。その第1は、完全コヒーレントな光学系であること。すなわち、物体は完全に単色で均一な平面波にて軸上照明されていること。第2は、物体波は光軸上に沿って伝搬し、これに参照波が角度  $\alpha$  で斜めより重ね合わされること。現実には電子線ホログラフィーは電子線バイプリズムを使用するため対物レンズ透過後は物体波も参照波も同じ角度だけ光軸に対して偏向させられている。第3には、対物レンズより下段の中間レンズ、投影レンズの収差については考えないこと。以上3点が、ここで述べる方法論の主な仮定である。今回の実験は低倍率で行なっているため第1の仮定における条件を十分に満足すると考えられる。一方、第2の仮定についても、物体波の偏向は対物レンズの透過後、像面に近い位置において受けるものであるから、その影響はそれほど大きいものではないと考えられる。さらに第3の仮定について考察する。通常、中間、投影の各レンズの持つ収差は対物レンズと比較すれば相対的に極めて大きいものである。しかし、次節で述べる収差関数の性質より明らかなように、まず第1段目の対物レンズにて物体の像が拡大された場合球面収差ではおよそその拡大倍率の4乗分の1、焦点はずれによる収差では2乗分の1に影響が小さくなる。このため中間レンズ以下の収差はほとんどの場合無視しうる。以上のように3点の仮定は、今回の実験条件においては妥当なものと考えて差し支えない。これらの仮定に加えて本章で行なう補正処理においては対物レンズの球面収差と焦点はずれによる収差のみを取り扱うことにし、コマ収差など他の収差については考えない。

さて、ホログラフィーはホログラム面上に到達した波動の振幅分布、位相分布を共に記録し、再生する技術である。ここで電子線ホログラフィーのように、像面上での物体波を記録するイメージホログラフィーの場合、対物レンズでの収差の影響を受けた物体波が感光材料により記録され、これを再生することになる。

近軸光学系のように、isoplanatic な領域のもとでは、像面の複素振幅分布  $\Phi(x,y)$  は、物面での複素振幅分布  $O(x,y)$  と点像の複素振幅分布  $h(x,y)$  のコンボリューションで表

わされることが知られており

$$\Phi(x,y) = O(x,y) * h(x,y) \quad (6-1)$$

である。ここで  $*$  はコンボリューションを表わす記号である。式(6-1)はフーリエ変換を行なうと簡単になり

$$F[\Phi](R_x, R_y) = F[O](R_x, R_y) \cdot H(R_x, R_y) \quad (6-2)$$

である。ここで  $H(R_x, R_y)$  は複素振幅分布の伝達関数(A.T.F.)である。複素振幅伝達関数は光学系の瞳関数と一致するため、収差など光学系のもつ空間周波数特性は複素振幅伝達関数で表わされる。回転対称性(回転不変性)を仮定し、

$$H(R) = F[h(x,y)](R) = P(R) \exp[-i\chi(R)] \quad (6-3)$$

とおく。今、簡単のためレンズ系は透過度1であるとすると、 $P(R)$  は光学系の開口の大きさを与える関数となり開口内側で1、外側で0である。物体波の空間周波数分布と比較して十分大きい開口の時は通常全領域で1とみなして差し支えない。 $\chi(R)$  は波面収差関数と呼ばれ光軸上前側焦点位置に配置された点光源がフーリエ変換されて、すなわち、レンズ系の後側焦点面に作る波面の形状を表わす。無収差の場合波面収差関数は空間周波数  $R$  には依存せず  $\chi(R) = 0$  の波つまり平面波が伝搬することを表わす。波面収差関数については次節において詳述する。前章までの記述を用いれば

$$\begin{aligned} F[\Phi](R_x, R_y) &= F[O](R_x, R_y) \cdot \exp[-i\chi(R)] \\ &= F[\phi \exp(i\eta)](R_x, R_y) \\ &= B(R_x, R_y) \end{aligned} \quad (6-4)$$

という関係が成立している。ここでホログラフィーにより像面上の複素振幅分布を知り、何らかの方法で波面収差関数を知ることができれば複素振幅伝達関数の複素共役を乗算することにより

$$F[0](R_x, R_y) = F[\Phi](R_x, R_y) \cdot \exp[+i\chi(R)] \quad (6-5)$$

を得る。物面上での光学系の収差の影響を受けない複素振幅分布  $0(x, y)$  はこれをフーリエ逆変換すれば得られる。

以上が収差補正方法の概略であるがフーリエ空間での処理が必要となるため、ホログラフィーの再生方法としてはフーリエ変換法を用いるのが合理的である。すなわち、1次回折波に対応するフーリエスペクトルの極大点を原点に移すようにスペクトル全体を平行移動させた後、フーリエ逆変換を行なう前に高周波領域の除去と波面収差関数による演算処理を終了させておけばよい。

### 6-2-2 波面収差関数

前節において述べた収差補正の方法は、ホログラムより再生された物体波の複素振幅分布に光学系の複素振幅伝達関数をデコンボリューションすれば良いものであった。その複素振幅伝達関数は波面収差関数で表わされており、波面収差関数が正しく求められれば数値演算処理によるホログラフィーでの光学系の収差の補正は原理的には可能である。ここでは、Scherzer (1949) により導かれた球面収差と焦点はずれによる収差のみを考慮した波面収差関数について述べる。

まず、電子顕微鏡対物レンズは高拡大光学系 (JEM-200CX の場合約 50 倍) であるため、試料はほぼ対物レンズの前側焦点面に置かれる。収差の影響を無視すれば後側焦点面には試料を透過した波動の複素振幅分布のフーリエ変換が実現されていると考えることができる。すなわち、式 (6-2) 及び (6-3) は、無収差完全レンズにてフーリエ変換された複素振幅分布を、対象とする光学系の持つ収差に対応した位相 filter を通して観察することを示している。電子顕微鏡では、試料の散乱角度は一般に小さくほぼ近軸近似が成立する。このような近軸領域では isoplanatic 性をほぼ完全に仮定できる。すなわち、電子顕微鏡の光学系では複素振幅伝達関数は光軸上の 1 点からの波動についての複素振幅伝達関数で代表させることができ、対物レンズの前側焦点に置かれた点光源が後側焦点面上に作る位相分布が波面収差関数と見なせる。従って、無収差完全レンズの場合は、点光源のフラウンホーファー回折像となり  $\chi(R)=0$  の平面波を得る。

波面収差関数をレンズの前側焦点に置かれた点光源による後側焦点面での波面の形状として考察する。ただし、主に幾何光学的に取り扱う。レンズの前側及び後側焦点面はフーリエ変換の関係になっているため、レンズの前側での光軸との成す角  $\theta$  を変数に用いてレンズ後側焦点面上の波面の形状を表わすのが便利である。

図 6-1 に焦点はずれ量と、光路長との関係を示す。f、f' はそれぞれ前側、後側の焦点距離、 $\Delta f$  は焦点はずれ量、レンズは無収差完全レンズとする。前側焦点 O に対し、点 P 側を Under-focus とし焦点はずれ量  $\Delta f$  は正で表わす。これに対し点 Q 側は Over-focus とし、 $\Delta f$  は負の値をとる。点 Q、O、P 各点に点光源を置いた場合、または微小散乱体を置き光軸上を進む平面波がこれにより散乱を受ける場合を考える。点 O の像はレンズ後面無限大の距離で結像するが、点 O から見て光軸に対し角度  $\theta$  で進む光線のたどる光路長と、 $\theta=0$  の角度で光軸上を進む光線の光路長は、完全レンズ系では等しい。この関係をレンズの主平面を境としてレンズの前側、及び後側の光路長を角度  $\theta$  の関数として表わせば

$$l_{or}(\theta) = l_{or}(0) \quad (\text{レンズ前側光路長}) \quad (6-6)$$

$$l_{ob}(\theta) = l_{ob}(0) \quad (\text{レンズ後側光路長}) \quad (6-7)$$

である。レンズより無限遠方の像面までの光路長を考える場合式 (6-7) は、 $l_{ob}(\theta) = l_{ob}(\theta) = \infty$  となるが、今はレンズ後側焦点面上の位相分布を求めるため後側焦点面までの

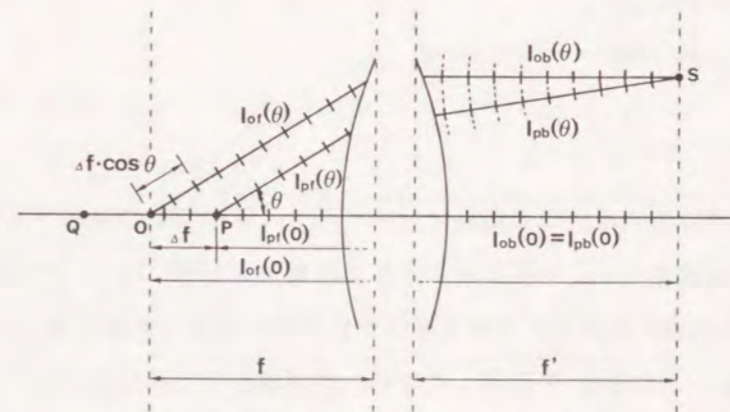


図 6-1 焦点はずれによる収差についての取り扱い

有限の値を持つと考えてよい。一方点 P に置かれた点光源より角度  $\theta$  で進む光線の光路長と、光軸上を進む光線の光路長は異なる。しかしながら、同じ角度  $\theta$  で入射した光線はレンズの後側焦点面上で一点 S に交わることから、レンズ後側の光路長は、isoplanatic の仮定のもとで光源の位置、角度に依存せず全て等しい。

$$l_{ob}(\theta) = l_{ob}(0) = l_{ob}(\theta) = l_{ob}(0) \quad (6-8)$$

これは、図 6-1 に示したように角度  $\theta$  でレンズに入射した平面波が球面波として後側焦点面上の 1 点 S に収束するモデルと対応する。レンズ前側の光軸上を進む光線の光路長は焦点はずれ量  $\Delta f$  を用いて

$$l_{or}(0) = l_{or}(0) - \Delta f \quad (6-9)$$

であり、角度  $\theta$  で進む光線の光路長は、波面に注意して、

$$l_{or}(\theta) = l_{or}(\theta) - \Delta f \cos \theta \quad (6-10)$$

である。従って光路差  $\Delta l_r(\theta)$  は

$$\begin{aligned} \Delta l_r(\theta) &= l_{or}(\theta) - l_{or}(0) \\ &= \Delta f(1 - \cos \theta) \\ &\doteq \frac{1}{2} \Delta f \theta^2 \end{aligned} \quad (6-11)$$

と表わされる。

図 6-2 に球面収差のある場合の光路長について示す。球面収差が存在する場合近軸焦点位置として点 O を定義するが、球面収差による光路差  $\Delta l_c(\theta)$  は点 O から出て光軸と角度  $\theta$  の方向に進む光線の光路長と光軸上を進む光線の光路長との差と考えられる。完全レンズの場合と異なりこの値は 0 に等しくない。球面収差のない完全レンズの場合、点 O より角度  $\theta$  の方向に出た光線はレンズを透過後光軸に平行に点 S へ進むが、球面収差が存在した場合、簡単な幾何光学より球面収差係数を  $C_s$  として、点 O よりも

$\Delta f' = C_s \theta^2$  だけ under-focus 側の点 P より角度  $\theta'$  の方向に出た光線がレンズを透過後光軸に平行に点 S へ進む。従ってこの場合もレンズ前側の光路長のみを考えれば良いのは明かである。近軸近似並びに  $\Delta f' = C_s \theta^2 \ll f$  より  $\theta = \theta'$  を仮定すると、点 P から光軸に  $\theta$  の角度で進む光線と、光軸上を  $\theta = 0$  で進む光線との光路差  $\Delta l(\theta)$  は先の  $\Delta l_c(\theta)$  を利用して

$$\Delta l(\theta) = \Delta l_c(\theta) + \Delta f'(1 - \cos \theta) \quad (6-12)$$

と与えられる。Fermat の定理により  $\Delta l(\theta)$  は  $\theta$  の変化に対して極値を取らねばならない。すなわち

$$0 = \frac{d\Delta l(\theta)}{d\theta} = \frac{d\Delta l_c(\theta)}{d\theta} + \Delta f' \sin \theta \doteq \frac{d\Delta l_c(\theta)}{d\theta} + C_s \theta^3 \quad (6-13)$$

を得る。これを積分して、球面収差による光路差

$$\Delta l_c(\theta) = -\frac{1}{4} C_s \theta^4 \quad (6-14)$$

を得る。一般的表現としてはこの光路差に焦点はずれによる光路差  $\Delta l_r(\theta)$  を加える。

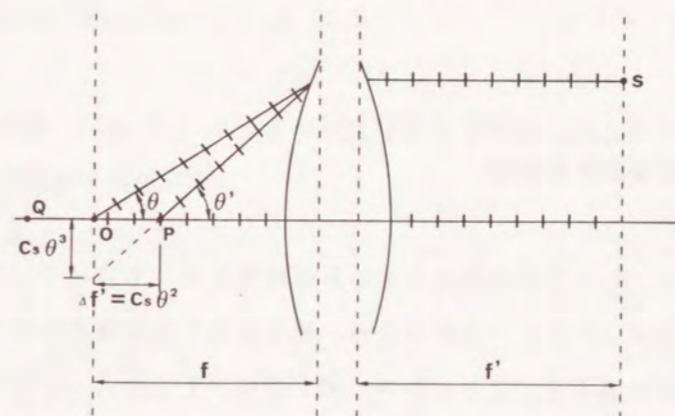


図 6-2 球面収差についての取り扱い

これより後側焦点面上の波面の形状、すなわち波面収差関数は、

$$\begin{aligned} \chi(\theta) &= -\frac{2\pi}{\lambda} (\Delta l_c(\theta) + \Delta l_r(\theta)) \\ &= \frac{2\pi}{\lambda} \left( \frac{1}{4} C_s \theta^4 - \frac{1}{2} \Delta f \theta^2 \right) \end{aligned} \quad (6-15)$$

である。光軸となす角  $\theta$  は Bragg の関係式、及び波数を  $k = \frac{1}{\lambda}$  とおいて

$$\theta = \frac{R}{k} \quad (6-16)$$

である。ここで  $R$  は空間周波数を表わす。以上より波面収差関数

$$\chi(R) = 2\pi k \left\{ \frac{1}{4} C_s \left( \frac{R}{k} \right)^4 - \frac{1}{2} \Delta f \left( \frac{R}{k} \right)^2 \right\} \quad (6-17)$$

を得る。これは Scherzer により導かれたものと同じ式である。

球面収差係数  $C_s$  及び焦点はずれ量  $\Delta f$  が既知であれば、複素振幅伝達関数が求まり式 (6-5) に基づいて収差の補正が可能である。あるいは、格子像のホログラムが得られれば、1枚のホログラムより様々な焦点位置での電子顕微鏡像 (through-focus 像) を得ることができる。

### 6-2-3 波面収差関数読解法

前節で示した通り、いくつかの仮定を用いれば球面収差と焦点はずれによる収差は空間周波数の関数として式 (6-17) で表わされる。現実の電子顕微鏡光学系においては自らその有効性に対して限界があると思われるが、第1近似としての式 (6-17) の有効性は、マルチスライス法などのシミュレーションによってすでに十分確認済みである。従って、電子レンズの球面収差係数と、焦点はずれ量を知ることができれば、1枚のホログラムより

式 (6-5) に基づいて光学系の収差が影響しない像を得ることが可能なはずである。しかしながら、現実の実験においては基準となるべき in-focus 位置は各々の試料によって、あるいは1つの試料であっても観察する場所によって様々に異なる上、focus が合っているか否かの判断にはオペレーターの主観が入る。その上焦点はずれ量は、レンズの励磁電流量より求めなければならず、焦点はずれ量の真値を知るのは極めて困難である。球面収差係数についても同様である。電子顕微鏡の場合レンズの励磁電流量によって球面収差係数も変化するため、厳密には焦点はずれ量によって各々異なる球面収差係数を持つことになり、その真値を求めることは極めて困難である。このような困難さはホログラムに記録できる像の分解能が高くなるほど、収差の推定誤差の影響が増大するためより重大な問題となる。

以上のような理由から、記録されたホログラム自体から収差を読みとり、これを補正することができればこれに勝る方法はない。現実には試料が弱位相物体であったとき実現の可能性がある (Franke et al., 1988)。本節では、その方法論について述べる。

収差の影響を受けない、例えば試料透過直後の弱位相物体の複素振幅分布を

$$O(x,y) = a(x,y) \exp[i\psi(x,y)] \quad (6-18)$$

と表わす。ここで  $a(x,y)$ 、 $\psi(x,y)$  は実数関数であるとする。各々の関数のフーリエ変換を大文字で表わすとすると、試料に弱振幅物体  $a(x,y)=1$ 、 $\psi(x,y) \ll \frac{\pi}{2}$  を仮定して

$$O(R_x, R_y) = \delta(R_x, R_y) + i\Psi(R_x, R_y) \quad (6-19)$$

を得る。デルタ関数  $\delta(R_x, R_y)$  は原点のみに定数値を持ち、バックグラウンドを表わす項であるため分布関数より無視する。

ここで  $\Psi(R_x, R_y)$  について、

$$\Psi(R_x, R_y) = \Psi^*(-R_x, -R_y) \quad (6-20)$$

の関係を用いて

$$O(R_x, R_y) = -O^*(-R_x, -R_y) \quad (6-21)$$

を得る。式(6-20)は結晶回折学では Friedel 則として知られているものであるが、ここでは  $\psi(x, y)$  を実関数と仮定することにより数学的に導けるものである。

さて、ホログラムから再生できるのは収差を含んだ振幅位相分布であり、波面収差関数に軸対称性(2回対称性)

$$\chi(R_x, R_y) = \chi(-R_x, -R_y) \quad (6-22)$$

を仮定すると、式(6-4)より

$$\begin{aligned} B(R_x, R_y) &= O(R_x, R_y) \cdot \exp[-i\chi(R_x, R_y)] \\ B(-R_x, -R_y) &= O(-R_x, -R_y) \cdot \exp[-i\chi(R_x, R_y)] \end{aligned} \quad (6-23)$$

を得る。振幅分布を  $|B|$ 、位相角を  $\arg(\ )$  の記号で表わすと式(6-21)、(6-23)より

$$\begin{aligned} |B(R_x, R_y)| &= |B(-R_x, -R_y)| \\ \arg(B(R_x, R_y)) &= \arg(O(R_x, R_y)) - \chi(R_x, R_y) \\ \arg(B(-R_x, -R_y)) &= -\arg(O(R_x, R_y)) - \chi(R_x, R_y) + \pi \end{aligned} \quad (6-24)$$

を得る。これより、波面収差関数  $\chi(R_x, R_y)$  が

$$\chi(R_x, R_y) = -\frac{1}{2} \{ \arg(B(R_x, R_y)) + \arg(B(-R_x, -R_y)) \} + \frac{\pi}{2} \quad (6-25)$$

のように、ホログラムに記録されている諸量で表わすことができる。

式(6-25)では波面収差関数に前節の場合の回転対称性とは異なり、軸対称性のみを仮定しているため、 $x$  軸、 $y$  軸方向での収差のずれ(例えば、非点収差による  $x$ 、 $y$  方向で

の焦点はずれ量の差など)についても有効な式である。また、球面収差及び焦点はずれによる収差以外に、空間周波数領域で物体波の複素振幅分布に影響を与えるものを全て除去できる可能性がある。ただし、試料が弱位相物体でなかった場合、通常のホログラムから式(6-25)を導出することはできない。この場合にはホログラムのうちの試料支持膜や汚れなどが記録されている部分でまず波面収差関数を求め、改めて必要とされる試料像に対して収差の補正を行なう必要がある。

### 6-3 実験方法

本実験では、ホログラムから再生された振幅分布、位相分布のその各々において、収差の影響の有無、収差の補正効果の有無を調べなければならない。そこで、試料に要求される条件として第1に、球面収差が電子顕微鏡像に対して大きな影響を持たない低い空間周波数領域で構成される物体であること、第2に波面収差関数の形状が問題であるため、格子像のような狭い空間周波数領域に局在している物質ではなく、ある程度その周波数分布に広がりを持っている物質であること、第3に対象となる空間周波数領域に焦点はずれによる収差の影響が電子顕微鏡に無理のない範囲で与えられること、第4に対象となる空間周波数領域においてほぼ完全コヒーレントと見なせる程度に照射電子線の開き角を小さくした場合でも、十分に実験に耐え得るだけの照射電子流密度が得られること、第5にフーリエ変換法で再生できるホログラムであること、などが上げられる。

電子線ホログラフィーでは一般に試料を照射する電子線が光軸と成す角は  $0.01 \text{ mrad}$  以下であり、この場合  $2.5 \text{ nm}^{-1}$  以下の空間周波数領域においては  $10 \text{ }\mu\text{m}$  程度の焦点はずれを与えても完全コヒーレントと見なせる。この条件内での実験を行なった。MgO 微結晶、Si 微粒子、SiO<sub>2</sub> 微粒子などを試みたが、最終的にはカーボン薄膜上の金微粒子を試料に用いた。厚さ約  $5 \text{ nm}$  以下と推定されるカーボン薄膜を真空蒸着装置にて作成し、粒径  $2 \sim 5 \text{ nm}$  の金微粒子を蒸着法にて作成した。この試料の場合カーボン薄膜の存在は考慮する必要がなく、いわば真空中に点在している金微粒子のみを試料と考えればよいこと、金微粒子は強散乱体であり、微粒子自身にコントラストが付き易く焦点はずれによる変化を観察し易いなどの利点がある。ただし、小さな微粒子であるため、位相の変化はそれほど大きなものではない。

実験は透過型電子顕微鏡 JEM-100C-FEG、加速電圧 80 kV にて行なった。直接の観察倍率は約 17 万倍、試料には焦点はずれ量を 3600 nm ずつ、under-focus 側にずらせながら in-focus から 14400 nm まで through-focus にてホログラムの記録を行なった。金微粒子にコントラストをつけるためわずかだけ under-focus の焦点位置を in-focus の基準とした。

#### 6-4 結果及び考察

##### 6-4-1 Scherzer の式に基づく収差補正

本研究では、実験的に収差の影響の有無を調べなければならない。補正の対象としている球面収差と焦点はずれによる収差のうち、容易にその収差量を変化させ得るのは、焦点はずれによる収差の方である。従って、まずはじめに球面収差の影響が無視できることを確認しなければならない。一般的にこのような場合、位相コントラスト伝達関数により調べることが多い。位相コントラスト伝達関数 PCTF(R) は、

$$\text{PCTF}(R) = \sin \chi(R) \quad (6-26)$$

で表わされる。ここで  $\chi(R)$  は式 (6-17) で表わされた波面収差関数である。図 6-3 に、本実験条件下の位相コントラスト伝達関数 PCTF(R) を示す。実線は球面収差係数  $C_s=6.1$  mm の場合、波線は球面収差のない完全レンズの場合のものである。焦点はずれ量  $\Delta f$  はいずれも 6600 nm under-focus である。ここに図示した  $1.0 \text{ nm}^{-1}$  よりも低周波数領域では、球面収差の有無は、ほとんど位相コントラスト伝達関数に影響を与えていないことが明かである。すなわち、本実験に用いた球面収差係数  $C_s=6.1$  mm と比較的大きな球面収差を有する電子レンズであっても、 $1.0 \text{ nm}^{-1}$  以下の低空間周波数領域ではほぼ完全レンズとみなせる。また、照射電子線の角度広がり  $0.01 \text{ mrad}$  以下の場合、角度広がりに対応し可干渉性を表わす包絡関数はこの空間周波数領域内ではほぼ 1 であり、完全コヒーレント光学系として取り扱ってよいことが分かる。焦点はずれによる収差も存在しない完全な無収差光学系による結像の場合は、波面収差関数は  $\chi(R)=0$  となり位相コントラスト伝達関数は

全ての空間周波数領域で 0 となる。これは位相コントラストが伝達されないことを示す。すなわち図 6-3 において位相コントラスト伝達関数が空間周波数の変化に対応して振動した正弦型関数として見えるのは、焦点はずれ量  $\Delta f=6600 \text{ nm}$  による収差が十分ホログラム上の試料像に影響を与えることを示している。焦点はずれ量  $\Delta f=6600 \text{ nm}$  という値は、収差補正を行なう過程において推定したもので、実験時対物レンズの励磁電流量の変化より予想された値  $\Delta f=7200 \text{ nm}$  とは若干異なっている。

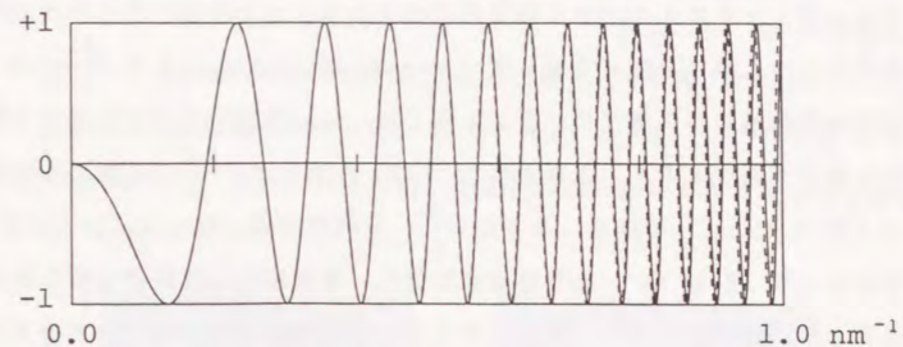


図 6-3 位相コントラスト伝達関数 ( $\Delta f=6600 \text{ nm}$ )

実線:  $C_s=6.1 \text{ mm}$ , 波線:  $C_s=0.0 \text{ mm}$

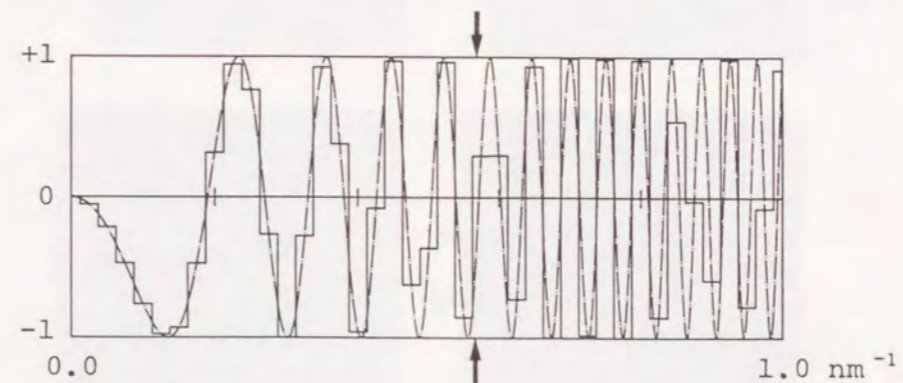


図 6-4 位相コントラスト伝達関数 ( $\Delta f=6600 \text{ nm}$ )

実線:  $1 \text{ nm}^{-1}$  当たり 40 本のヒストグラムで表示

一点波線: 連続的に表示

次に、式(6-5)に基づき離散的なデジタル処理にて収差補正を行なう妥当性について考察する。図6-4に、位相コントラスト伝達関数を  $1 \text{ nm}^{-1}$  当り 40本のヒストグラムで描いた、各々のパラメータの値は図6-3と同様で球面収差係数  $C_s=6.1 \text{ nm}$ 、焦点はずれ量  $\Delta f=6600 \text{ nm}$  である。図中の一点鎖線は、位相コントラスト伝達関数を連続的に描いたもので図6-3の実線と同じものである。  $1 \text{ nm}^{-1}$  当り 40本のヒストグラムは本実験でのフーリエスペクトル面での1画素当たりの空間周波数と対応させている。ホログラムの干渉縞の搬送空間周波数は、  $R_0=1.14 \text{ nm}^{-1}$  でありこれを  $5 \sim 7$  pixels/本の割合で入力を行なったため、フーリエスペクトル面での演算精度はおよそ  $40 \text{ pixels/nm}^{-1}$  である。

ホログラムのフーリエスペクトルは0次スペクトル、 $\pm 1$ 次回折スペクトル共に、いずれもあまり大きな広がりを持っておらず low-pass filtering により  $\frac{R_0}{2}=0.57 \text{ nm}^{-1}$  以下の空間周波数領域を再生像に用いることにした。sin関数をデジタル化する際に1周期当り最低3画素が必要と考え、1画素当り  $\chi(R)$  の変化が  $\frac{2\pi}{3}$  を越える空間周波数を求めたところ  $0.53 \text{ nm}^{-1}$  であり、まさに  $\frac{R_0}{2}$  と同様の値となった。以上より、図6-4に矢印で表わした、  $0.57 \text{ nm}^{-1}$  より低周波数側は、複素振幅伝達関数を取り扱える最低限の精度を有していることになり、本実験はこの条件を満たしていることが分かった。

図6-5にカーボン薄膜上の金微粒子のホログラムを示す。図6-5(a)はほぼ in-focus におけるホログラムであり、粒径  $30 \sim 50 \text{ nm}$  の2個の大きな微粒子と粒径  $20 \text{ nm}$  程度の6個の微粒子が見いだせる。また、各微粒子による振幅及び位相の変化はかなり小さいものであることが分かる。この(a)を無収差ホログラムと呼ぶことにする。

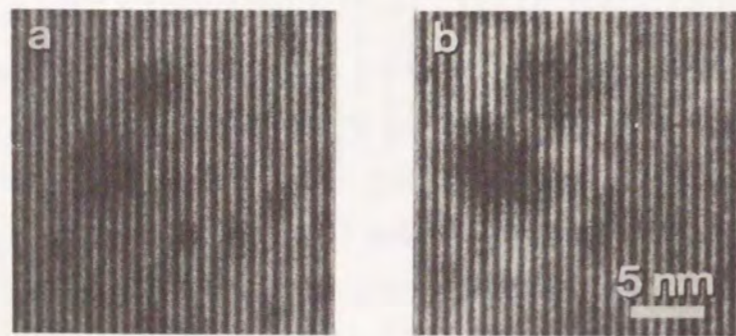


図 6-5 金微粒子のホログラム  
 (a) ほぼ in-focus にて記録  
 (b) 約  $6600 \text{ nm}$  under-focus にて記録

図6-5(b)は焦点はずれによる収差を加えた金微粒子のホログラムである。画面左上方の2個の大きな微粒子はその存在を見つけることができるが、他の6個の微粒子は既にその像が失われてしまっている。この2枚のホログラムからの再生像及び収差補正像を、振幅分布、位相分布の両方について比較した。

図6-6は、再生された図6-5の振幅分布である。(a)及び(d)はそれぞれ図6-5(b)、(a)からそのまま再生されたオリジナルの振幅分布である。特に(d)は無収差振幅分布である。各図間の矢印は複素振幅伝達関数  $\exp[-i\chi(R)]$  を用いた画像処理の行なわれた方向を示す。すなわち、(b)は図6-5(b)のホログラムに式(6-5)に基づいて収差補正処理を行なった後の収差補正振幅分布であり、(c)は図6-5(a)の無収差ホログラムにコンボリューション演算を行なうことによって焦点はずれ量  $\Delta f=6600 \text{ nm}$  に相当する収差を加えた後の被収差振幅分布である。図6-6中の(a)と(c)、(b)と(d)の組合せに対応関係が見出せれば、式(6-17)を用いた収差の取り扱いが妥当なものであることを

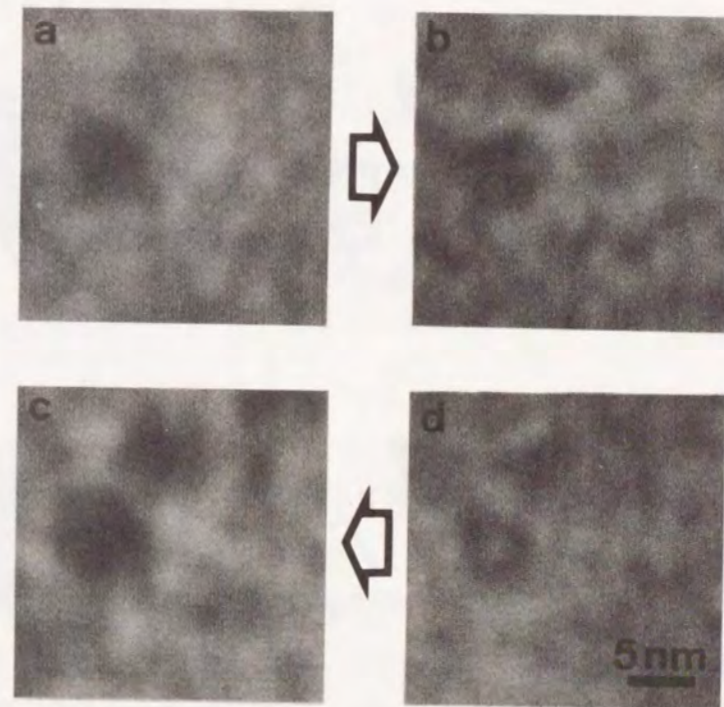


図 6-6 図 6-5 より再生された振幅分布  
 (a) 収差を含む再生像, (b) 収差補正処理後の再生像  
 (c) 収差を与えた再生像, (d) 収差の影響を元々持たない再生像

示すことになる。2個の大きな微粒子は(a)～(d)の全ての図中においてその形状が見いだせるが、他の6個についてはそのコントラストはほとんどバックグラウンドの中に埋もれてしまい良く分からない。これはホログラムを再生する際に、 $\frac{R_0}{2} = 0.57 \text{ nm}^{-1}$  よりも高い空間周波数を遮断する filtering が行なわれたために、高周波領域にも広がっていた小さい微粒子に関する空間周波数が多く失われたことに原因があると考えられる。これは、図 6-5 (a) の無収差ホログラムと各々の振幅分布の再生像とを比較すれば明らかである。しかしながら、図 6-6 (a) と (c)、(b) と (d) を比較すれば、大きな微粒子のコントラスト変化の様子などに対応関係が見いだせる。これは収差の取り扱いが妥当なものであることを示唆している。

図 6-7 に再生された位相分布を示す。これらは波面の形状を表わしており、各図 (a)～(d) の配置は図 6-6 の振幅分布の場合と全く同様である。無収差位相分布 (d) 並びに収差補正位相分布 (b) は試料透過直後の波面の形状を表わしており、金微粒子の位置に波面の遅れがみられる。各図に配置した8個の矢印は、金微粒子の位置を示しており、(b)、

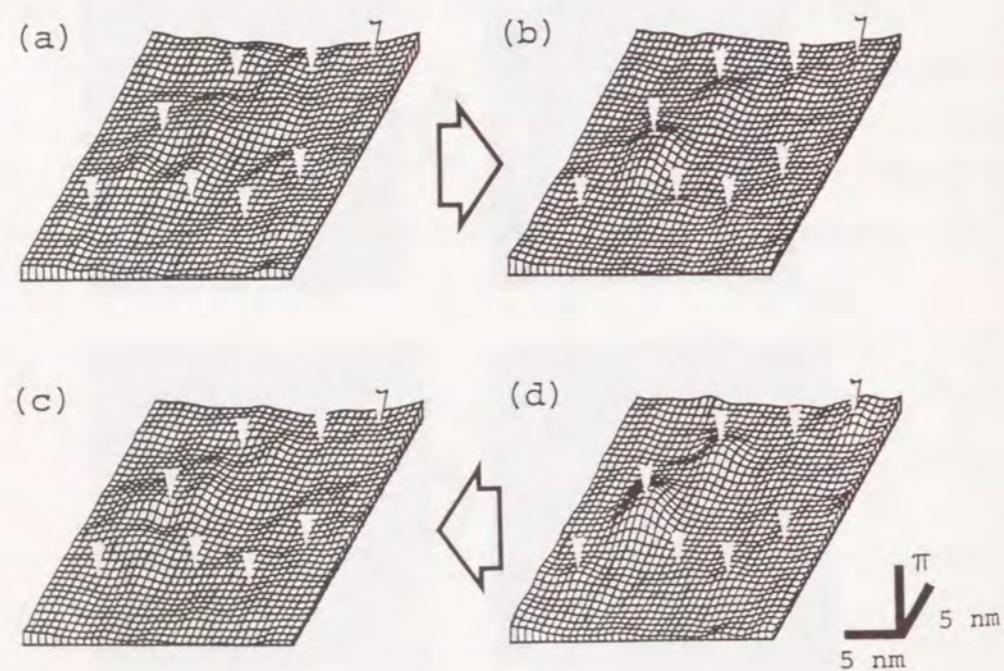


図 6-7 図 6-5 より再生された位相分布

- (a) 収差を含む再生像, (b) 収差補正処理後の再生像  
(c) 収差を与えた再生像, (d) 収差の影響を元々持たない再生像

(d) については波面の形状で見ると大きい2個の微粒子だけでなく、他の小さい6個の微粒子についても、その存在を知ることができる。図 6-7 (a) 及び (c) では微粒子に対応した波面の凹凸は見られない。特に、2個の大きな微粒子に対応した波面の遅れは、収差を加えられた後には進みに転じ元の形状を全く失っている点など、収差が電子線の位相分布に影響を与えるものであることがよくわかる。図 6-7 (a) と (c)、(b) と (d) には振幅分布以上に顕著な対応がみられ、位相分布に対する収差の取り扱いが非常に良好なものであることを示している。以上の結果から、位相分布は物体の存在に対して非常に敏感であり、そのため、光学系の持つ収差の影響は位相分布の方により顕著に現われる様子を示すことができた。

実験を行なった際に対物レンズの励磁電流の変化より推定していた焦点はずれ量  $\Delta f = 7200 \text{ nm}$  は、像再生時に更正を行ない  $\Delta f = 6600 \text{ nm}$  とした。更正は図 6-6 の振幅分布、図 6-7 の位相分布のそれぞれ (b)、(d) を比較しながら最も良く対応した像を与える焦点はずれ量を捜すことによつて行なった。ただし、この比較は像を見ながら行なったもので数量的に行なったものではない。

以上より電子レンズの収差を、特に焦点はずれによる収差について Scherzer により導かれた波面収差関数を用い、これをホログラムから再生した複素振幅分布にデコンボリューションすることにより補正できることが明らかとなった。電子光学系では本質的に取り除けない球面収差についても、焦点はずれ収差と全く同じように空間周波数のみの関数で表わされるため、球面収差係数さえ既知であれば同様のデコンボリューション処理により補正できると期待している。

#### 6-4-2 波面収差関数読解法の困難さと可能性について

ホログラムより、そのホログラムを記録した時点での球面収差と焦点はずれ量による収差を読みだし一度に補正してしまう方法は、第 6-2-3 節で述べたように試料に弱位相物体を用いれば原理的には可能なはずであるが、現在までのところ成功した例はない。この方法の困難さ及び可能性について考えてみる。

困難さについては大きく分けて、技術的な問題と計算機を用いている以上避けられない本質的な問題の2点があると考えられる。まず技術的な困難さについては、波面収差関数



はホログラムより再生した複素振幅分布を用いて

$$\chi(R_x, R_y) = -\frac{1}{2} \{ \arg(B(R_x, R_y)) + \arg(B(-R_x, -R_y)) \} + \frac{\pi}{2} \quad (6-25)$$

と表わされる。計算機内において、データは実部及び虚部という形で保存されているため位相角はその  $\tan^{-1}$  で表わされ

$$\arg(B(R_x, R_y)) = \tan^{-1} \frac{\text{Im}(B(R_x, R_y))}{\text{Re}(B(R_x, R_y))} \quad (6-27)$$

であるが、計算機では主値のみを取るため、式(6-25)では2つの位相角について同時に正しい値でなければならない。これは、

$$\begin{aligned} & \arg(B(R_x, R_y)) + \arg(B(-R_x, -R_y)) \\ &= \tan^{-1} \frac{\text{Re}(B(R_x, R_y)) \cdot \text{Im}(B(-R_x, -R_y)) + \text{Re}(B(-R_x, -R_y)) \cdot \text{Im}(B(R_x, R_y))}{\text{Re}(B(R_x, R_y)) \cdot \text{Re}(B(-R_x, -R_y)) - \text{Im}(B(-R_x, -R_y)) \cdot \text{Im}(B(R_x, R_y))} \end{aligned} \quad (6-28)$$

のように1つにまとめることにより一応解決できるが、合成された位相角の変化が大きくなった場合、Scherzerの式(6-17)で表わされるような滑らかな収差関数の形状が得られない。これは波面収差関数の形状とデジタル化との問題であり、第6-4-1節において位相コントラスト伝達関数に対して行なったと同様の考慮を行ない、有効な波面収差関数の範囲とホログラムからの再生像に取り入れる空間周波数の範囲が一致するような条件の内で実験を行なうようにすれば、このホログラムから収差を求める方法の有効性について実験結果を踏まえた議論が可能になると期待される。しかしながらこの解決策は、波面収差関数に合わせたホログラムを作成することを意味しており順序が逆である。本来は、初めにホログラムがあり、それに含まれている収差を補正するのだから実用性には欠ける。

もう1点は、離散的なフーリエ変換に起因する問題である。第1章でフーリエ変換再生法について述べたが、ホログラムをフーリエ変換し1次回折スペクトルのピーク位置へ座

標変換を行なうが、離散的な取り扱いのためピーク位置は必ず真のピーク位置よりずれる。このずれ量は波面のわずかな傾きとして位相分布に現われ位相差増幅を行なった際に顕著になるが、波面収差関数にも全体にわたって変化が現われてくる。図6-8にその様子を示す。波面収差関数は複素平面では  $\frac{\pi}{2}$  と2つの位相角の平均との差として図6-8(a)のように表わされる。ここで、1次回折スペクトルのピーク位置がずれており、そのために

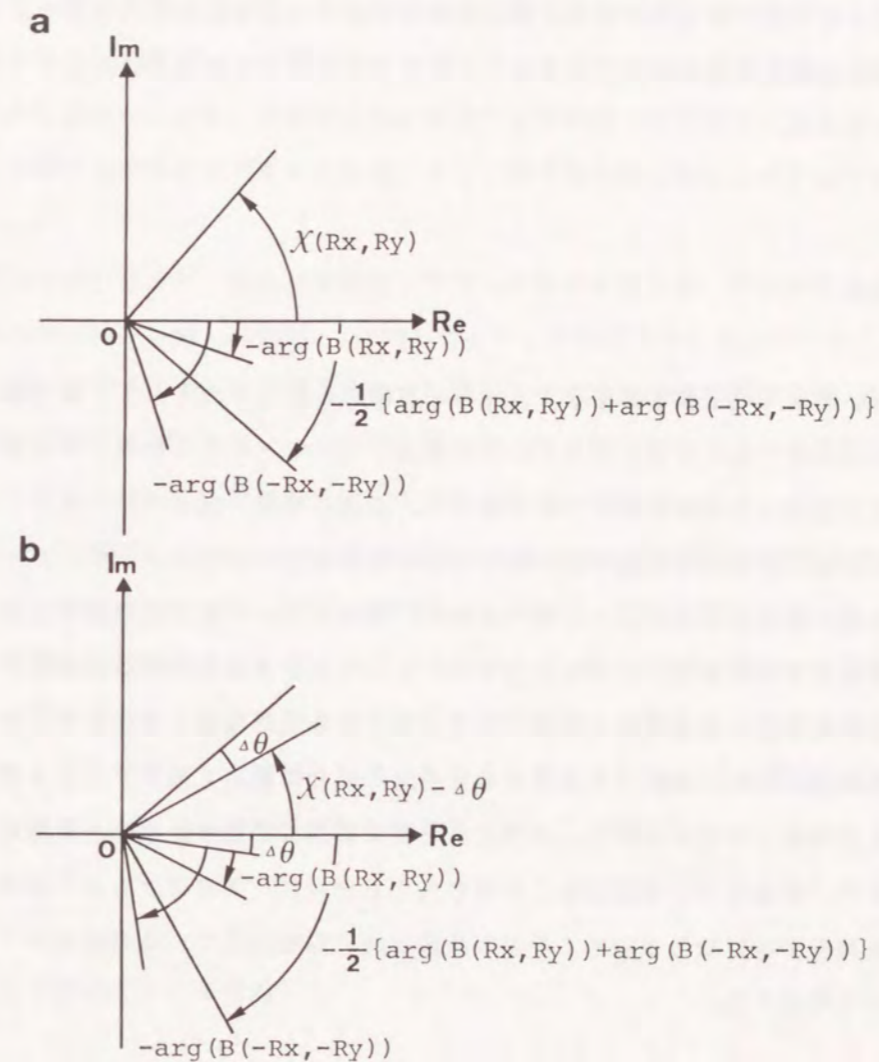


図 6-8 複素平面上における波面収差関数の表現  
(a) 理想的な画像処理が行なわれた場合  
(b) デジタル化の際に誤差が存在する場合

生じる位相角が  $\Delta\theta(R_x, R_y)$  と表わされる時、波面収差関数も  $\Delta\theta(R_x, R_y)$  だけずれて表わされる（図では便宜上  $\Delta\theta(R_x, R_y) = \Delta\theta(-R_x, -R_y)$  と仮定している）。 $\Delta\theta(R_x, R_y)$  が定数でなければ波面収差関数も様々に変調を受けることになり、収差をどの程度取り扱えるのか一概に判断できなくなる。この問題は、離散的に取り扱っている限り避けられない問題である。しかしながら、先の第6-4-1節の再生位相分布などにおいては、位相分布のわずかな傾きは残存していても収差補正により結果を得ており、無視できる程度に小さく抑えることは可能であろう。特に、画像を処理に要する画素数を増加させることは、画像に対する処理精度を直ちに向上させることになり、どちらの問題点に対しても有意義であると考えられる。

#### 6-5 結言

本章においては、電子線ホログラフィー再生方法の応用の1つとして、電子線ホログラフィー発明の目的であった電子レンズの収差補正について、それを数値演算処理にて行なう方法とその基礎的な実験結果について述べた。この方法は、完全コヒーレント光学系において、光学系の複素振幅伝達関数を再生された振幅位相分布にデコンボリューションするという比較的簡単な方法によって実行された。実験においては、無収差再生像と収差補正再生像を比較する必要性、並びに完全コヒーレント光学系を実現する必要性より、焦点はずれによる収差のみを取り扱ったが、本来目的となる球面収差も焦点はずれによる収差と同じ空間周波数のみの関数で表わされるため全く同じ手順にて補正することが期待できる。波面収差関数の形状について、及びこれを演算処理にて取り扱う際の精度についても述べた。また、実験成果は現在のところ得られていないが、ホログラムより収差を読みとり、これを補正する方法について、その方法論と共に現在抱えている問題点や、今後の可能性についても述べた。

## 第7章 干渉縞形成に関するシミュレーション

### 7-1 緒言

電子線のコヒーレンス度と有効光源の大きさの関係、そして、それらを干渉縞のコントラストより測定できることは第2章において説明した。本章では波動光学的シミュレーションにより、電子線バイプリズムによる干渉縞形成の様子を再現し、光源の大きさと干渉縞のコントラストの関係、及び電子線バイプリズムフィラメントが干渉縞にどのような影響を与えるかを調べた。また、本来具体的に知ることが困難な電子線バイプリズム自体のパラメータや電子光学系におけるその位置、そして電子線の開き角などが評価できることを確認した。

本章で述べるシミュレーションは独自に開発したものであるが、その基本となる取り扱い方法は Komrska et al. (1964a, 1964b) によって行なわれたのが始めであり、フィラメント端に現われるフレネル縞の強度分布に注目し、フィラメントの線径を様々に変化させた場合についてのシミュレーションが行なわれた。その後、フィラメントに電圧を印加した場合の干渉縞についても取り扱えるよう改良された (Komrska et al., 1967; Komrska and Vlachova, 1973)。このシミュレーションと実験との一致に関しては他のグループにも確認され (Matteucci et al., 1979; Missiroli, 1981)、光源の広がりや、フィラメントの形状を考慮にいたしたシミュレーション (Ohshita et al., 1986, 1988) も行なわれている。この波動光学的シミュレーションは、干渉縞のみならず電子線バイプリズムフィラメントによって発生するフレネル縞も再現できる点が優れており、この特徴を生かして、p-n 接合における電位分布の解析が行なわれた (Pozzi, 1982)。

### 7-2 干渉縞強度分布の導出

対物レンズの後側焦点面から像面にかけての電子線の伝搬を Huygens-Fresnel の式を基に取り扱い、干渉縞の形成される様子を実験に則して再現した。

図 7-1 にシミュレーションにおいて用いたモデルを示す。対物レンズの後側焦点を原点にとり、z 軸を光軸、y 軸を電子線バイプリズムフィラメントと同方向にとる。光源は球

面  $\mu$  上に広がったインコヒーレント光源と考える。電子線源はインコヒーレント光源とみなして良いものであるが、対物レンズの後側焦点面までは何段かの光学系を経ており、厳密には部分コヒーレント光源として取り扱わねばならない。しかしながら、電子線ホログラフィーにおいては試料がほぼ Köhler 照明されている関係上対物レンズの後側焦点面には電子線源の像が結像されており、良い近似でこれをインコヒーレント光源とみなすことができる。光軸 ( $z$  軸) と電子線パイプリズムフィラメントの中心軸との交点を点  $F$  としたとき、点  $F$  を中心に半径  $a$  の球面  $\mu$  を光源の分布する球面と仮定している。光源上の 1 点  $S$  より出た電子線は、点  $F$  を通る半径  $a$  の球面波面  $\xi$  を形成する。この球面波面  $\xi$  はフィラメントに電圧を印加することにより角度  $\beta$  だけ偏向させられ、図示する通り半無限球面波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  に分かれこの 2 つの球面波が干渉して像面  $\eta$  上に干渉縞を形成する。これはフィラメントに電圧を印加することにより、点光源  $S$  が角度  $\beta$  だけ  $xz$  平面に平行に球面  $\mu$  上を移動し、

$$\begin{aligned} \text{点 } S_1 & (a \sin(\beta + \gamma_x), a \sin \gamma_y, a(1 - \sqrt{1 - \sin^2(\beta + \gamma_x) - \sin^2 \gamma_y})) \\ \text{点 } S_2 & (a \sin(-\beta + \gamma_x), a \sin \gamma_y, a(1 - \sqrt{1 - \sin^2(-\beta + \gamma_x) - \sin^2 \gamma_y})) \end{aligned} \quad (7-1)$$

と表わされる 2 つの虚光源に分かれることを意味している。ここで  $a$  は原点からフィラ

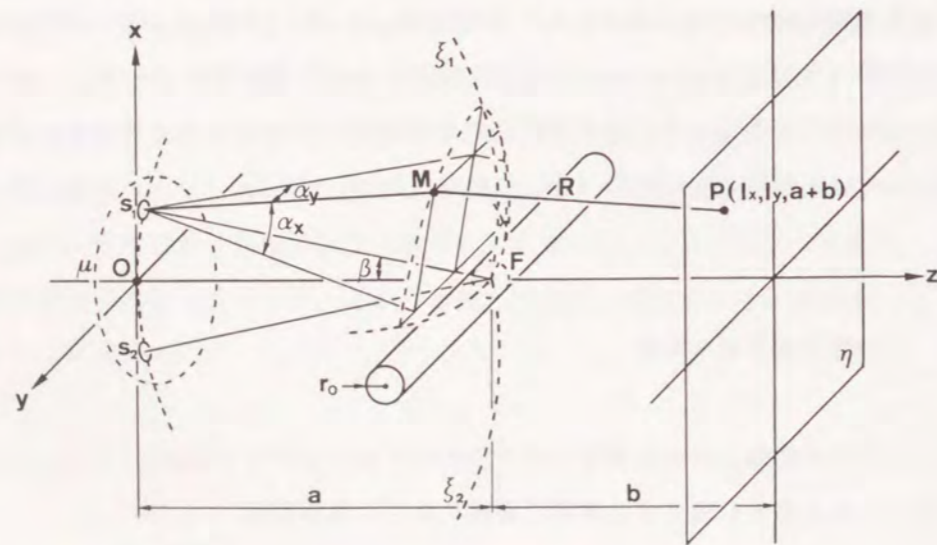


図 7-1 シミュレーションに用いたモデル

ントまでの距離であり、フィラメントの中心点  $F$  より見て線分  $SF$  と  $yz$  平面、 $xz$  平面との成す角を  $x$  軸、 $y$  軸の正方向を正としてそれぞれ  $\gamma_x$ 、 $\gamma_y$  とおいている。この虚光源  $S_1$ 、 $S_2$  の作る半無限球面波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  が像面  $\eta$  上へ伝搬した後の複素振幅分布を求め、強度をとれば干渉縞が得られる。インコヒーレント光源を仮定しているため、他の波面との干渉を考慮する必要はない。

Huygens-Fresnel の原理より平面  $\eta$  上の点  $P$  での複素振幅を  $U_P$  とおくと、

$$U_P = \frac{A}{a} \exp[2\pi ika] \int_{\xi_1, \xi_2} K \frac{\exp[2\pi i kR]}{R} dS \quad (7-2)$$

と表わされる。光源が球面  $\mu$  上にあると仮定したことにより、光源から波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  までの距離は光源の位置に依存せず一定で積分外にくくり出せる。ここで、 $A$  は単位距離だけ離れた点での振幅の大きさを表わし、 $K$  はインクリネーション係数である。 $R$  は波面  $\xi_1$  上または  $\xi_2$  上に任意の点  $M$  をとったときの点  $M$  から点  $P$  までの光路長である。

$\alpha_x$ 、 $\alpha_y$  を線分  $OM$  が  $\beta=0$  の時にそれぞれ  $yz$  平面、 $xz$  平面と成す角とおくと、干渉に考慮しなければならない波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  上の任意の 2 点間距離が  $10 \mu\text{m}$  以下であるのに対して  $a$  の値は  $100 \text{ mm}$  以上であり、 $\alpha_x \approx \alpha_y \leq 10^{-4} \text{ rad}$  の微小角である。この角度範囲ではインクリネーション係数  $K$  はほぼ定数 1 とみなすことができる。波面  $\xi_1$  または  $\xi_2$  上の微小面積  $dS$  を

$$dS = a^2 d\alpha_x d\alpha_y \quad (7-3)$$

と変換し、定石通り振幅に関する光路長  $R$  を  $b$  で近似し積分外にくくり出せば、点  $P$  の座標を  $(l_x, l_y, a+b)$  とおいて、

$$U_P = C \{ U_{P1} \exp[2\pi i kR_1] + U_{P2} \exp[2\pi i kR_2] \} \quad (7-4)$$

$$U_{P1} = \int_{\alpha_{x \min}}^{\alpha_{x \max}} \exp[2\pi i k \frac{a(a+b)}{2b} \{ \alpha_x - \frac{l_x + b(\beta + \gamma_x)}{a+b} \}^2] d\alpha_x \quad (7-5)$$

$$U_{P2} = \int_{-\alpha_{x \max}}^{-\alpha_{x \min}} \exp[2\pi i k \frac{a(a+b)}{2b} \{ \alpha_x - \frac{l_x + b(-\beta + \gamma_x)}{a+b} \}^2] d\alpha_x \quad (7-6)$$

と表わせる。ここで  $U_{P1}$ 、 $U_{P2}$  はそれぞれ波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  より点 P へ伝搬する複素振幅の  $\alpha_x$  についての積分項であり、各文字は、

$$C = \frac{a}{b} AK \exp[2\pi ik(a+b)] \int_{-\alpha_{y \max}}^{\alpha_{y \max}} \exp[2\pi ik \frac{a(a+b)}{2b} \{ \alpha_y - \frac{l_x + b\gamma_y}{a+b} \}^2] d\alpha_y \quad (7-7)$$

$$R_1 = \frac{l_x^2 - 2al_x(\beta + \gamma_x) - ab(\beta + \gamma_x)^2}{2(a+b)} + \frac{l_y^2 + 2al_y\gamma_y - ab\gamma_y^2}{2(a+b)} \quad (7-8)$$

$$R_2 = \frac{l_x^2 - 2al_x(-\beta + \gamma_x) - ab(-\beta + \gamma_x)^2}{2(a+b)} + \frac{l_y^2 + 2al_y\gamma_y - ab\gamma_y^2}{2(a+b)} \quad (7-9)$$

で表わされ、特に  $R_1$ 、 $R_2$  は光源から点 P までの距離と

$$\overline{S_1 P} = R_1 + a + b \quad (7-10)$$

$$\overline{S_2 P} = R_2 + a + b \quad (7-11)$$

なる関係で結ばれている。

式 (7-5) の積分について変数の置換を行なうと

$$U_{P1} = \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{-1/2} \int_{V_1}^{N_1} \exp\left[i \frac{\pi}{2} v^2\right] dv \quad (7-12)$$

となる。ここでは、

$$v = \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{1/2} \left( \alpha_x - \frac{l_x + b(\beta + \gamma_x)}{a+b} \right) \quad (7-13)$$

$$V_1 = \left( \alpha_{x \min} - \frac{l_x + b(\beta + \gamma_x)}{a+b} \right) \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{1/2} \quad (7-14)$$

$$N_1 = \left( \alpha_{x \max} - \frac{l_x + b(-\beta + \gamma_x)}{a+b} \right) \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{1/2} \quad (7-15)$$

である。諸パラメータを透過型電子顕微鏡、JEM-200CX、加速電圧 200 kV の場合について見積ってみると、

$$\alpha_{x \max} = \alpha_{y \max} = 7.1 \times 10^{-4} \text{ rad} \quad (\text{フィラメントより } 100 \mu\text{m} \text{ 離れた波面まで考慮})$$

$$\alpha_{x \min} = \frac{0.3 \times 10^{-3}}{140} = 2.1 \times 10^{-6} \text{ rad} \quad (\text{フィラメント径 } 0.6 \times 10^{-3} \text{ mm})$$

$$\beta = 5.5 \times 10^{-5} \text{ rad} \quad (\text{フィラメント印加電圧 } 50 \text{ V, } 1.1 \times 10^{-6} \text{ rad/V})$$

$$\gamma_x = \gamma_y = 1.1 \times 10^{-5} \text{ rad}$$

(対物レンズ焦点距離 1.5 mm、入射電子の光軸と成す角  $10^{-3}$  rad)

$$a = 141 \text{ mm,} \quad b = 44 \text{ mm}$$

$$l_x = l_y = 0, \quad \lambda = 0.0025 \times 10^{-6} \text{ mm} \quad (\text{加速電圧 } 200 \text{ kV})$$

であり、これより

$$\left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{1/2} = 2.2 \times 10^6 \quad (7-16)$$

$$N \geq \min(|N_1|, |N_2|) \geq 7.2 \times 10^2 \quad (7-17)$$

を満たす  $N$  について

$$\int_0^N \exp\left[i \frac{\pi}{2} v^2\right] dv \doteq \frac{1}{2} (1+i) \quad (7-18)$$

を得る。この精度は  $10^{-3}$  以上である。式 (7-18) を用いて式 (7-12) は

$$\begin{aligned} U_{P1} &= \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{-1/2} \left\{ \frac{1}{2} (1+i) - \int_0^{V_1} \exp\left[i \frac{\pi}{2} v^2\right] dv \right\} \\ &= \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{-1/2} \left\{ \frac{1}{2} - \mathcal{C}(V_1) + \frac{i}{2} - i \mathcal{S}(V_1) \right\} \end{aligned} \quad (7-20)$$

である。ここで  $C(V_1)$ 、 $S(V_2)$  はフレネル積分を表わし、

$$C(\omega) = \int_0^\omega \cos \frac{\pi}{2} \tau^2 d\tau \quad (7-21)$$

$$S(\omega) = \int_0^\omega \sin \frac{\pi}{2} \tau^2 d\tau$$

である。全く同様にして、

$$U_{P2} = \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{-1/2} \left\{ \frac{1}{2} + C(V_2) + \frac{i}{2} + iS(V_2) \right\} \quad (7-22)$$

$$V_2 = \left( -\alpha_{x \min} - \frac{1_x - b(-\beta + \gamma x)}{a+b} \right) \left[ \frac{2a(a+b)}{\lambda b} \right]^{1/2} \quad (7-23)$$

$$C = \frac{a}{b} AK \exp[2\pi ik(a+b)](1+i) = C'(1+i) \quad (7-24)$$

を得る。式 (7-24) では  $\alpha_y$  に関する関数は定数となり、 $y$  軸方向には均一な干渉縞が得られることを示している。

以上より像面上点  $P$  での強度  $I_P$  は

$$I_P = |U_P|^2 = \left( \frac{a}{b} AK \right)^2 \left\{ \{A_1^2 + (1+B_1)^2\} + \{A_2^2 + (1-B_2)^2\} \right. \\ \left. + 2\{(1+B_1)(1-B_2) - A_1 A_2\} \cos \frac{2\pi}{\lambda} (R_1 - R_2) \right. \\ \left. - 2\{A_1(1-B_2) + A_2(1+B_1)\} \sin \frac{2\pi}{\lambda} (R_1 - R_2) \right\} \quad (7-25)$$

で表わされる。ただし、

$$A_1 = C(V_1) - S(V_1), \quad A_2 = C(V_2) - S(V_2) \\ B_1 = C(V_1) + S(V_1), \quad B_2 = C(V_2) + S(V_2) \\ R_1 - R_2 = -\frac{2a\beta}{a+b} (1_x + b\gamma x) \quad (7-26)$$

である。電子線バイプリズムフィラメントを除いたモデルの、原点に点光源を置き像面  $\eta$  の光軸上の点  $(0, 0, a+b)$  において観測する強度  $I_0$  は

$$I_0 = 4 \left( \frac{a}{b} AK \right)^2 \quad (7-27)$$

である。この値にて規格化を行なうことにする。光源はインコヒーレントを仮定したため、光源上の各点光源が像面  $\eta$  上に形成する式 (7-25) に基づく干渉縞を積分すれば、求める広がりを持った光源についての干渉縞が得られる。 $d\sigma$  を球面  $\mu$  上点  $\sigma$  におけるの微小面積として

$$I_{total} = \int_{\mu} W(\sigma) I_P(\sigma) / I_0 d\sigma \quad (7-28)$$

である。ここで  $W(\sigma)$  は分布関数で  $\int W(\sigma) d\sigma = 1$  を仮定する。

式 (7-24) により、 $y$  方向の干渉縞の変化は無視できるため、 $x$  方向 1 次元について取り扱えば十分である。

### 7-3 結果及び考察

#### 7-3-1 実験結果との対応

図 7-2 に干渉縞の観察結果と、それに対応する様各パラメータを選んだシミュレーション結果について示す。観察結果は、透過型電子顕微鏡、JEM-200CX (加速電圧 200 kV) について行なわれたもので図 3-14 に示したのと同じものである。シミュレーションは、 $1$  方向について前節の式 (7-25) に基づいて行なわれたもので、光源は光軸上の点光源、すなわち、完全コヒーレント照明かつ無収差レンズの場合を仮定している。フィラメント端からのフレネル縞及び干渉縞の強度分布が実験結果と良い一致を得ている。これは、レンズの後側焦点から像面までの距離  $a+b$ 、及び電子線バイプリズムフィラメントの位置  $b$ 、をフィッティングパラメータとして実験結果と合う条件を捜した結果であり、その結果

$a+b=185$  mm、 $b=44$  mm という値を得た。この値は実際の電子顕微鏡鏡筒の大きさと照らし合わせて妥当な値となっている。フレネル縞と干渉縞の関係はパラメータ  $b$  の変化に対して敏感であり、通常電子光学系の中での位置が不明確な電子線パイプリズムの位置を少なくともミリメートルのオーダーで決定できる可能性がある。ただ、このシミュレーションの場合フィラメントの直径、フィラメント印加電圧、及び電子線のフィラメント印加電圧に対する偏向角度は実験条件及び測定値より既知とした。シミュレーションにおいては、特にフィラメント印加電圧 0 V のときフィラメントの幾何光学的な陰の部分にも回折波による干渉縞が形成されている様子や、フレネル縞の持つ複雑な強度分布が再現されている。

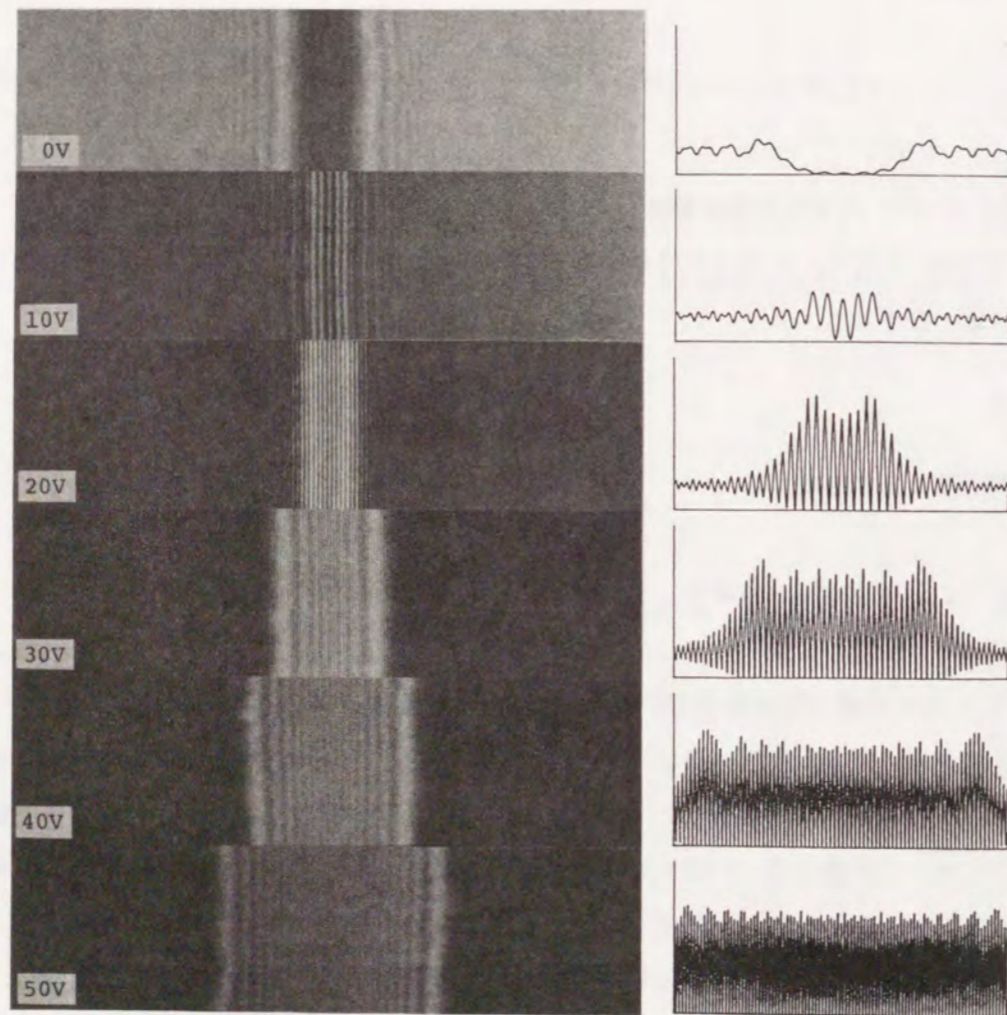


図 7-2 干渉縞とそれに対応するシミュレーション結果

この複雑な強度分布のフレネル縞は 2 枚の半無限波面  $\xi_1$ 、 $\xi_2$  からの伝搬の結果であり、試料やナイフエッジなどの 1 枚の半無限波面によって生じるフレネル縞（例えば図 2-27）とはかなり異なった強度分布となっている。

### 7-3-2 干渉縞コントラストの開き角依存性

光源の大きさ、厳密には完全インコヒーレントと見なせる有効光源の大きさが電子線の可干渉性を決定することについては第 2 章で述べた。本節においては、光源の大きさが干渉縞に与える影響のシミュレーションを行なった。1次元のモデルであるため対物レンズの後側焦点面上に広がる光源の大きさ  $\Delta S$  は、そのまま対物レンズに入射する電子線の開き角  $\Delta\omega$  の広がりに対応しており、焦点距離を  $f$  とおくと

$$\Delta S = f\Delta\omega \quad (7-29)$$

で表わされる。

このシミュレーションにおいては 1次元のモデルを取り扱うため開き角  $\Delta\omega$  も 1次元の角度を単位とし、本来の立体角で表わされる開き角  $\Delta\Omega$  とは  $\Delta\Omega = \pi(\Delta\omega)^2$  によって関係づけられている。例えば、実験に用いた透過型電子顕微鏡、JEM-200CX では対物レンズの焦点距離  $f=1.5$  mm であり、通常の高分解能像観察時の開き角  $\Delta\omega$  は 3 mrad ( $\Delta\Omega$  は  $3 \times 10^{-5}$  sr) 程度であるため、この時の後側焦点面上の光源の広がり は  $4.5 \mu\text{m}$  程度と推定される。

図 7-3 にシミュレーション結果を示す。開き角  $\Delta\omega$  はそれぞれ (a) 0.01 mrad、(b) 0.03 mrad、(c) 0.05 mrad、(d) 0.1 mrad である。他のパラメータはすべて図 7-2 と同じである。図 7-2 のシミュレーションは開き角 0 mrad の完全コヒーレントな場合に相当している。光源の形状は全強度を 1 に規格化したガウス分布を仮定しており、ここに示した数値はガウス分布の半値幅での値である。同じ開き角を持った電子線でもフィラメント印加電圧が大きくなり、電子線の偏向角度が大きくなるほど干渉縞のコントラストに低下がみられる。これは 2つの虚光源が離れるほど、互いに離れた部分波同士の干渉を観察しているとして説明でき、コヒーレンス度が位置の関数であることを示している。従ってあ

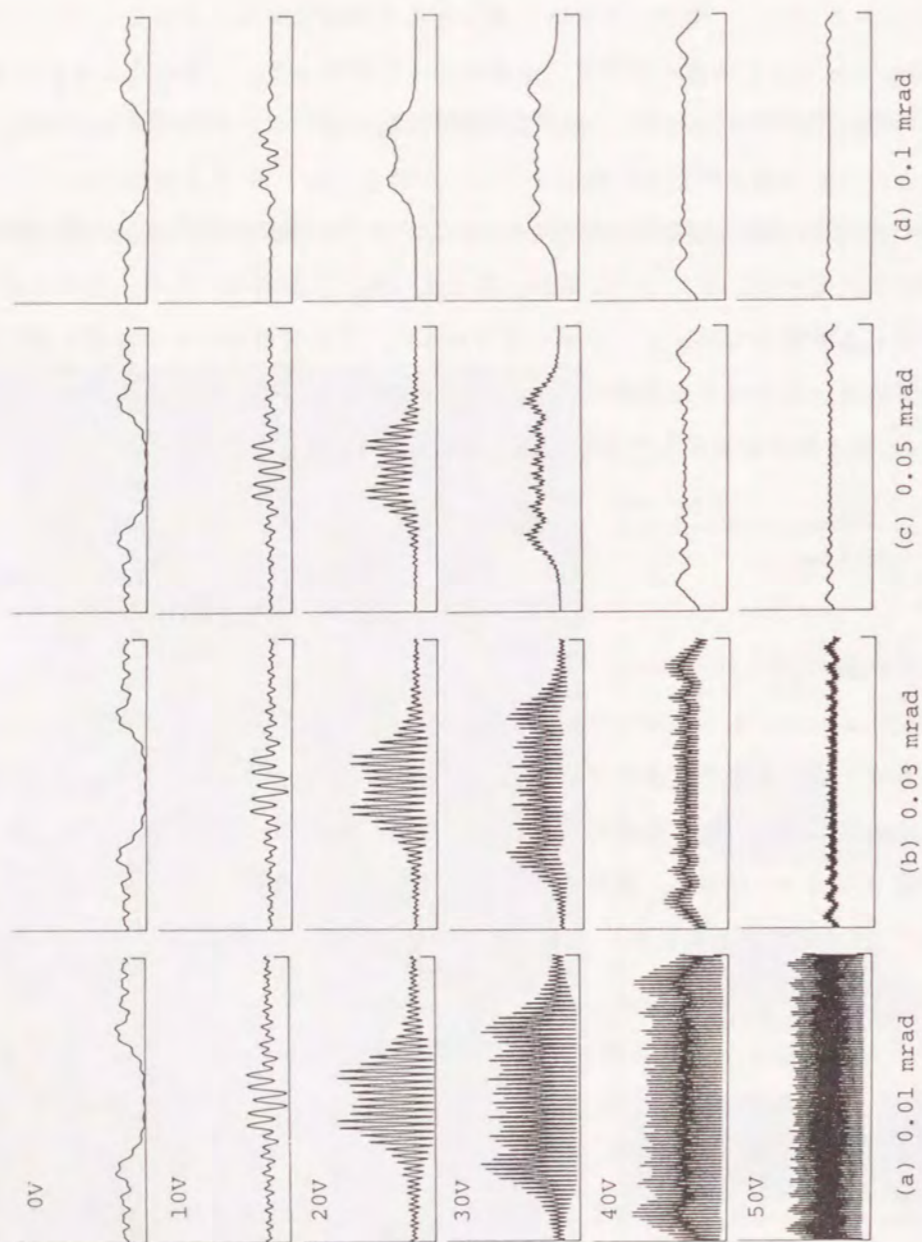


図 7-3 電子線の開き角  $\Delta\omega$  に対する干渉縞のコントラストの変化  
(フィラメント線径  $0.6 \mu\text{m}$ 、偏向角度  $1.1 \times 10^{-6} \text{ rad/V}$ )

る特定の干渉縞のコントラストのみから電子線のコヒーレンス度を議論することが危険であることを意味している。一般に空間周波数の大きい画像のホログラムを記録する際、写真フィルムであっても、TVカメラシンチレータであってもドーズ量は大きく、コントラストの強い方が S/N 比の関係などから有効であるが、このシミュレーション結果は、コントラストを高めるためには、開き角を小さくとらなければならないことを示唆している。高輝度電子銃に対する要求はまさにここにある。

図 7-3 (b) の開き角  $0.03 \text{ mrad}$  においてもフィラメント印加電圧  $30 \text{ V}$  以上では干渉縞のコントラストは  $\frac{1}{2}$  程度に劣化してしまい、良好なホログラムを記録するには可干渉性が不足していることを示している。本来は、ホログラムを記録したフィルムの特性及び現像処理におけるコントラストの変化を考慮にいれマイクロデンシトメーターによりホログラムの強度透過率を測定しなければならないが、図 7-2 の干渉縞や図 3-17、3-19 のホログラムのコントラスト、及び第 2-6-3 節における測定輝度の値より、LaB<sub>6</sub> 熱電子銃を搭載した JEM-200CX において、開き角  $\Delta\Omega$  は約  $3 \times 10^{-10} \text{ st}$  ( $\Delta\omega$  は  $0.01 \text{ mrad}$ ) を実現し電子線ホログラフィーの実験を行なっていたと推定される。電子線ホログラフィーを行なうには通常の高分解能像観察時よりも 4~5 桁小さい開き角  $\Delta\Omega$  が必要であることを示している。しかしながら、この値は高分解能電子顕微鏡にとって決して不可能な値ではなく、実験条件さえ選ばば電子線ホログラフィーが可能なのは第 3 章において実証済みである。

### 7-3-3 干渉縞コントラストのフィラメント径依存性

光源の大きさが干渉縞のコントラストに大きな影響を与えることについては述べた。これは、有効光源の大きさがコヒーレンス度と密接な関係を持っていることをシミュレーションにより再確認したことになる。しかしながら電子線ホログラフィーの可否については、光源の大きさすなわち開き角の大きさ以外に電子線バイプリズムの特性が左右する。静電型電子線バイプリズムは電子線にとって極めて有効な波面分割型ビームスプリッターであるが、同時にビームの遮蔽効果も持っていることは原理的に避けようがない。可干渉性の高い互いになるべく近接した部分波同士を用いて干渉縞を作るために、フィラメントはその直径が極力小さいことが望まれる。この効果についてのシミュレーションを行なった。

図 7-4 にその結果を示す。開き角  $\Delta\omega$  はいずれも 0.03 mrad である。電子線バイプリズムの光学系における位置や、構造などは前節までのモデルと同じであるが、フィラメント径とフィラメント印加電圧に対する電子線の偏向角度は、(a) ~ (c) については式 (3-5) より求め、(d) については実測値を用いており、以下の通りである。(a) フィラメント径 0.008  $\mu\text{m}\phi$ 、偏向角度  $6.1 \times 10^{-7}$  rad/V、(b) 0.15  $\mu\text{m}\phi$ 、 $7.9 \times 10^{-7}$  rad/V、(c) 0.3  $\mu\text{m}\phi$ 、 $8.5 \times 10^{-7}$  rad/V、(d) 0.625  $\mu\text{m}\phi$ 、 $1.1 \times 10^{-6}$  rad/V (実測値)、(a) については、Wollaston 法によって作成された白金極細線の最小線径 (Sacharoff et al., 1985)、(b) は電子線バイプリズムフィラメントとしての使用が報告された最小線径値 (Ohshita et al., 1984)、(c) は石英ガラス線を用いて作成されるフィラメントの平均線径値 (Tonomura et al., 1979)、(d) は本研究において実際に使用したフィラメントについての値である。各々のフィラメントで印加電圧に対する電子線の偏向角度が異なるため、単純にそれぞれの干渉縞を比較することはできないが、例えばフィラメント印加電圧が同じ場合、(c) の 40 V と (d) の 40 V の干渉縞を比較すると (c) の方が干渉縞のコントラストはほぼ 2 倍になっている。また、コントラストがほぼ同じ (c) の 40 V と (d) の 30 V を比較すると、干渉縞の本数及び干渉領域の大きさは (c) の方がほぼ 1.5 倍となっている。フィラメントへの電圧印加に技術的困難はほとんど無いため、フィラメント径を小さくすることは良好なホログラムを作成する上で有効な方法と言える。特に (b) に示したフィラメント径 0.15  $\mu\text{m}\phi$  の電子線バイプリズムは、既に報告のあるものであり、今後作製技術が確立され再現性良く製作できるようになることが望まれる。

光源の大きさと電子線バイプリズムフィラメントの線径とどちらがホログラムに対して与える影響が大きいかということについては、図 7-3 (a) のフィラメント径 0.6  $\mu\text{m}\phi$ 、開き角 0.01 mrad と図 7-4 (a) のフィラメント径 0.008  $\mu\text{m}\phi$ 、開き角 0.03 mrad を比較すれば干渉縞のコントラスト、本数、干渉領域のいずれをとっても図 7-3 (a) の方がはるかに優れている。従って、このシミュレーションからも電子線ホログラフィー発展の初期に可干渉性の良い、高輝度電子銃の開発に最大の努力が払われたのは極めて正しいものであったことが分かる。

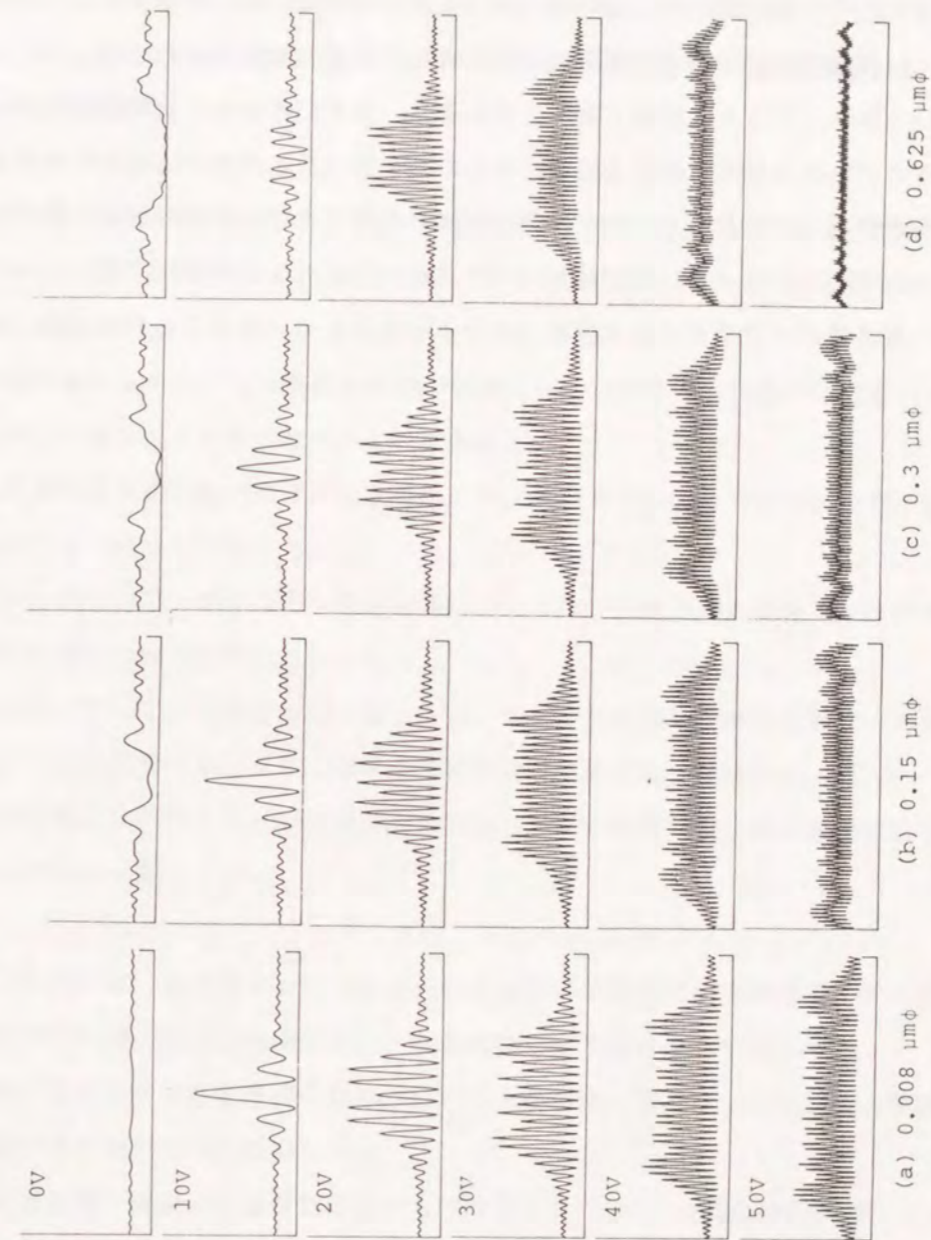


図 7-4 フィラメント径の変化に対する干渉縞のコントラストの変化  
(開き角 0.03 mrad)



本章においては、電子線干渉の様子を定性的かつ定量的に知るため、実験に則した取り扱いのできる干渉縞形成のシミュレーションを独自に開発した。そのモデルと用いた仮定については詳細な検討を加え、実際の実験による干渉縞の観察結果とシミュレーション結果が良い一致を示すことを確認した。これにより、簡単には知ることが困難であった電子線バイプリズムの光学系における位置、そして電子線の開き角などに具体的な値を評価できる可能性が明らかとなった。また、様々な実験条件における干渉縞形成の様子をシミュレーションすることにより、電子線ホログラフィーにとって高輝度電子銃とフィラメント径の細い電子線バイプリズムが本質的に必要不可欠なものであることを再確認した。

本論文は、電子線ホログラフィーを単なる電子顕微鏡技術の1つとしてではなく、電子顕微鏡を用いたホログラムの記録からそこに含まれる情報の再生までを一貫した技術としてとらえ、その技術的な向上と新たな可能性の開発について述べたものである。各章の要旨は以下の通りである。

第1章においては、電子線ホログラフィー顕微鏡によるホログラム作成と、得られたホログラムからの像再生に関連して必要となる、今日までに得られている研究結果について概説した。すなわち、

- (1) 電子線ホログラフィー発展の経緯を概観した。この中で、技術的な問題点とそれに対して採られた解決策について明らかにした。
- (2) 透過型電子顕微鏡の光学系を前提として、今日までに試みられている電子線ホログラフィーについて述べた。
- (3) ホログラムからの位相分布再生方法については、観察対象と関連づけながら4種類の方法について説明を行なった。
- (4) 特に、フーリエ変換再生法に関しては、デジタル画像処理の根幹を成す方法であり、具体的な例を示しながら光学再生との関連を踏まえて詳述した。
- (5) 電子線ホログラフィーの現状について述べ、その背景の中における本研究の位置づけを行なった。

第2章においては、電子線ホログラフィーにとって必要不可欠な高輝度電子銃の開発とその特性の評価方法、及び具体的に得られた性能について述べた。すなわち、

- (1) 電子線の可干渉性と輝度の概念、並びにその相互の関連について述べ、高輝度電子銃の重要性について説明した。
- (2) 高輝度電子銃開発の基礎的研究として行なった、LaB<sub>6</sub>単結晶陰極のエミッションパターン観察などによる熱電界放射特性について述べた。
- (3) 上記特性評価により見出した、LaB<sub>6</sub>熱電界放射型電子銃としての安定動作条件について述べた。
- (4) 透過型電子顕微鏡を用いた4種類の電子線源の輝度測定方法について、各々その

特徴を挙げて紹介した。

- (5) 本研究において開発した LaB<sub>6</sub> 熱電界放射型電子銃を実際に透過型電子顕微鏡に取り付け輝度測定を行なった結果について述べ、期待通りの良好な特性が得られたことを確認した。

第3章においては、加熱清浄型電子線バイプリズムの開発と、それをを用いた二光束電子線ホログラフィーの予備的な実験、及び実験結果について述べた。すなわち、

- (1) 電子線バイプリズムの構造と透過型電子顕微鏡光学系との関係について簡単に述べた。
- (2) 静電型電子線バイプリズムについて、その屈折効果及び電子線ホログラムとして記録できる試料面上の領域、その時の干渉縞の間隔などについて一般的な取り扱いを説明した。
- (3) 独自に開発した加熱清浄型電子線バイプリズムの作製について述べた。特に、電子線バイプリズム中央電極として用いた白金極細線の取り扱い方法に関しては詳述を行なった。
- (4) 白金フィラメントの通電加熱を行ない、その清浄化作用を走査型及び透過型電子顕微鏡にて観察した。その結果、フィラメントの加熱が電子線バイプリズムにとって有効な寿命延長の方法であることを確認した。
- (5) 加熱の結果、フィラメントの線径がわずかながら細くなることから白金フィラメントの加熱は電子線バイプリズムにとって本質的に有効であること、並びに実験中も加熱を続けフィラメント汚染そのものを防止できることを確認した。
- (6) 金微粒子を試料に JEM-200CX にて電子線ホログラムの記録、及びデジタル画像処理による像再生（フーリエ変換再生法）など電子線ホログラフィーとしての予備的な実験結果について述べた。
- (7) ホログラフィー応用技術の1つである二重露光法を行ない、得られた位相分布がフーリエ変換再生法によるものと一致することを確認した。
- (8) 透過型電子顕微鏡、JEM-4000EX、JEM-100C-FEG の各々に加熱清浄型電子線バイプリズムを取り付け、輝度の違いが与える干渉縞、及びホログラムのコントラストの違いについて述べた。

第4章においては、従来のフーリエ変換再生法を応用し新たに開発した空間周波数拡張再生法について述べた。すなわち、

- (1) 空間周波数拡張再生法の原理について説明し、この方法が従来のフーリエ変換再生法と比較し、最高で3倍の高い空間周波数を持った再生像を得ることができる可能性について明らかにした。
- (2) 空間周波数拡張再生法を実現するための方法について検討を行い、電子線ホログラフィー用オンライン処理システム開発の必要性について述べた。
- (3) 開発したオンライン処理システムを用い、実際に予備的な実験を行なった。
- (4) MgO 微結晶、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子を試料に用いた実験結果より、空間周波数拡張再生法の有効性を確認した。
- (5) この方法の実用化に対して、いくつかの提案を行なった。

第5章においては、縞解析法とモアレトポグラフィーの技術を応用した新たな縞走査再生法について述べた。すなわち、

- (1) モアレトポグラフィーを応用すれば、電子線ホログラムから直ちに干渉顕微鏡像が得られることを示した。
- (2) 上記方法による干渉顕微鏡像より、ホログラムに記録された位相分布を再生する原理について説明を行なった。
- (3) この新たな縞走査再生法によって位相分布を再生するための画像処理装置、及び具体的な方法について述べた。
- (4) 実際に実験を行なった結果について述べた。特に、フーリエ変換再生法と実験的に比較を行ない、大容量の画像処理装置を必要としない、処理時間の短縮などの利点を明らかにした。
- (5) 電子線ホログラフィーにおいてこの縞走査再生方法により、位相分布の実時間再生を行なう方法について考察を行ない、具体的な提案を行なった。
- (6) 縞走査再生法をさらに改良した格子移動法について、その原理、利点、及び実現へ向けての具体的な提案を行なった。

第6章においては、電子線ホログラフィーのデジタル画像処理による再生方法の応用として、電子レンズの収差補正に関する予備的な実験について述べた。すなわち、

- (1) 電子線ホログラフィーによる収差補正の原理について述べた。
- (2) 収差補正に必要な波面収差関数を導出し、その特徴について述べた。
- (3) 記録されたホログラムより収差を読みとる波面収差関数読解法について概説を行なった。
- (4) 実験的に収差補正の可能性を判断するための、具体的な実験方法について述べた。
- (5) 既知の波面収差関数を用いた収差補正の実験結果について述べると共に、空間周波数領域での演算処理の精度について考察を行なった。
- (6) 波面収差関数読解法の可能性と方法について考察を行なった。

第7章においては、電子線の伝搬を波動光学的に取り扱い、電子線バイプリズムによって干渉縞が形成されていく過程を、シミュレーションにより再現できることについて述べた。すなわち、

- (1) 対物レンズの後側焦点面より像面までの電子線の伝搬を Huygens-Fresnel の式にて記述し、像面上での干渉縞強度分布の導出を行なった。
- (2) 実際の電子顕微鏡により得られた干渉縞の強度分布とシミュレーション結果が一致するようパラメータを調整し、シミュレーションが妥当なものであることを確認した。
- (3) シミュレーション結果より光学系における電子線バイプリズムの位置を精度良く求められることについて述べた。
- (4) 干渉縞コントラストの電子線開き角依存性を調べた。これによりコヒーレンス度と開き角との関係が再確認された。
- (5) 干渉縞のコントラストと電子線バイプリズムフィラメントの線径との関係について調べた。

以上各章毎に結果をまとめた。

最後に電子線ホログラフィーに関して、その問題点と将来への展望について述べる。

電子線ホログラフィーにおいては、何よりもまず可干渉性の良い電子線を必要とする。従って、より高輝度、高安定の電子銃の開発が継続されていくことは疑いようがない。しかしながら原理的に点光源の作り出せない電子線では、完全に可干渉な電子線は得られない。本研究で行なった様に、分解能や倍率を適当に選べば、ほぼ完全可干渉な電子光学系

による観察を実現することは可能であるが、散乱角度の大きい高分解能観察になるほど完全可干渉という仮定が困難になり、結像作用に可干渉性の度合(コヒーレンス度)をパラメータとして考慮しなければならなくなってくる。すなわち、部分コヒーレントな結像理論が必要となってくる。部分コヒーレントな場合の結像理論は光学では既に確立されてから久しく、電子顕微鏡においてもシミュレーションでは考慮されているものであり、これが今後の指針を与えるであろう。

電子線ホログラフィーにおける部分コヒーレント結像理論では、電子線バイプリズムフィラメントの存在を考慮にいたった取り扱いが必要と考えられる。その理由は第1に、フィラメントは静電型電子線バイプリズムにおいては原理的に取り除くことができず、このフィラメントの存在によって発生するフレネル縞が、再生像の振幅分布、位相分布のいずれにも影響を与えることが、本研究結果からも明らかである。また第2に、電子顕微鏡の光学系では完全に物体波と参照波を分離することは不可能であり、物体像の一部が欠落するなどの影響が現レベルであっても観察されることがある。この影響についても取り扱わねばならないと考えられる。また、高分解能ホログラムを記録する場合、通常は考慮に入れない中間レンズ以下の拡大レンズの収差についても取り扱わなければならない可能性がある。これは、通常の観察では光軸近傍に小さい角度で広がっている電子線が、バイプリズムによって0次透過波まで含めて大きく偏向されて拡大レンズを透過するために生じてくると予想されるものである。本研究中にもフィラメント印加電圧を大きくした場合に収差の影響と思われる像変化を観察した。

電子銃のより一層の高輝度化と結像理論が改良されれば、夢であった原子1個の観察はもとより、位相変化の定量測定により原子1個の分析が可能となると期待している。例えば、結晶中の異種原子を、まさに見つけることができるようになるのではないだろうか。この場合、回折理論の助けが必要になるであろう。しかし、高分解能電子線ホログラフィーでは結晶下面の振幅分布と位相分布を再生できることから、逆に回折理論の発展を助けることになることも期待される。

電子線ホログラフィーのホログラフィーとしての欠点は実時間性の無いことである。この問題に対して、高感度TVカメラを用いてホログラムを電子顕微鏡から直接画像処理システムに入力し、高速コンピュータによる処理像を出力し準実時間観察しようという試みが既に行なわれ始めている。しかしながら、本論文中で述べたように、イメージホログラフィーでは参照格子を用意するだけで直ちに干渉顕微鏡像が得られることから、コンピュ

一夕の能力にのみ頼るのでなく、縞走査再生法、格子移動再生法が実時間再生法として用いられるようになると期待している。

実時間位相分布観察が可能になれば、少なくともホログラムの実時間記録が可能となれば、変化するものに対して有効な解析手段を提供することになる。化学反応の過程や、転位の移動、超微粒子の形状変化などその観察対象は多く、意義は大きいと考えられる。

この様に、電子顕微鏡本体のみならず電子銃、電子線バイプリズムなどの付属装置、そして、画像再生装置としてのコンピュータシステムなどの性能の向上と共に、結像理論、回折理論が発展し再生された位相分布より意味のある情報が有効に取り出せるようになれば、電子線ホログラフィーはより広い分野でさらに大きな貢献をするようになると期待される。

#### 参考文献

- Aono, M., Nishitani, R., Oshima, C., Tanaka, T., Bannai, E. and Kawai, S.; J. Appl. Phys. 50 (1979) 4802.
- Banzhof, H., Herrmann, K. H. and Lichte, H.; Inst. Phys. Conf. Ser. No. 93 Paper presented at EUREM 88, York, 1 (1988) 263.
- Bayh, W.; Z. Phys. 169 (1962) 492.
- Boersch, H.; Physik. Zeitschr. 44 (1943) 202.
- Boersch, H., Hamisch, H., Wohlleben, D. and Grohmann, K.; Z. Phys. 159 (1960) 397.
- Bonnet, M., Troyon, M. and Gallion, P.; Proc. IXth Int. Congr. Electron Microsc., Tronto, 1 (1978) 275.
- Bragg, W. L.; Nature 149 (1942) 470.
- Brünger, W.; Z. Phys. 250 (1972) 263.
- Buhl, R.; Z. Phys. 155 (1959) 395.
- Cowley, J. M. and Walker D. J.; Ultramicroscopy 6 (1981) 71.
- Crewe, A. V., Eggenberger, D. N., Wall, J. and Welter, L. M.; Rev. Sci. Instr. 39 (1968) 576.
- Crewe, A. V., Wall, J. and Langmore, J.; Science 168 (1970) 1338.
- Crewe, A. V.; Chemica Scripta 14 (1979) 17.
- DeVelis, J. B., Parrent Jr., G. B. and Thompson, B. J.; J. Opt. Soc. Am. 56 (1966) 423.
- Faget, J. and Fert, C.; Comptes Rendus (Paris) 243 (1956) 2028.
- Formanek, H., Muller, M., Hahn, M. H. and Koller, T.; Naturwiss. 58 (1971) 339.
- Frabboni, S., Matteucci, G. and Pozzi, G.; Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 2196.
- Frabboni, S., Matteucci, G. and Pozzi, G.; Ultramicroscopy 23 (1987) 29.
- Franke, F. J., Herrmann, K. -H. and Lichte, H.; Scan. Microsc. Suppl. 2 (1988) 59.
- Fu, S., Chen, J., Wang, Z. and Cao, H.; Optik 76 (1987) 45.
- Futamoto, M., Aita, T. and Kawabe, U.; Japan. J. Appl. Phys. 14 (1975) 1263.

Futamoto, M., Hosoki, S., Okano, H. and Kawabe, U.; J. Appl. Phys. 48 (1977) 3541.

Gabor, D.; Nature 161 (1948) 777.

Gabor, D.; Proc. R. Soc. A197 (1949) 454.

Gabor, D.; Proc. Phys. Soc. 64 (1951) 449.

Gerchberg, R. W. and Saxton, W. O.; Optik 34 (1971) 275.

Gesley, M. and Swanson, L. W.; Surface Sci. 146 (1984) 583.

Haine, M. E. and Mulvey, T.; J. Opt. Soc. Am. 42 (1952) 763.

Harada, K., Endoh, H. and Shimizu, R.; Proc. IIIrd Japan-USSR Symp. Anal. Chem., Nagoya, (1986) 205.

Harada, K., Endoh, H. and Shimizu, R.; Technol. Repts. Osaka Univ. 37 (1987) 221.

Harada, K., Endoh, H. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 37 (1988) 199.

Harada, K., Ogai, K. and Shimizu, R.; Technol. Repts. Osaka Univ. 39 (1989) 117.

原田研; 電子顕微鏡 24 (1990) 230.

Harada, K., Nagata, H., Shimizu, R., Tanji, T. and Yada, K.; Proc. XIIth Int. Congr. Electron Microsc., Seattle, 1 (1990a) 196.

Harada, K., Ogai, K. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 39 (1990b) 470.

Harada, K., Ogai, K. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 39 (1990c) 465.

Harada, K., Nagata, H. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 40 (1991) to be published.

Harada, K. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 40 (1991) to be published.

Hasegawa, S., Kawasaki, T., Endo, J., Tonomura, A., Honda, Y., Futamoto, M., Yoshida, K., Kugiya, F. and Koizumi, M.; J. Appl. Phys. 65 (1989) 2000.

Hashimoto, H., Kumao, A., Hino, K., Yotsumoto, H. and Ono, A.; Japan. J. Appl. Phys. 10 (1971) 1115.

Hashimoto, H., Kumao, A., Hino, K., Endoh, H., Yotsumoto, H. and Ono, A.; J. Electron Microsc. 22 (1973) 123.

Hashimoto, H., Endoh, H., Tanji, T., Ono, A. and Watanabe, E.; J. Phys. Soc. Japan. 42 (1977) 1073.

Hibi, T.; J. Electron Microsc. 4 (1956) 10.

Hibino, M., Sugiyama, S., Hanai, T. and Maruse, S.; J. Electron Microsc. 27 (1978) 259.

Ikuta, T.; Appl. Opt. 24 (1985) 2907.

Ikuta, T.; J. Electron Microsc. 38 (1989) 415.

生田孝; 私信 (1989).

Iwatsuki, M., Kihara, H., Nakanishi, K. and Harada, Y.; Proc. XIth Int. Congr. Electron Microsc., Kyoto, 1 (1986) 251.

Kawasaki, T., Matsuda, T., Endo, J. and Tonomura, A.; Japan. J. Appl. Phys. 29 (1990) L508.

Keller, M.; Z. Phys. 164 (1961) 274.

Kerschbaumer, E.; Z. Phys. 201 (1967) 200.

Komrska, J., Drahoš, V. and Delong, A.; Optica Acta 11 (1964) 145.

Komrska, J., Drahoš, V. and Delong, A.; Czech. J. Phys. B14 (1964) 753.

Komrska, J., Drahoš, V. and Delong, A.; Optica Acta 14 (1967) 147.

Komrska, J. and Vlachova, B.; Optica Acta 20 (1973) 207.

Krimmel, E.; Z. Phys. 158 (1960) 35.

Krimmel, E., Möllenstedt, G. and Rothemund, W.; Appl. Phys. Lett. 5 (1964) 209.

Krivanek, O. L.; Optik 45 (1976) 97.

Kudintseva, G. A., Kusnetsova, G. M., Savchenko, V. P. and Shrednik, V. N.; Izv. Akad. Nauk SSSR 35 (1971) 293.

Kuroda, K., Ebisui, H. and Suzuki, T.; J. Appl. Phys. 45 (1974) 2336.

Kuroda, K. and Suzuki, T.; J. Appl. Phys. 46 (1975) 454.

Kuzuya, M., Hibino, M. and Maruse, S.; Ultramicroscopy 15 (1984) 233.

Lauer, R.; Optik 67 (1984) 291.

Lefranc, C., Knapek, E. and Dietrich, I.; Ultramicroscopy 10 (1982) 111.

Leith, E. N. and Upatnieks, J.; J. Opt. Soc. Am. 52 (1962) 1123.

Leith, E. N. and Upatnieks, J.; J. Opt. Soc. Am. 53 (1963) 1377.

Leith, E. N. and Upatnieks, J.; J. Opt. Soc. Am. 54 (1964) 1295.

Leuthner, T., Lichte, H. and Herrmann, K. -H.; Phys. Stat. Sol. A116 (1989) 113.

Leuthner, T., Lichte, H., Herrmann, K. -H. and Sum, J.; Proc. XIIth Int. Congr. Electron Microsc., Seattle, 1 (1990) 224.

Lichte, H. and Möllenstedt, G.; J. Phys. E: Sci. Instrum. 12 (1979) 941.  
Lichte, H.; Optik 70 (1985) 176.  
Lichte, H.; Ultramicroscopy 20 (1986) 293.  
Lin, J. A. and Cowley, J. M.; Ultramicroscopy 19 (1986) 179.  
Marton, L.; Phys. Rev. 85 (1952) 1057.  
Marton, L., Arol Simpson, J. and Suddeth, J. A.; Phys. Rev. 90 (1953) 490.  
Matsuda, T., Hasegawa, S., Igarashi, M., Kobayashi, T., Naito, M., Kajiyama, H.,  
Endo, J., Osakabe, N., Tonomura, A. and Aoki, R.; Phys. Rev. Lett. 62  
(1989) 2519.  
Matsumoto, K. and Takashima, M.; J. Opt. Soc. Am. 60 (1970) 30.  
Matteucci, G.; J. Microsc. Spectrosc. Electron. 3 (1978) 69.  
Matteucci, G., Pozzi, G. and Vanzi, M.; Giornale di Fisica 20 (1979) 10.  
Matteucci, G., Missiroli, G. F. and Pozzi, G.; Ultramicroscopy 6 (1981) 109.  
Matteucci, G., Missiroli, G. F. and Pozzi, G.; Ultramicroscopy 7 (1982) 277.  
Matteucci, G., Missiroli, G. F. and Pozzi, G.; Ultramicroscopy 8 (1982) 403.  
Matteucci, G., Missiroli, G. F., Chen, J. W. and Pozzi, G.; Appl. Phys. Lett. 52  
(1988) 176.  
Misell, D. L.; J. Phys. D: Appl. Phys. 6 (1973) L6.  
Misell, D. L., Burge, R. E. and Greenaway, A. H.; J. Phys. D7 (1974) L27.  
Missiroli, G. F., Pozzi, G. and Valdre, U.; J. Phys. E: Sci. Instrum. 14 (1981)  
649.  
Möllenstedt, G. and Düker, H.; Naturwiss. 42 (1955) 41.  
Möllenstedt, G. and Düker, H.; Z. Physik 145 (1956) 377.  
Möllenstedt, G.; Optik 13 (1956) 209.  
Möllenstedt, G. and Bayh, W.; Physik. Blätter 18 (1962) 299.  
Möllenstedt, G. and Wahl, H.; Naturwiss. 55 (1968) 340.  
Möllenstedt, G. and Lichte, H.; Optik 51 (1978) 423.  
Möllenstedt, G., Schmid, H. and Lichte, H.; Proc. Xth Int. Congr. Electron  
Microsc., Humburg, 1 (1982) 733.  
Munch, J.; Optik 43 (1975) 79.  
Nagata, H., Harada, K. and Shimizu, R.; J. Appl. Phys. 68 (1990) 3614.

Ohshita, A., Teraoka, H. and Tomita, H.; Ultramicroscopy 12 (1984) 247.  
Ohshita, A., Teraoka, H., Mametani, Y. and Tomita, H.; J. Electron Microsc. 35  
(1986) 111.  
Ohshita, A., Numata, Y., Mametani, Y. and Tomita, H.; J. Electron Microsc. 37  
(1988) 47.  
Osakabe, N., Yoshida, K., Horiuchi, Y., Matsuda, T., Tanabe, H., Okuwaki, T.,  
Endo, J., Fujiwara, H. and Tonomura, A.; Appl. Phys. Lett. 42 (1983) 746.  
Osakabe, N., Matsuda, T., Kawasaki, T., Endo, J., Tonomura, A., Yano, S. and  
Yamada, H.; Phys. Rev. A34 (1986) 815.  
Osakabe, N., Matsuda, T., Endo, J. and Tonomura, A.; Japan. J. Appl. Phys. 27  
(1988) L1772.  
Osakabe, N., Endo, J., Matsuda, T., Tonomura, A. and Fukuhara, A.; Phys. Rev.  
Lett. 62 (1989) 2969.  
Pashley, D. W.; Advances in Phys. 14 (1965) 327.  
Pozzi, G.; Optik 60 (1982) 175.  
Pozzi, G., Matteucci, G. and Carpenter, R. W.; Proc. XIth Int. Congr. Electron  
Microsc., Kyoto, 1 (1986) 275.  
Reid, G. T., Rixon, R. C. and Messer, H. I.; Opt. Laser Technol. 16 (1984) 315.  
Sacharoff, A. C., Westervelt, R. M. and Bevk, J.; Rev. Sci. Instrum. 56 (1985)  
1344.  
Samoto, N., Shimizu, R., Hashimoto, H., Tamura, N., Gamo, K. and Namba, S.;  
Japan. J. Appl. Phys. 24 (1985) 766.  
Saxon, G.; Optik 35 (1972) 195.  
Schaal, G.; Z. Phys. 241 (1971) 65.  
Scherzer, O.; Z. Phys. 101 (1936) 593.  
Scherzer, O.; J. Appl. Phys. 20 (1949) 20.  
Shimizu, R., Kataoka, Y., Tanaka, T. and Kawai, S.; Japan. J. Appl. Phys. 14  
(1975) 1089.  
Shimizu, R., Shinike, T., Kawai, S. and Tanaka, T.; Japan. J. Appl. Phys. 16  
(1977) 669.

Shimizu, R., Shinike, T., Ichimura, S., Kawaii, S. and Tanaka, T.; J. Vac. Sci. Technol. 15 (1978) 922.

Shimizu, R., Onoda, H., Hagiwara, H. and Ishii, S.; J. Appl. Phys. 52 (1981) 6316.

Shimizu, R., Onoda, H., Hashimoto, H. and Hagiwara, H.; J. Appl. Phys. 55 (1984) 1379.

Someya, T., Goto, T., Harada, Y., Yamada, K., Koike, H. and Watanabe, M.; Optik 41 (1974) 225.

Speidel, R. and Kurz, D.; Optik 49 (1977) 173.

Swanson, L. W. and Martin, N. A.; J. Appl. Phys. 46 (1975) 2029.

Swanson, L. W., Gesley, M. A. and Davis, P. R.; Surface Sci. 107 (1981) 263.

Takasaki, H.; Appl. Opt. 9 (1970) 1457.

Takayanagi, K., Tanishiro, Y., Kobayashi, K., Akiyama, K. and Yagi, K.; Japan. J. Appl. Phys. 26 (1987) L957.

Takeda, M., Ina, H. and Kobayashi, S.; J. Opt. Soc. Am. 72 (1982) 156.

Takeda, M. and Mutoh, K.; Appl. Opt. 22 (1983) 3977.

Takeda, M. and Ru, Q. S.; Appl. Opt. 24 (1985) 3068.

Takeguchi, M., Harada, K. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 39 (1990) 269.

Taniguchi, Y., Ikuta, T., Endoh, H. and Shimizu, R.; J. Electron Microsc. 39 (1990) 137.

Taniguchi, Y., Shimizu, R., Chaya, M. and Ikuta, T.; Proc. XIIth Int. Congr. Electron Microsc., Seattle, 1 (1990) 458.

Thompson, B. J. and Wolf, E.; J. Opt. Soc. Am. 47 (1957) 895.

Tomita, H., Matsuda, T. and Komoda, T.; Japan. J. Appl. Phys. 9 (1970) 719.

Tomita, H., Matsuda, T. and Komoda, T.; Japan. J. Appl. Phys. 11 (1972) 143.

Tonomura, A., Fukuhara, A., Watanabe, H. and Komoda, T.; Japan. J. Appl. Phys. 7 (1968) 295.

Tonomura, A. and Komoda, T.; J. Electron Microsc. 22 (1973) 141.

Tonomura, A., Matsuda, T. and Komoda, T.; Japan. J. Appl. Phys. 17 (1978) 1137.

Tonomura, A., Matsuda, T., Endo, J., Todokoro, H. and Komoda, T.; J. Electron Microsc. 28 (1979a) 1.

Tonomura, A., Matsuda, T. and Endo, J.; Japan. J. Appl. Phys. 18 (1979b) 1373.

Tonomura, A., Matsuda, T., Endo, J., Arii, T. and Mihama, K.; Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 1430.

Tonomura, A., Matsuda, T., Tanabe, H., Osakabe, N., Endo, J., Fukuhara, A., Shinagawa, K. and Fujiwara, H.; Phys. Rev. B25 (1982a) 6799.

Tonomura, A., Matsuda, T., Suzuki, R., Fukuhara, A., Osakabe, N., Umezaki, H., Endo, J., Shinagawa, K., Sugita, Y. and Fujiwara, H.; Phys. Rev. Lett. 48 (1982b) 1443.

Tonomura, A., Umezaki, H., Matsuda, T., Osakabe, N., Endo, J. and Sugita, Y.; Phys. Rev. Lett. 51 (1983a) 331.

Tonomura, A., Umezaki, H., Matsuda, T., Osakabe, N., Endo, J. and Sugita, Y.; Proc. Int. Symp. Foundations of Quantum Mechanics, Tokyo (1983b) 20.

Tonomura, A.; J. Electron Microsc. 33 (1984) 101.

Tonomura, A., Matsuda, T., Kawasaki, T., Endo, J. and Osakabe, N.; Phys. Rev. Lett. 54 (1985) 60.

Tonomura, A., Osakabe, N., Matsuda, T., Kawasaki, T., Endo, J., Yano, S. and Yamada, H.; Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 792.

Tonomura, A.; Rev. Mod. Phys. 59 (1987) 639.

Toyooka, S. and Iwaasa, Y.; Appl. Opt. 25 (1986) 1630.

Upatnieks, J., Vander Lugt, A. and Leith, E.; Appl. Opt. 5 (1966) 589.

Völkl, E. and Lichte, H.; Ultramicroscopy 32 (1990) 177.

Weingärtner, I., Mirandé, W. and Menzel, E.; Optik 30 (1969) 318.

Weingärtner, I., Mirandé, W. and Menzel, E.; Optik 31 (1970) 335.

Yatagai, T. and Kanou, T.; Opt. Eng. 23 (1984) 357.

Yatagai, T., Ohmura, K., Iwasaki, S., Hasegawa, S., Endo, J. and Tonomura, A.; Appl. Opt. 26 (1987) 377.

Yoshikawa, H., Takeguchi, M. and Shimizu, R.; Technol. Repts. Osaka Univ. 41 (1991) to be published.

Zernike, F.; Physica 5 (1938) 785.

## 謝辞

本研究は、志水隆一教授の御指導のもとに大阪大学工学部応用物理学科において実施されたものである。研究の遂行に当たり、終始懇切な御指導を賜りました志水隆一先生に心より厚く御礼申し上げます。

応用物理学科教授一岡芳樹先生には本論文作成に当たり、詳しく御検討頂き、有益な御教示を賜りました。ここに厚く御礼申し上げます。同じく応用物理学科樹下行三教授、南茂夫教授、興地斐男教授、産業科学研究所豊田順一教授、超高温理工学研究施設後藤誠一教授の各先生方にも本論文作成に関し様々な御教示を頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

また終始有益な御助言、及び御援助頂きました助教授上田一之先生、助教授高井義造先生、助手河藤栄三先生、助手木村吉秀先生、教務員坪川純之先生に深く御礼申し上げます。

ホログラフィー一般ならびに縞解析法について御指導を頂きました九州工業大学教授横関俊介先生、波面収差関数の取扱い、縞解析法について、特に縞走査再生法、格子移動法について御教授頂きました大阪電気通信大学教授生田孝先生、電子顕微鏡結像理論、並びにホログラフィーからの再生画像処理システム開発にあたり御指導頂きました京都工芸繊維大学助教授遠藤久満先生に厚く御礼申し上げます。

電子線ホログラフィーの研究を始めるにあたり、電子線バイプリズムの構造や、観察の方法などについて御指導頂きました日立基礎研究所外村彰博士、長我部信行博士、また実際に電子線ホログラフィー顕微鏡を操作し干渉縞の観察と、石英ガラスフィラメントの作製実験を行なわせて頂きましたドイツ、Tübingen 大学名誉教授 G. Möllenstedt 先生、同教授 H. Lichte 先生に厚く御礼申し上げます。

志水研究室の諸先輩方、諸兄には、一方ならず御支援頂きました。横田康広博士（現、岡山理科大学）、竹田真帆人博士（現、大阪大学）、味香夏夫博士（現、三菱電機）、富田雅人博士（現、NTT）、桑原真砂博士（現、IBM）の先輩方には、本研究室配属以来、研究生活において終始激励頂きました。また、客員研究員丁澤軍博士（現、中国科学技术大学）、及び大学院後期課程黒河明氏、吉川英樹氏、白永煥氏には、良き仲間として終始暖かい御助言を頂きました。同じく谷口佳史氏には第4章のオンライン処理システムの開発に関して御協力頂きました。また竹口雅樹氏には本研究に関連した諸論文作成に際し多々御協力頂きました。永田治人氏（現、松下電器）には第2章のエミッションパターン観察及び熱電界放射特性の評価において実験をして頂きました。大学院前期課程小粥啓子さんには第5章、第6章の画像処理プログラム改良、及び開発に関して御協力頂きました。学部4年次多留谷政良氏、森川容任氏には本論文作成に際し御協力頂きました。これらの方々に厚く御礼申し上げます。

## List of Publications

- (1) Ken HARADA, Hisamitsu ENDOH and Ryuichi SHIMIZU  
'Microprobe Analysis of Fine Particles'  
Proc. of the Third JAPAN-USSR Joint Symposium on Analytical Chemistry, (Nagoya, November 5-9, 1986) pp 205-206.
- (2) Ken HARADA, Hisamitsu ENDOH and Ryuichi SHIMIZU  
'In-Situ Observations of Growing Process of Fine Particles by High Resolution Electron Microscopy'  
Technology Reports of the Osaka University, Vol. 37 (1987) pp 221-229.
- (3) Ken HARADA, Hisamitsu ENDOH and Ryuichi SHIMIZU  
'Anti-Contamination Electron Biprism for Electron Holography'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 37 (1988) pp 199-201.
- (4) Ken HARADA, Keiko OGAI and Ryuichi SHIMIZU  
'Optical Simulation for Electron Holography'  
Technology Reports of the Osaka University, Vol. 39 (1989) pp 117-128.
- (5) Yoshiyuki TSUBOKAWA, Hisamitsu ENDOH, Ryuichi SHIMIZU, Junichi OGIWARA, Ken HARADA and Yoshifumi TANIGUCHI  
'High Resolution Observation of High  $T_c$  Superconductor Based on Bi-Ca-Sr-Cu-O System'  
Proc. of the International Symposium on New Developments in Applied Superconductivity, (Osaka, October 17-19, 1988) pp 255-260, published by World Scientific (1989).



- (6) 原田 研  
'電子線ホログラフィー用白金極細線作製法'  
電子顕微鏡、Vol. 24 (1990) pp 230-235
- (7) Masaki TAKEGUCHI, Ken HARADA and Ryuichi SHIMIZU  
'Observation of GaAs(110) Surface Defect by Reflection  
Electron Holography'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 39 (1990) pp 269-272.
- (8) Ken HARADA, Haruto NAGATA, Ryuichi SHIMIZU, Takayoshi TANJI  
and Keiji YADA  
'<310> Single Crystal LaB<sub>6</sub> as Thermal Field Emitter for  
Electron Microscope'  
Proc. of the XIIth International Congress for Electron  
Microscopy, (Seattle, August 12-18, 1990) Vol. 1 pp 196-197.
- (9) Haruto NAGATA, Ken HARADA and Ryuichi SHIMIZU  
'Thermal Field Emission Observation of Single-Crystal LaB<sub>6</sub>'  
Journal of Applied Physics, Vol. 68 (1990) pp 3614-3618.
- (10) Ken HARADA, Keiko OGAI and Ryuichi SHIMIZU  
'Aberration Correction by Electron Holography using  
Numerical Reconstruction Method'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 39 (1990) pp 465-469.
- (11) Ken HARADA, Keiko OGAI and Ryuichi SHIMIZU  
'The Fringe Scanning Method as Numerical Reconstruction for  
Electron Holography'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 39 (1990) pp 470-476.

- (12) Ken HARADA, Haruto NAGATA and Ryuichi SHIMIZU  
'<310> Single-Crystal LaB<sub>6</sub> as Thermal Field Emitter of High  
Brightness Electron Source'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 40 (1991) to be  
published.
- (13) Ken HARADA and Ryuichi SHIMIZU  
'A New FFT Method for Numerical Reconstruction in Electron  
Holography'  
Journal of Electron Microscopy, Vol. 40 (1991) to be  
published.

正誤表

ページ	行	誤	正
6	18	Upatonieks	Upatnieks
7	22	A/cm <sup>2</sup> ·st	A/cm <sup>2</sup> ·sr (以下同様)
8	14	st	sr (以下同様)
15	18	Larer	Lauer
57	22	空間電界	空間電荷
59	11	(2-23)	(2-21)
59	12	10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-1</sup>
59	19	V/m	V/cm
60	2	1.0 x 10 <sup>-6</sup> V/m	1.0 x 10 <sup>6</sup> V/cm
71	5	-20.0	+5 ~ 6
87	8	8 μmφ	8 nmφ
126	7	Aharanov	Aharonov
132	13	直行性	直交性
144	2	よるの回転	よる像の回転

