博士学位論文

電子源輝度および電子ビームコヒーレンスの精密測定法の開発

大阪大学大学院工学研究科

畑中 修平

2024 年 7 月

概要

現在, 電子顕微鏡の電子源として熱電子銃, 冷陰極電界放出電子銃, および Schottky 型電界放出電子銃が広く使われている．近年では, 光電効果で電子ビームを生成するフォトカソードが超高速電子顕微鏡の分野で使われるようになった．これらの異なる電子源の主な違いは, 輝度およびビームコヒーレンスである．試料面の空間コヒーレンスは照射レンズ系にも依存する物理量である一方, 輝度は光軸に沿って保存量であるため, 電子源の性能指標として重要である．しかしながら, 既存の輝度測定の精度は悪く, フォトカソードのような新しい電子源開発や従来の電子源の性能向上にとって輝度の正確な測定手法が必要である．本研究では, 電子波動場の計測に基づく空間コヒーレンス測定と Wigner 関数の再構成に取り組み, 光軸上の輝度を高い精度と確度で求める手法の確立を目的とした．

一般に熱電子銃は, ビームコヒーレンスが悪く, 可干渉領域が極めて限定的であるため, その定量評価が困難であった．本研究では, Schottky 型電界放出電子銃で用いられた, 絞りからの Fraunhofer 回折である Airy パターンの強度分布解析の手法を拡張し, 熱電子銃に適用した．空間コヒーレンスの劣るビームで Airy パターンを取得するため, 集束イオンビーム装置を用いて加工限界サイズに近い極小の単孔絞りを作製した．この絞りを透過電子顕微鏡の制限視野絞りとして用いて Airy パターンを取得した．さらに, Airy パターンのフィッティング計算に, 熱電子銃の特徴である非対称な強度分布を考慮したモデルを考案し, 空間コヒーレンスの定量評価を初めて実現した．冷陰極電界放出電子銃についても Airy パターンの強度分布解析による空間コヒーレンス測定を実施した．これらの測定結果と, Schottky 型電界放出電子銃についての先行研究の結果から, 同じ電流密度で試料面を照明した時の空間コヒーレンスを比較し, 2 種類の電界放出電子銃からの電子ビームの空間コヒーレンスが熱電子銃に比べて 1 桁半優れていることを初めて定量的に示した．

電子源の性能指標である輝度は, 従来手法では光軸近傍の有限領域の平均値 (平均輝度) として幾何光学的に測定されるため, 使用する絞り径や電子レンズなどの測定条件の影響を避けられず, 計測精度と確度に問題があった．本研究では, 電子ビームについて波動光学的な位相空間分布である Wigner 関数を再構成し, その原点の電流密度から本来の光軸上での厳密な定義である軸上輝度を求める手法を提案した．Airy パターンの強度分布解析から, 電子の密度演算子および Wigner 関数の再構成手法を考案し, 電子ビームの Wigner 関数の再構成に初めて成功した．さらに Wigner 関数を通じた考察から, 電界放出電子銃の軸上輝度が空間コヒーレンス長と軸上電流密度から求められる数式を導出した．熱電子銃の場合には, 電子銃の非対称な強度分布を考慮したモデルによるフィッティング計算で軸上輝度を求められることを示した．提案手法により, 従来の平均輝度測定と比較してはるかに高い精度および確度で電子源性能を評価可能であることを示した．

目次

第 1 章

序論

1.1 背景

1.1.1 電子顕微鏡の電子源

透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope, TEM) は電子ビームを用いて物質構造を直接観察できる装置である．当然であるが, 電子ビームの特性を決める電子源は TEM の性能に大きく影響する．1970 年以前, 電子源としては, 電流加熱によって仕事関数以上のエネルギーを電子に与えることで電子放出を実現する熱電子銃が一般的で, タングステンフィラメント [1, 2] (図 1.1(a)) やポイントフィラメント [3] が用いられていた．1960 年代後半に開発された, 六ホウ化ランタン (LaB_6) [4] (図 1.1(b)) は現在でも広く使われている．この熱電子銃のフィラメント材料の変遷は, 電子源サイズを小さくすることで, タングステンフィラメントから, ポイントフィラメント, LaB_6 と高輝度化が実現されてきた過程を示している．LaB_6 の開発とほぼ同時期である 1960 年代から 1970 年代, 陰極に電場をかけトンネル効果で電子放出を実現する電界放出電子銃 (Field emission gun, FEG) (図 1.1(c)) が開発された [5, 6]．図 1.1 に示すように, FEG の電子源サイズは熱電子銃よりもはるかに小さい．一般に, 陰極先端の曲率半径は 100 nm 程度で, 熱電子銃と比較して 1 桁から 2 桁高輝度と言われている [7]．現在では, 室温で動作する冷陰極電界放出電子銃 (cold FEG), および陰極の加熱によって電子放出が容易になる Schottky 効果を利用した Schottky 型電界放出電子銃 (Schottky FEG) の 2 種類が一般的である [1, 2]．Schottky FEG に近いが, 過去には cold FEG のチップと同様のタングステン結晶を加熱して用いる熱電界放出電子銃 [8, 9] があった．現在では熱電界放出電子銃は用いられておらず, cold FEG および Schottky FEG の 2 種類がハイエンド TEM に用いられている．

(a) Tungsten filament　(b) LaB_6　(c) FEG tip

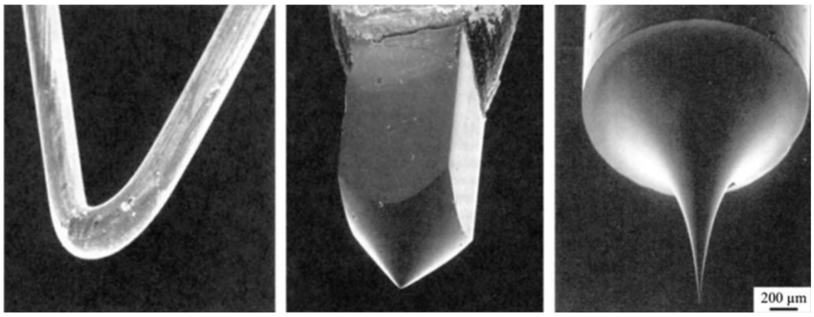

図 1.1　電子源の走査電子顕微鏡像. 熱電子銃用の (a) タングステンフィラメントおよび (b) 六ホウ化ランタン (LaB_6). (c) 電界放出電子銃 (FEG) のタングステンチップ. すべて文献 [26] からの抜粋である.

1.1.2　電子源の性能指標とその評価に関する課題

上で述べた異なる電子源による主な違いは, ビームのエネルギー幅, 輝度, およびビームのコヒーレンスである. エネルギー幅は電子エネルギー損失分光 (Electron energy loss spectroscopy, EELS) の分解能 [27] や色収差として結像に影響する程度である. 輝度は, 電子源の明るさを表す指標であり, 輝度値が大きいほど理想的な点電子源の性質に近い. コヒーレンスは 2 点間の可干渉度を示す指標であり, 高輝度な電子源ほど, コヒーレントなビームを生成可能である. 輝度および空間コヒーレンスはともに実用上重要である. 例えば, 輝度は走査電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, SEM) および走査透過電子顕微鏡 (Scanning transmission electron microscope, STEM) の分解能を決めるプローブサイズ, 元素分析用の高電流密度プローブを決める主な要因である [1]. また, ビームの空間コヒーレンスは, 電子線ホログラフィー [28, 29] や, 電子回折位相イメージング [30–33] といった位相イメージングの実現には重要となる. これらの計測技術は, 高輝度電子源である FEG の開発により実現されていると言っても過言ではない.

輝度は光軸上で保存量である [34] 一方, 空間コヒーレンスはレンズに依存するパラメータである [35] ことが知られている. したがって, 先に述べたように試料面の空間コヒーレンスは実用上重要であるため電子源に依存する物理量として比較の意義はあるが, 電子源そのものの性能を示す指標ではない. 電子源の性能比較には輝度を用いることが望ましいが, 先に述べた桁で異なるといった性能比較の表現が多く, これまで開発されてきた様々な電子源が正確に定量比較されてきたとは言い難い. これは以下に述べるように, 正確な輝度測定が困難で実現されていないことが原因だと考えられる.

輝度と呼ばれる物理量として, 軸上輝度および平均輝度の 2 種類が主に使われているが,

しばしば混同して用いられている. 平均輝度は微小立体角, 微小面積内の電流で定義される [34]. 微小立体角および微小面積の無限小の極限が軸上輝度に対応する. 無限小範囲の測定は現実的ではないため, 軸上輝度は直接測定することができず, 実際に測定されるのは平均輝度である. そのため, 通常単に "輝度" とよぶと, 平均輝度を意味することが多い. しかしながら, 厳密に保存量であるのは軸上輝度である [34]. また, 平均輝度には, 用いる絞りやレンズ設定 [36, 37] によって値が変わるという測定に関する問題があるため, 平均輝度の値はばらつく傾向がある. これは原理的に電子源の性能指標として比較可能な物理量が, 測定方法の問題により正確に評価できていないことを意味する.

1.1.3 電子源開発における性能評価の重要性

電子源の性能評価は, 電子源開発の過程でパラメータや駆動条件を最適化する上で特に重要となる. 近年の電子源開発では, FEG の性能向上を目指した, タングステンチップに変わる材料の研究が活発である. LaB_6 ナノワイヤ [10, 11], カーボンナノチューブ [12, 13], 六ホウ化セリウム [14], 超伝導状態まで冷却したニオブ [15] を FEG のチップとすることで, 高輝度化やエネルギー幅の狭い電子ビームの生成が可能と報告されている.

さらに別の電子源として, 超高速電顕微鏡の分野でフォトカソードが利用されるようになった [16–23]. これはレーザーを照射し, 光電効果による電子放出でビームを生成する. フェムト秒レーザーやナノ秒レーザーを用いることで, 容易に時間幅が短いパルス電子を生成できることから, 主として時間分解測定に使用される. フォトカソードには, 金やタンタルといった金属 [17, 22], LaB_6[16, 20, 23], FEG のチップ [19, 21], 特殊な表面処理により負の電子親和力を実現したガリウム砒素 [18], および窒化ガリウム [24, 25] など様々な種類がある.

これらの電子源開発において, 輝度の正確な測定法は, カソード材料や作製条件, 駆動条件による性能の差異についての計測を可能にする. 本来の性能指標である, 軸上輝度に対してパラメータの最適化をすることが望ましいが, 測定手法がない現状では, 異なる指標に対して電子源のパラメータを最適化している可能性すらある. 電子源の性能を向上させていくことは, TEM や SEM を使った計測技術の進展に欠かせない. 特にフォトカソードは電子顕微鏡を使った時間分解計測の発展に重要であり, 現状ではエミッション電流が低いことに起因して測定時間が極めて長くなる問題があるため, 高性能なフォトカソードの開発が望まれている. さらに, 新規電子源の開発だけでなく, 駆動条件による電子源の劣化過程をモニタリングすることで, 既存の電子源の性能向上も期待される.

1.1.4　電子ビームの位相空間分布測定による電子源性能評価と応用

輝度測定には, 従来の幾何光学的な測定と異なるアプローチとして, 位相空間の電流分布を測定する手法が考えられる [38]. 位相空間は, 位置と運動量の空間で, 電子の位置と伝搬方向 (光軸からの角度) を同時に記述する. 幾何光学的に位相空間を占める範囲はエミッタンスとして知られ [34], 平均輝度は, 位相空間上でエミッタンス内の電流密度で表される [34]. エミッタンスの形状や範囲などの取り方にはいくつかの流儀が存在する [39]. 位相空間の電流密度が一様でないことから, エミッタンスの取り方に依存して平均輝度の値も変わる. このことは上で述べた, 測定条件によって平均輝度の値が変わることに対応し, 電子源の輝度が正確に評価できていないことを意味する. 対して, 軸上輝度は位相空間の原点の電流密度に対応し, 光軸上で保存量である [38]. 厳密に軸上輝度として, 無限小範囲で位相空間原点の電流密度を測定するには, 波動光学的な位相空間分布を求めることが必要となる.

波動光学的な位相空間分布は, 擬確率密度関数として知られている Wigner 関数である [40]. Wigner 関数は量子力学分野で提案された歴史的経緯から, 量子光学や量子情報の分野で量子状態の記述によく使用されている. 実際に量子状態に対する測定として, Fock 状態の光子やレーザー冷却されたイオン, および原子波干渉を用いた系などで, Wigner 関数の再構成の報告がある [41–44]. 特に, レーザーなど光学分野は光学素子が豊富で, 光子の制御や検出が他の系に比べて比較的容易なため, 再構成の手法に関する研究は多い [45–47]. 一方で, これらの手法をそのまま電子ビームへ適用することは, 電子レンズ等光学系の違いから困難である. 電子ビームについては, 電子の波動の干渉を利用した, インラインホログラフィーおよびオフアクシスホログラフィーによる Wigner 関数の再構成を検討した理論的な報告がある [48]. 前者は, コヒーレントな電子波を物体に照射し, 光軸上の参照波と物体波の干渉を記録する手法である [49]. 後者は, バイプリズムと呼ばれる導電性ワイヤで電子波を 2 つに分け, 参照波と物体波の干渉を記録する手法である [50]. いずれの手法でも TEM の光学系に限界があり, 再構成は困難と結論されている.

位相空間分布である Wigner 関数の再構成は, 輝度測定だけでなく, 電子顕微鏡を用いた量子測定への応用にもつながる. これは, Wigner 関数が位相空間表現のひとつで, 密度演算子と同様に電子波の量子状態を記述できるためである [45]. フェルミ粒子である電子には, レーザーに相当する電子源が存在しない (既存の電子源では縮退度も低い) ことや, 電子の状態制御が光子に比べて比較的困難であったことから, TEM による電子を用いた量子測定の研究は, 光子を使った研究よりも遅れていた. しかし近年では, 近接場光による電子のエネルギー状態の制御 [51], 電子波の空間モードを変える量子ゲートの構成 [52], アンチバンチングの測定 [53, 54] など, いくつかの量子測定が実現されている. また, 電子

ビームによる光子の状態制御 [55] の提案, 表面プラズモンやバルクプラズモンとエンタングルした電子のデコヒーレンス測定の提案 [56] もある．デコヒーレンス測定のような応用には, 相互作用による電子の状態変化を検出することが重要である．電子波の量子状態の再構成が実現できれば, このような量子測定への応用も期待できる．

1.2　研究目的と本論文の構成

本論文では, 電子源の軸上輝度の正確な決定手法の確立を目的とし, 電子ビームのコヒーレンス測定と, それを応用した密度演算子および Wigner 関数の再構成に取り組んだ．Wigner 関数に関する議論を通して, 電子源の軸上輝度を正確に決定できることを示す．実際に, 現在最も一般的に使用されている 3 種類の電子源, cold FEG, Schottky FEG および LaB_6 熱電子銃について, コヒーレンスと軸上輝度を測定し, 電子源タイプによる違いを比較する．本論文の構成は以下の通りである．

第 2 章では, 測定対象とする物理量について述べる．コヒーレンスの定義と, TEM 試料面のコヒーレンスと電子源サイズを関連づける van Cittert-Zernike の定理について述べる．さらに, 光学におけるコヒーレンスと, 量子力学における状態の対応と, 量子状態を記述する Wigner 関数について述べる．さらに Wigner 関数の原点の値とビーム電流で電子源の軸上輝度が表されることを述べる．また比較対象の電子源である, FEG と LaB_6 熱電子銃の仕組み, それらの輝度とコヒーレンスの定性的な差を説明する．

第 3 章では, コヒーレンス測定について述べる．本研究では, これまで困難であった熱電子銃についてコヒーレンス測定を実現するため, Schottky FEG で開発されたコヒーレンス測定法を拡張した．測定手法の改良点, および 3 種類すべての電子源についてのコヒーレンス測定の比較結果について述べる また, コヒーレンス測定の手法として一般的な電子線ホログラフィーとの優位性について述べる．

第 4 章では, Wigner 関数の再構成法について述べる．コヒーレンス測定を応用して, 電子ビームの状態を記述する密度演算子が計算できること, その結果から Wigner 関数を再構成できることを示す．3 種類の電子源から生成した電子ビームについて, コヒーレンス測定の実験結果から Wigner 関数を再構成し, それらの結果を比較する．

第 5 章では, Wigner 関数を用いた軸上輝度の算出方法について述べる．Wigner 関数に関する議論を通して, 軸上輝度がビームのパラメータで表されることを理論的に示す．この関係を用いて, コヒーレンス測定の結果から FEG の軸上輝度を求める．さらに, LaB_6 熱電子銃の場合の軸上輝度の計算方法を示し, 3 種類の電子源について軸上輝度を比較する．また従来用いられている平均輝度測定法について述べ, 測定結果を比較する．

第 6 章では, 得られた結果についてまとめ, 将来の展望を述べる．

第 2 章

TEM におけるコヒーレンスと輝度

本章では, 主に測定対象とする物理量について説明する. まず光学系におけるコヒーレンスの定義とそれに関する定理について述べる. また, 光学におけるコヒーレンスが量子系の状態と対応関係があることを述べ, 量子系を位相空間で表現する Wigner 関数を導入する. 位相空間分布である Wigner 関数を用いて, 電子源の性能を示す指標である軸上輝度が表されることを述べる. また, 現在 TEM で使用されている熱電子銃および電界放出電子銃について, 電子放出過程の違いからコヒーレンスと輝度の差を定性的に述べる.

2.1 コヒーレンス

2.1.1 コヒーレンスの基礎

コヒーレンスは, 波動場についてある距離の離れた 2 点間でどの程度干渉するかを示す指標である. 波動場を $\Psi(\boldsymbol{r}, t)$ とおく. ここで, $\boldsymbol{r}$, t はそれぞれ位置ベクトル, 時間を表す. 2 点間の波動場の相関を相互可干渉度関数 $\Gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau)$ と呼び,

$$\Gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau) := \langle \Psi(\boldsymbol{r}_1, t)\Psi^*(\boldsymbol{r}_2, t+\tau)\rangle \tag{2.1}$$

で定義される [57]. ここで, $\langle\rangle$ は時間平均を表す. 電子の波動の時間方向の拡がりよりも, 十分長い時間で平均をとる場合, 時間平均を統計平均に読み替えることができる (エルゴード性)[58]. TEM に使用される電子検出器の時間分解能がミリ秒のオーダーで, 波束の時間方向の拡がりよりも十分長いため, TEM の計測ではエルゴード性は通常満たされている. コヒーレンスとして最も一般的なのは, 相互可干渉度関数を規格化したコヒーレンス関数 $\gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau)$ で,

$$\gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau) := \frac{\Gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau)}{\sqrt{\Gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_1, t)\Gamma(\boldsymbol{r}_2, t+\tau, \boldsymbol{r}_2, t+\tau)}} \tag{2.2}$$

で定義される．コヒーレンス関数は一般に複素関数で, その絶対値が可干渉度を示す．可干渉度は通常, 距離が離れるにつれ 1 から 0 に減衰していく．可干渉度が 1 の領域を完全コヒーレントと呼び, 逆に可干渉度が 0 の場合を完全インコヒーレントと呼ぶ．高分解能 STEM や位相イメージングなど一部で, 完全コヒーレントに近い結像が用いられる．一方, 通常の TEM 観察では, 両者の中間的な性質である, 部分コヒーレントと呼ばれる状態で結像する場合が多い.

電子ビームや光など光学系でコヒーレンス関数を用いる場合, 一般にコヒーレンスはその進行方向と面内方向の積に分けることができる [59]. すなわちコヒーレンス関数は,

$$\gamma(\boldsymbol{r}_1, t, \boldsymbol{r}_2, t+\tau) = \gamma_{\mathrm{s}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\gamma_{\mathrm{t}}(\tau) \tag{2.3}$$

として, 空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{s}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ と, 時間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{t}}(\tau)$ の積に分解できる．時間コヒーレンスは電子のエネルギー幅 [57] で決まり, 空間コヒーレンスは電子源サイズ [57] と電子放出過程 [60, 61] で決まることが一般に知られている．空間コヒーレンスの拡がりを示すパラメータとしてコヒーレンス長 l_{c} がある．様々な定義が存在するが, 本研究では, $|\gamma_{\mathrm{s}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)|$ の標準偏差をコヒーレンス長 l_{c} とよぶ.

時間コヒーレンスおよび空間コヒーレンスが電子顕微鏡に及ぼす影響は異なり, 前者は通常, EELS の分解能 [27] や色収差として結像に影響を及ぼす程度である．一方, 後者は, 先に述べた位相イメージング, ほかに高分解能電子顕微鏡法 (High Resolution Transmission Electron Microscopy, HRTEM)[1] で重要になる．特に位相イメージングで定量測定を実現するには, 試料面のコヒーレンスの正確な測定が重要となる.

本研究では空間コヒーレンス関数および, 空間相互可干渉度関数を主に扱う．コヒーレンス関数と同様に, 相互可干渉度関数も空間と時間方向に分解できる．以下では簡単のため, 空間コヒーレンス関数および空間相互可干渉度関数をそれぞれ, $\gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$, $\Gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ と記述する.

2.1.2　コヒーレンス測定

光学分野において, 空間コヒーレンス測定として最も有名であるのは, Young の干渉実験 [57] であろう． 図 2.1 は, この実験の概略図である． この手法では, スリットを用いて, 波動を 2 つに分ける． スクリーン上では, スリット 1 を通った波動とスリット 2 を通った波動の重ね合わせとなる． スクリーン上の点 $\boldsymbol{r}$ における波動は, $\Psi(\boldsymbol{r}, t) = K_1\Psi(\boldsymbol{r}_1, t - t_1) + K_2\Psi(\boldsymbol{r}_2, t - t_2)$ とかける．ここで, K_1, K_2 はそれぞれ定数である．また, $t_1 = R_1/v$ および $t_2 = R_2/v$ が成り立つ．ここで, v は波動の伝搬速度である．強度は $I(\boldsymbol{r}, t) \propto \Psi(\boldsymbol{r}, t)\Psi^*(\boldsymbol{r}, t)$ と書けるので,

$$I(\boldsymbol{r}, t) \propto |K_1|^2 I_1(\boldsymbol{r}_1, t - t_1) + |K_2|^2 I_2(\boldsymbol{r}_2, t - t_2) + 2\,\mathrm{Re}\left[K_1 K_2^* \Psi(\boldsymbol{r}_1, t - t_1)\Psi^*(\boldsymbol{r}_2, t - t_2)\right] \tag{2.4}$$

となる. 通常の測定はこの式の時間平均に相当し,

$$\langle I(\boldsymbol{r},t)\rangle \propto |K_1|^2\langle I_1(\boldsymbol{r}_1,t-t_1)\rangle + |K_2|^2\langle I_2(\boldsymbol{r}_2,t-t_2)\rangle + 2\,\mathrm{Re}\left[K_1K_2^*\Gamma(\boldsymbol{r}_1,t-t_1,\boldsymbol{r}_2,t-t_2)\right] \tag{2.5}$$

となる. いずれのスリットも形状が同じで, スリットとスクリーン間の距離が十分離れている場合, 両スリットからスクリーン上の点への波動の寄与は同じと近似でき, $|K_1|^2\langle I_1\rangle = |K_2|^2\langle I_2\rangle = \langle I_{12}\rangle$ が成り立つ. この場合強度は,

$$\langle I(\boldsymbol{r},t)\rangle \propto 2\langle I_{12}\rangle(1+\mathrm{Re}[\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-t_1,\boldsymbol{r}_2,t-t_2)]) \tag{2.6}$$

となる. 光源が定常的であればコヒーレンス関数は時間方向に t_2 ずらしても変わらないため, コヒーレンス関数を $\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-(t_1-t_2),\boldsymbol{r}_2,t)$ とかいてもよい. さらに, 複素関数であるコヒーレンス関数を $\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-(t_1-t_2),\boldsymbol{r}_2,t) = |\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-(t_1-t_2),\boldsymbol{r}_2,t)|\exp(-\mathrm{i}\phi)$ とかく. ϕ は光路差 (時間差) $(R_1-R_2)/v = t_1-t_2$ で決まる位相である. スクリーン上の強度は

$$\langle I(\boldsymbol{r},t)\rangle \propto 2\langle I_{12}\rangle(1+|\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-(t_1-t_2),\boldsymbol{r}_2,t)|\cos\phi) \tag{2.7}$$

で表される. この式から, 光路差に依存した干渉縞が表れることが分かる. 干渉縞の鮮明度を, 強度の最大値 I_{max} と最小値 I_{min} を使って

$$\frac{I_{\mathrm{max}}-I_{\mathrm{min}}}{I_{\mathrm{max}}+I_{\mathrm{min}}} \tag{2.8}$$

で定義する. 式 2.7 から, 鮮明度がコヒーレンス関数の絶対値 $|\gamma(\boldsymbol{r}_1,t-(t_1-t_2),\boldsymbol{r}_2,t)|$ に等しいことがわかる.

TEM でこの手法を用いるにはナノメートルオーダーのスリットを作製する必要があり, 容易ではない. そのため, スリットではなく電子線バイプリズムによって, 波を二つにわけて干渉させるオフアクシスホログラフィー [50] が一般的である. この手法でも同等の干渉縞が得られ, その鮮明度からコヒーレンスを評価できる. しかしながらこの電子線ホログラフィーの適用は, 後に議論するように, ビームのコヒーレンスに優れる FEG などに限られ, コヒーレンスの劣る熱電子銃には難しい. そのため, 本研究ではこの手法を用いることはできない. 本研究で用いる測定手法については, 次章で述べる.

2.1.3　van Cittert-Zernike の定理

電子源から放出される電子のエネルギー幅が, 電子のエネルギーに比べて十分せまい場合, 照射された面での空間コヒーレンス関数と, 逆空間の電子源強度を関連付ける簡単な定理がある. 通常, TEM では電子のエネルギーが 100–200 keV で, エネルギー幅が 1 eV のオーダーであるため, 条件は満たされている. 逆空間の強度分布測定に基づいたコヒーレンス測定を実施するため, この定理について述べる.

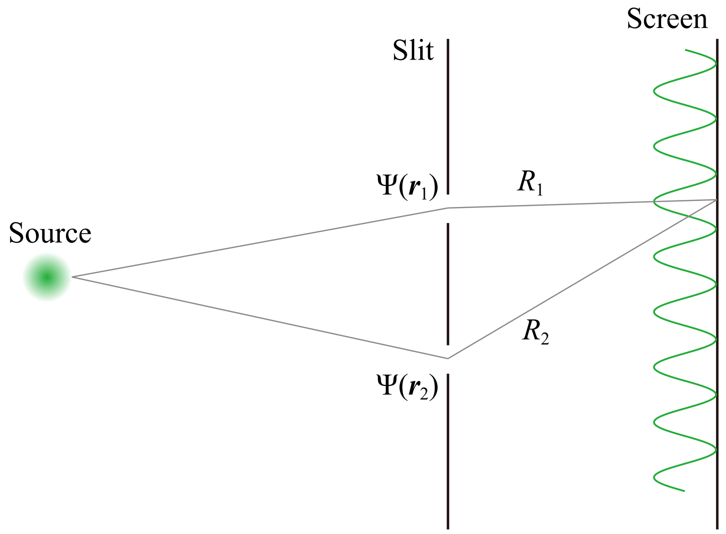

図 2.1　Young の干渉実験の概略図. スリットを透過した波動によってスクリーン上に干渉縞があらわれる.

図 2.2 に示すように, 有限サイズ σ の電子源によって, 照明されている系を考える. 電子源サイズは, 電子源と照射面の距離 R に比べて十分小さい $\sigma \ll R$ とし, また, 電子源から生成される電子は互いに干渉せず, 電子源面での電子の波束サイズも無限に小さいとする. 前者は, 通常の TEM の光学系では満たされている. 後者は, 非干渉性電子源であることを意味し, FEG および熱電子銃ではこの条件を満たすと考えられている [38]. 光源面の座標を κ_x, κ_y で表すと, 試料面の 2 点 $\boldsymbol{r}_1 = (r_{1x}, r_{1y})$ と $\boldsymbol{r}_2 = (r_{2x}, r_{2y})$ 間のコヒーレンスは,

$$\gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) = \frac{e^{i\varphi} \iint_\sigma d\kappa_x d\kappa_y S(\kappa_x, \kappa_y) e^{-ik\left[\frac{(r_{1x}-r_{2x})\kappa_x + (r_{1y}-r_{2y})\kappa_y}{R}\right]}}{\iint_\sigma d\kappa_x d\kappa_y S(\kappa_x, \kappa_y)} \tag{2.9}$$

とかけることが知られている. ここで, $S(\kappa_x, \kappa_y)$ は電子源の強度分布, k は波数を表す. ここでは, 電子の波長 λ に対して, $k = 2\pi/\lambda$ の流儀を採用する. この定理は, van Cittert-Zernike の定理と呼ばれ, 試料面のコヒーレンス関数が電子源強度分布のフーリエ変換で求められることを主張している. 詳しい証明は文献 [57] に記されている. φ は $|\boldsymbol{r}_1 - \boldsymbol{r}_2| \ll R$ のときに無視できる位相量であり [57], TEM では通常無視してよい.

実際の TEM の光学系には, 電子源と試料面の間に照射レンズがある. このレンズの設定を変えて, 試料面のビーム径をかえることは, 試料面からみた電子源サイズ (電子源と試料面との距離) を変えていることに対応する. フーリエ変換からの当然の帰結であるが, 一般に, 試料面からみた光源サイズが小さいほど, 試料面のコヒーレンス関数の幅は広がる.

当然であるが, もとの電子源サイズが小さい方がコヒーレンスに優れる. このことが, FEG が熱電子銃よりもビームのコヒーレンスに優れる理由である.

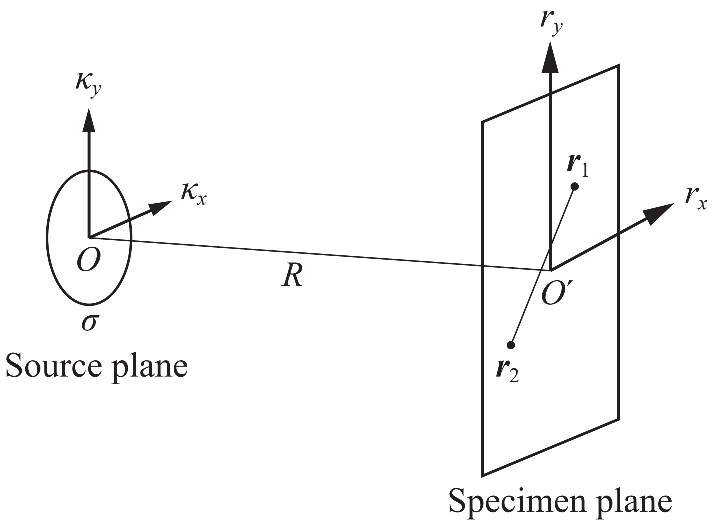

図 2.2　van Cittert-Zernike の定理. サイズが σ の非干渉性光源で試料面を照射している.

2.1.4　光学におけるコヒーレンスと量子力学との対応

光学における波動のコヒーレンスは, 量子力学における状態と対応関係がある. 量子系の状態を記述する Wigner 関数を導入する前にまず, 量子系の状態とその記法について簡単に説明し, 状態とコヒーレンスの対応について述べる.

量子力学ではヒルベルト空間のベクトル $|\psi\rangle$ で, 量子系の状態を表す. このベクトルで表現されるのが純粋状態である. 純粋状態は波動関数で表すことができ, 実空間の例では位置のブラ $\langle\boldsymbol{r}|$ をかけて, $\psi(\boldsymbol{r}) = \langle\boldsymbol{r}|\psi\rangle$ と書ける. 波動関数は確率振幅を表し, 空間で規格化するようにとる, $\iint \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}|\psi(\boldsymbol{r})|^2 = 1$.

状態 $|\psi_n\rangle$ が確率 p_n であらわれるような統計的混合を混合状態とよぶ. 純粋状態と異なり, 混合状態は波動関数で表すことはできない. 混合状態は密度演算子 $\hat{\rho} = \sum_n p_n |\psi_n\rangle\langle\psi_n|$ で表され, $\sum_n p_n = 1$ を満たす. 混合状態になる主な原因は, 意図的な状態の混合, 状態に対する情報不足, 外部系との量子相関など様々である [62]. 密度演算子 $\hat{\rho}$ のトレースは 1, す

なわち任意の基底 $|e_i\rangle$ の組を用いて

$$\begin{aligned}\mathrm{Tr}[\hat{\rho}] &= \sum_i \langle e_i|\hat{\rho}|e_i\rangle \\ &= \sum_i \sum_n p_n \langle e_i|\psi_n\rangle\langle\psi_n|e_i\rangle \\ &= \sum_n p_n = 1 \end{aligned} \tag{2.10}$$

となる. 密度演算子は, 量子系の知り得る情報をすべて含んでおり [42], 量子状態の測定には重要になる.

光学における部分コヒーレントは, わずかに異なる波動の混合で表され, 量子系における混合状態と対応する [45]. 逆に完全コヒーレントはすべての電子が同じ波動であるから, すべて同じ状態という意味で純粋状態に対応する. 量子力学で, 2 点間の相関である密度演算子の非対角項 $\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}_2\rangle = \langle\psi(\boldsymbol{r}_1)\psi^*(\boldsymbol{r}_2)\rangle$ をコヒーレンスというが, 光学的には $\Gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ が対応する物理量である.

電子ビームの場合, どのような電子源を用いても電子は混合状態にあることが知られている [38]. 粒子的描像では, 有限サイズの電子源の異なる点から発生した電子がわずかに異なる向きで試料面まで伝搬することに相当する. 波動光学的には, 電子源の異なる点から発生した電子波の波面はわずかに異なって伝搬し, 試料面では異なる波面として足しあわされることに対応する.

2.2 Wigner 関数

Wigner 関数は, 位相空間表現のひとつであり, 密度演算子と同じく, 状態を記述できる. 位相空間は, 位置と運動量 (波数) の基底で張られる. TEM のような光学系では, 運動量基底は光軸横向き成分 (光軸となす角度) でとる. まず, 粒子モデルにおける位相空間分布を導入した後, 波動光学的な位相空間分布である Wigner 関数について説明する.

2.2.1 位相空間分布

図 2.3 に示すような光学系で, 平行なビームをレンズで収束する系を考える. 緑の線は理想的な平行ビームを表しており, レンズに入射した後, 焦点の後ろの面での位相空間分布が右に描かれている. 明らかに, 1 本の光線は位相空間上で 1 点に対応していることがわかる. 理想的な平行ビームに対して, ある面でのその位相空間分布は直線状に並ぶ. 橙の線は, 光軸に対して傾きがあるビームを描いている. この傾きは位相空間分布では, 並行移動に対応することがわかる. また, 焦点位置に対して対称な面での位相空間分布は, 角度分布を対称にした形になる. このことから, 図 2.3 の系で光軸方向に r_x をとる面を移動させ

ていくと, 対応する位相空間分布は回転していくことがわかる.

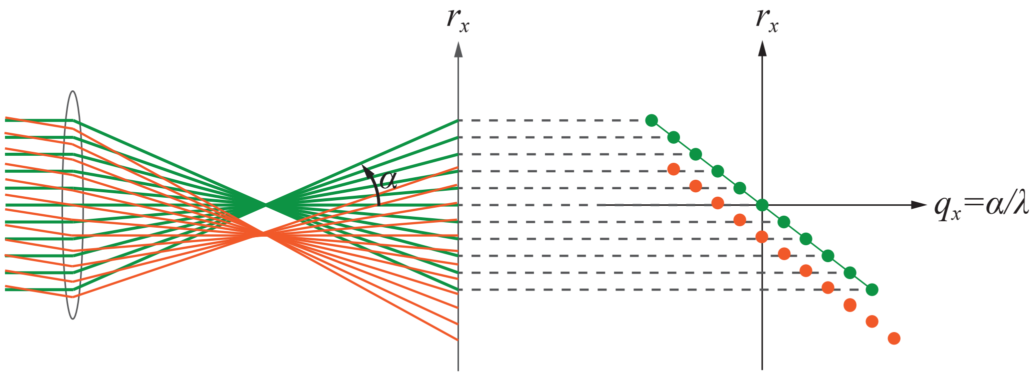

図 2.3　幾何光学による位相空間分布の説明. 緑の線は, 理想的な光軸に平行なビーム, 橙の線は光軸に対して傾きのあるビームを示している. 一つの軌道が位相空間上の 1 点に対応する.

電子ビームの場合, 理想的な点電子源が存在しないこと, またレーザーのような電子源もないことから, 図 2.3 の緑線のような完全な平行ビームは得られない. 有限サイズの電子源から放出された電子は, 光軸に対してわずかに傾きのあるビームとして光学系を伝搬していく. したがって位相空間分布は図 2.4 のように, 有限の幅を持つような分布になる. この分布について, ビームが位相空間を占める面積をエミッタンス ϵ と呼ぶ. エミッタンスの取り方として, 図 2.4 に示す楕円の他, 矩形など他の形状, また範囲についても様々な流儀が存在している [39].

2.2.2　Wigner 関数の定義と性質

Wigner 関数は, 古典力学における位相空間分布に対応する, 量子系に対する位相空間の擬確率分布関数として, 1932 年, Eugene Wigner により導入された [40]. 2 次元の実空間および逆空間では, Wigner 関数は

$$W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\boldsymbol{q}\boldsymbol{\mu}} \left\langle \boldsymbol{r} + \frac{\boldsymbol{\mu}}{2} \middle| \hat{\rho} \middle| \boldsymbol{r} - \frac{\boldsymbol{\mu}}{2} \right\rangle \tag{2.11}$$

で定義される. 純粋状態の場合には波動関数を用いて,

$$W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\boldsymbol{q}\boldsymbol{\mu}} \psi\left(\boldsymbol{r} + \frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \psi^*\left(\boldsymbol{r} - \frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \tag{2.12}$$

と書ける. Wigner 関数は次にあげる性質を持つ [63].

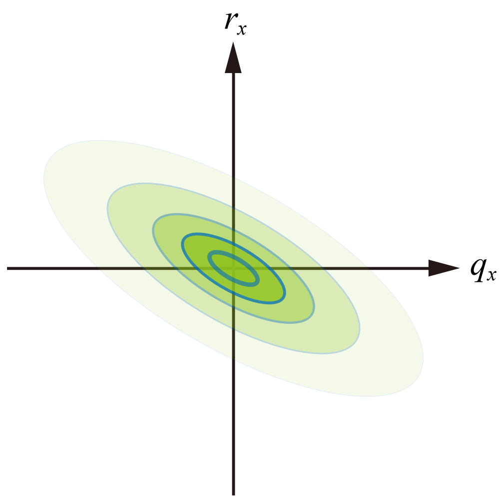

図 2.4　幾何光学的な位相空間分布であるエミッタンスの例

1. Wigner 関数は実関数である．これは, 密度演算子がエルミート演算子であることを利用し, Wigner 関数が自身の複素共役と等しいことからわかる．
2. Wigner 関数は規格化されている

$$\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{q}\; W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = 1. \tag{2.13}$$

3. Wigner 関数は, 実空間および逆空間への投影がそれぞれの強度分布に対応し

$$\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}\; W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \langle \boldsymbol{q}|\hat{\rho}|\boldsymbol{q}\rangle, \tag{2.14}$$

$$\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{q}\; W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \langle \boldsymbol{r}|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}\rangle \tag{2.15}$$

   が成り立つ．
4. Wigner 関数は逆空間の基底を用いて,

$$W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\eta}\; \mathrm{e}^{\mathrm{i}\boldsymbol{r}\boldsymbol{\eta}} \left\langle \boldsymbol{q} + \frac{\boldsymbol{\eta}}{2} \middle| \hat{\rho} \middle| \boldsymbol{q} - \frac{\boldsymbol{\eta}}{2} \right\rangle \tag{2.16}$$

   とかける．

いずれの性質も, 位相空間の確率密度関数に対する必要条件である．しかしながら, Wigner 関数は非負性をみたさない．一般に, Wigner 関数が量子的な状態に対して負の値を取り得るのに対し, 古典的状態では正の値をとり位相空間の確率分布に対応することが知られている [64]. このことから, Wigner 関数は擬確率分布関数と呼ばれる．

2.2.3 Wigner 関数の計算例

Wigner 関数の計算例として, 量子光学でよく用いられる真空状態, 数状態およびコヒーレント状態 [65] についての結果を以下に示す. ここでは簡単のため, 1 次元の位置と逆空間の基底 r_x, q_x による Wigner 関数

$$W(r_x, q_x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}\mu \, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}q_x\mu} \left\langle r_x + \frac{\mu}{2} \middle| \hat{\rho} \middle| r_x - \frac{\mu}{2} \right\rangle \tag{2.17}$$

を求める.

まずここでは, 生成消滅演算子を以下のように定義する.

$$\hat{a}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{r}_x - \mathrm{i}\hat{q}_x) \tag{2.18}$$

$$\hat{a} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{r}_x + \mathrm{i}\hat{q}_x) \tag{2.19}$$

生成消滅演算子は交換関係 $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$ を満たす. また, $\hat{q}_x = -\mathrm{i}\,\mathrm{d}/\mathrm{d}r_x$ が成り立つ.

一つ目の真空状態 $|0\rangle$ は消滅演算子を用いて $\hat{a}\,|0\rangle = 0$ を満たす. したがって, 位置基底の波動関数 $\langle r_x|0\rangle$ は, $(r_x + \mathrm{d}/\mathrm{d}r_x)\langle r_x|0\rangle = 0$ を満たすから, $\langle r_x|0\rangle = \frac{1}{\pi^{1/4}}\mathrm{e}^{-r_x^2/2}$ とかける [65]. Wigner 関数は

$$W_{|0\rangle}(r_x, q_x) = \frac{1}{\pi}\mathrm{e}^{-r_x^2-q_x^2} \tag{2.20}$$

となる. 図 2.5(a) に $W_{|0\rangle}(r_x, q_x)$ を示している.

2 つ目の数状態 (Fock 状態) は, 光子など数が確定した状態である. 生成消滅演算子を用いて, 数演算子が $\hat{n} = \hat{a}^\dagger\hat{a}$ と書ける [65]. 数状態 $|n\rangle$ は, 数演算子に対して $\hat{n}\,|n\rangle = n\,|n\rangle$ を満たす. ここでは例として $|1\rangle$ に対する Wigner 関数を計算する. 波動関数 $\langle r_x|1\rangle$ は, $\langle r_x|1\rangle = \langle r_x|\hat{a}^\dagger|0\rangle = \frac{\sqrt{2}}{\pi^{1/4}}r_x\mathrm{e}^{-r_x^2/2}$ と書けるため, Wigner 関数は

$$W_{|1\rangle}(r_x, q_x) = \frac{1}{\pi}\mathrm{e}^{-r_x^2-q_x^2}(2r_x^2 + 2q_x^2 - 1) \tag{2.21}$$

となる. 図 2.5(b) に $W_{|1\rangle}(r_x, q_x)$ を示している.

3 つ目のコヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ は, 真空状態 $|0\rangle$ を α 並行移動させた状態に相当する [65]. 変位演算子を $\hat{D}(\alpha) = \mathrm{e}^{\alpha\hat{a}^\dagger-\alpha^*\hat{a}}$ と定義すると, コヒーレント状態は $|\alpha\rangle = \hat{D}(\alpha)\,|0\rangle$ で得られる. $\alpha = (r_0 + \mathrm{i}q_0)/\sqrt{2}$ とした時, 対応する波動関数は $\langle r_x|\alpha\rangle = \langle r_x|\hat{D}(\alpha)|0\rangle = \frac{1}{\pi^{1/4}}\mathrm{e}^{\mathrm{i}r_0q_0/2}\mathrm{e}^{\mathrm{i}q_0r_x}\mathrm{e}^{-(r_x-r_0)^2/2}$ となる. ここで, Baker-Hausdorff の関係 $\mathrm{e}^{\hat{A}+\hat{B}} = \mathrm{e}^{\hat{A}}\mathrm{e}^{\hat{B}}\mathrm{e}^{-\frac{1}{2}[\hat{A},\hat{B}]}$ を使用した [65]. $\hat{A}$, $\hat{B}$ は $[\hat{A}, [\hat{A}, \hat{B}]] = [\hat{B}, [\hat{A}, \hat{B}]] = 0$ の関係を満たす演算子である. これより

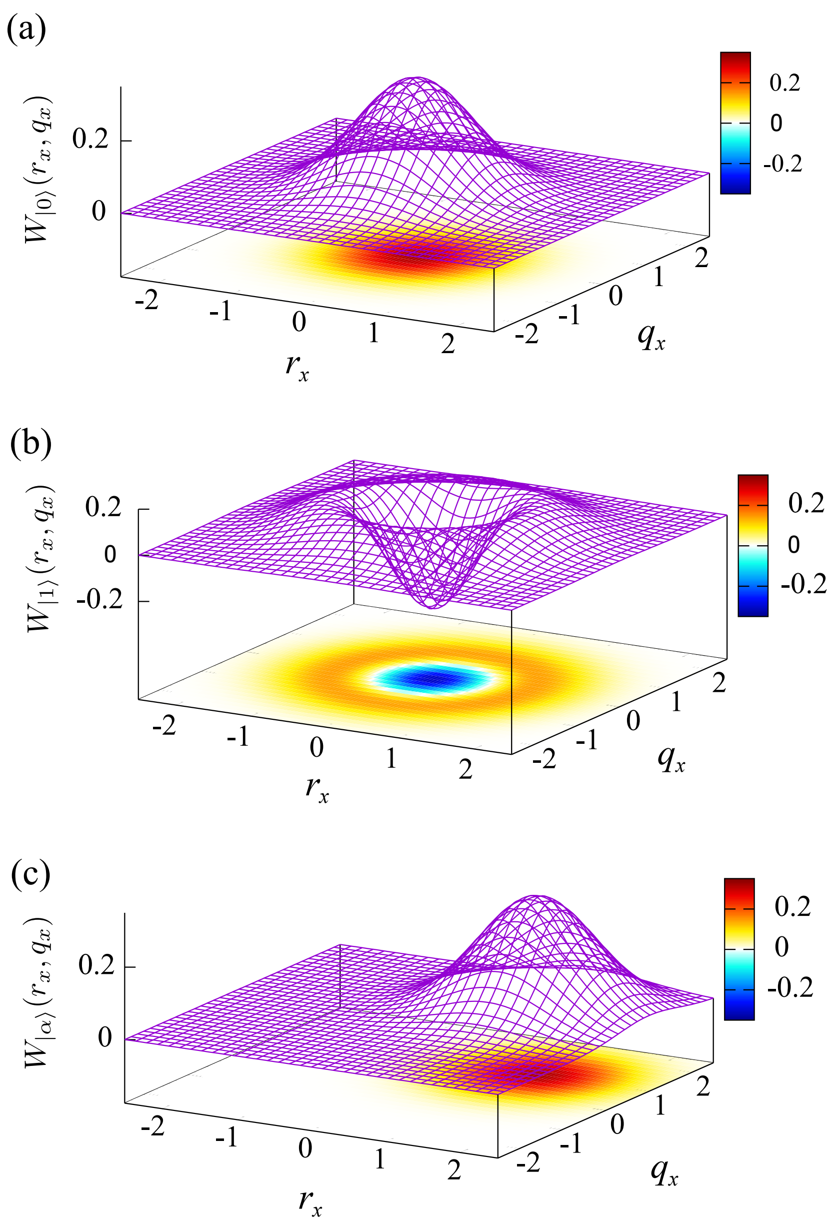

図 2.5　Wigner 関数の計算例. (a) 真空状態 $|0\rangle$ に対する Wigner 関数 $W_{|0\rangle}(r_x, q_x)$. (b) Fock 状態の例として $|1\rangle$ に対する Wigner 関数 $W_{|1\rangle}(r_x, q_x)$. (c) コヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ に対する Wigner 関数 $W_{|\alpha\rangle}(r_x, q_x)$, $(r_0 = 1, q_0 = 1)$.

Wigner 関数は

$$W_{|\alpha\rangle}(r_x, q_x) = \frac{1}{\pi} \mathrm{e}^{-(r_x - r_0)^2 - (q_x - q_0)^2} \tag{2.22}$$

となる．図 2.5(c) に $W_{|\alpha\rangle}(r_x, q_x)$ を示している．

図 2.5 から, 1 つ目および, 3 つ目の例では Wigner 関数は正で, 2 つ目の例では負の値を含むことがわかる．さらに, 前者の 2 つは波動関数が Gaussian で, 後者はそうでないことがわかる．実際, Gaussian で表される状態では Wigner 関数が非負であることが数学的に証明されている [66].

計算例として最後に, 1 次元の絞りに完全コヒーレントな波動を入射した場合, すなわち方形波の Wigner 関数を求める．これは, 1 次元の絞りからの回折, つまり Airy パターンに対する Wigner 関数と同一である．方形波は

$$\psi_{\mathrm{rect}}(r_x) = \begin{cases} \dfrac{1}{2a} & |r_x| \leq a, \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \tag{2.23}$$

と書ける．ここで, a は絞り半径を表す．この方形波に対する Wigner 関数 $W_{\mathrm{rect}}(r_x, q_x)$ は

$$W_{\mathrm{rect}}(r_x, q_x) = \begin{cases} \dfrac{1}{\pi}\left(1 - \dfrac{|r_x|}{a}\right) \mathrm{sinc}\left(2aq_x\left(1 - \dfrac{|r_x|}{a}\right)\right) & |r_x| \leq a, \\ 0 & |r_x| > a \end{cases} \tag{2.24}$$

と計算できる [63]. $a = 2$ とした計算結果を図 2.6 に示す．q_x 方向の振動は Airy パターンのフリンジに対応し, $r_x > a$ の範囲で値が 0 であることは, 絞りの外で波動の振幅, もしくは方形波の振幅が 0 であることに対応する．

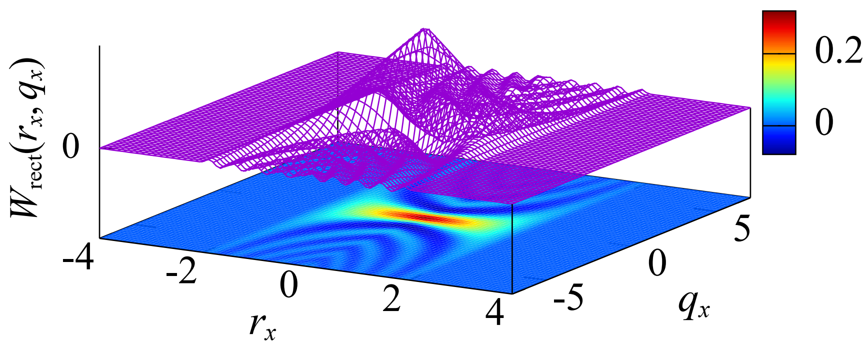

図 2.6　1 次元の方形波に対する Wigner 関数 $W_{\mathrm{rect}}(r_x, q_x)$ の計算例.

2.3　輝度

2.3.1　輝度の定義

平均輝度は, 図 2.7 に示すよう, 微小立体角および微小面積あたりの電流として

$$\bar{B} = \frac{\Delta J}{\Delta\Omega\Delta S} \tag{2.25}$$

で定義される [34]. 位相空間上では平均輝度は $\Delta J/\epsilon$ と書ける. 先に述べたようにエミッタンスの取り方が複数あること, また図 2.4 に示すように位相空間上の電流分布が一様でないことが, 測定条件によって平均輝度の値がばらつく原因である. 軸上輝度は, $\Delta\Omega$ および ΔS に対する 0 の極限で,

$$B_0 = \lim_{\Delta\Omega,\Delta S\to 0} \frac{\Delta J}{\Delta\Omega\Delta S} \tag{2.26}$$

となる. Wigner 関数が位相空間分布であるから, 軸上輝度との間に

$$B_0 = W(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J \tag{2.27}$$

の関係が成り立つ [38]. ここで, J は位相空間の全電流である. 式 2.26 に示す無限小範囲の電流測定は現実的ではないため, 軸上輝度は理想的な物理量である. したがって, その値を直接測定することはできないが, Wigner 関数を通してその値を算出できる.

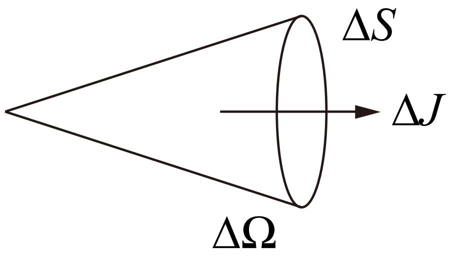

図 2.7　平均輝度の幾何光学的な定義.

2.3.2　輝度保存

古典力学で, 位相空間の分布関数の面積が保存することは, Liouville の定理として知られている [34]. Liouville の定理は, 正準変換に対して

$$\int\cdots\int \mathrm{d}r_1\cdots\mathrm{d}r_n\mathrm{d}q_1\cdots\mathrm{d}q_n = \int\cdots\int \mathrm{d}R_1\cdots\mathrm{d}R_n\mathrm{d}Q_1\cdots\mathrm{d}Q_n \tag{2.28}$$

が成り立つことを主張している．これは, 光学系に損失がなければエミッタンスが保存されることを意味する．実際の光学系では, 絞りなどによってビームの損失があるため, エミッタンスは常に保存されるわけではない．一方, 電子間に相互作用がなければ位相空間の密度は常に保存される．そのため, 輝度保存の性質が導かれる．厳密には, 光学系にレンズ収差など電子に光軸横向きの運動量を与える効果があると平均輝度は保存しなくなる [67]. 平均輝度はこのような収差の影響を受けるが, 光軸を伝搬する電流, すなわち軸上輝度であれば収差の影響を受けない.

2.4　電子顕微鏡に使用される電子源

2.4.1　熱電子銃

現在主に熱電子銃として使用される材料は, LaB_6 である．ホウ化物は比較的仕事関数が低いことから, 高輝度な熱電子銃を実現する材料である．その中でも LaB_6 は, 動作温度において化学量論比に近い組成で蒸発する, さらに蒸発速度が遅い, 電気的に導体といった特徴から, 他のホウ化物よりも優れている [68].

図 2.8 に, LaB_6 熱電子銃の構造を示している．LaB_6 は電流によるジュール熱で 1700 °C 程度まで加熱し使用される．ウェーネルト電極には, フィラメントに対して負の電圧がかけられており, 静電レンズの効果でウェーネルト下にクロスオーバーが形成される．その下にはアノードがあり, 電子は加速されていく．一般に, クロスオーバーを仮想光源として考え, このサイズが小さくなると高輝度になり, ビームのコヒーレンスもよいと考えられる．クロスオーバーのサイズに影響するパラメータとして, フィラメント先端形状, ウェーネルトバイアス電圧, フィラメント先端とウェーネルト電極との距離, 真空度などが考えられるが, 系統的な報告はされていない．これは, 輝度やコヒーレンスが重要になる場合には, LaB_6 熱電子銃ではなく, FEG が用いられるからであろう.

ビームの特性として, エネルギー幅はエミッション電流などの駆動条件に依存するが, おおよそ 1 – 2 eV[1, 2] である．試料面におけるコヒーレンスの定性的な議論として, コヒーレンス長が

$$l_\mathrm{c} \sim \frac{\lambda}{2\alpha} \tag{2.29}$$

で見積もられることが知られている [2]. ここで, α は試料面から見上げた電子源の開き角である．加速電圧 200 kV とすると, $\lambda = 2.51$ pm, 開き角は通常の使用条件で 0.5 – 1 mrad 程度であるから, コヒーレンス長は $l_\mathrm{c} \sim 2.5 - 5$ nm 程度のオーダーとされている．また平均輝度は, 10^{10} A m^{-2} sr^{-1} のオーダーとされている [1].

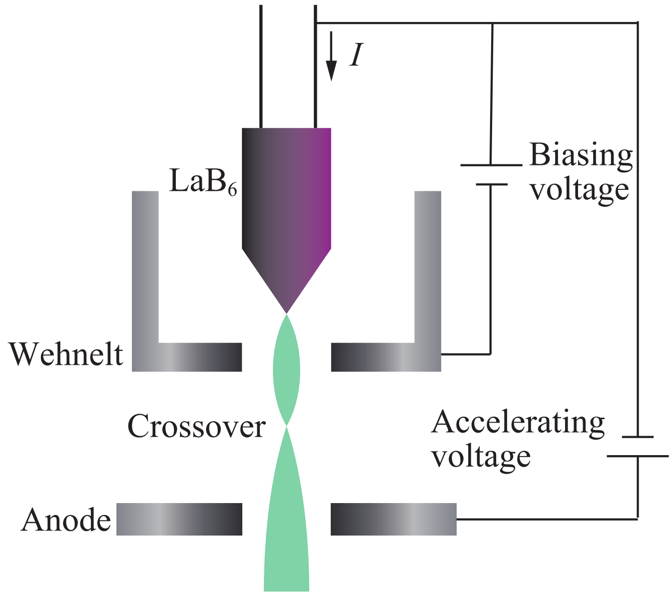

図 2.8 LaB_6 熱電子銃の概略図.

2.4.2 電界放出電子銃

先に述べたように FEG は, Schottky FEG と cold FEG の 2 種類が一般的である. 両者の機械的な構造は同様で図 2.9 のように, 陰極と 2 つのアノードから構成されている. いずれも陰極先端の曲率半径が 100 nm 程度と小さいことから高輝度で, ビームのコヒーレンスがよい [1]. 両者の原理的な違いは動作温度と陰極の材料である.

cold FEG の陰極には, エッチングが容易なことからタングステン単結晶 ⟨310⟩ が用いられる [1]. 電場を印加することでポテンシャル障壁を低くし, トンネル効果によって電子放出させる. ビームのエネルギー幅は 0.2 – 0.7 eV と狭く, 輝度およびビームのコヒーレンスは, 現在使われている電子源の中で最もよい. LaB_6 熱電子銃と比較して, 輝度および空間コヒーレンスともおおよそ 2 桁程度優れていると考えられている [7].

欠点としては, 陰極の表面状態に敏感なことがあげられる. そのため通常は, 10^{-8} – 10^{-9} Pa 程度の超高真空環境で, 陰極表面の汚れをとばすフラッシングをしてから使用する. しかしながら, 使用中においても時間とともに陰極表面が汚れていくため, エミッション電流は低下していく傾向にある [2]. 近年は真空の改善によって, この欠点も改良されつつあるが, エミッション電流の安定性や得られる電流量としては, 次にのべる Schottky FEG に劣る.

Schottky FEG は, 陰極を加熱して強い電場をかけると熱電子が放出される Schottky 効

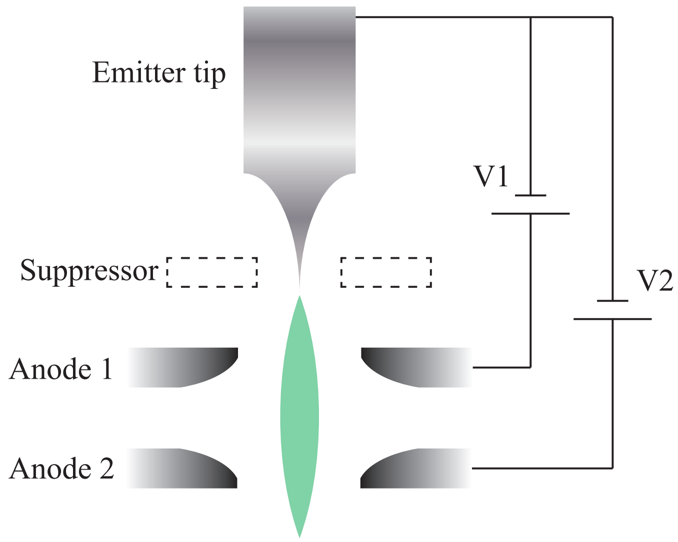

図 2.9　FEG の概略図. Suppressor は Schottky FEG にのみ存在する.

果を利用した電子銃である. 陰極には酸化ジルコニウムで被覆したタングステン単結晶 ZrO/W⟨100⟩ が用いられる. 酸化ジルコニウムで被覆することで仕事関数が 4.5 eV から 2.7 eV 程度まで低下する. 負にバイアスされたサプレッサー電極は, (100) 面以外からの放出の抑制のために用いられている. 動作温度は 1800 K 程度で, 高温のため陰極に汚れが付着しにくい. そのためエミッション電流の安定度は cold FEG よりも高い. さらに, cold FEG にくらべて 2 桁程度大きいエミッション電流密度がえられる [1]. このことは, エネルギー分散 X 線分光法による元素分析には大きなメリットとなる. 加熱の影響のため, ビームのエネルギー幅は cold FEG よりは広く 0.3 – 0.7 eV 程度 [1], 輝度およびビームの空間コヒーレンスは cold FEG に比べて半桁程度低くなると考えられている [2, 7].

第 3 章

コヒーレンス評価

本章では, 電子ビームの空間コヒーレンス測定について述べる．本研究では, 異なる電子源について正確な比較を達成するため, 熱電子銃についてもビームの空間コヒーレンスを定量測定する．一般に, ビームのコヒーレンスに劣る熱電子銃についての定量測定は困難で, これまで定性的な測定結果のみ報告がある [69]. 後に詳しく議論するが, 空間コヒーレンス測定で最も一般的な手法である電子線バイプリズムの手法による定量評価は難しい. 本研究では, Schottky FEG の空間コヒーレンス評価に用いられた Airy パターンの強度分布解析の手法 [70] を拡張し, LaB_6 熱電子銃に適用した．まず Airy パターンを取得するための TEM の光学系および, Airy パターンの結像モデルについて述べる．その後, LaB_6 熱電子銃で Airy パターンを取得および解析するための改良点を述べる．実験結果には LaB_6 熱電子銃に加えて, Schottky FEG, および cold FEG の結果も合わせて 3 種類の電子源を比較する.

3.1　空間コヒーレンス測定の理論

3.1.1　TEM の光学系

図 3.1 は, Airy パターンを得るための簡単化した TEM の光学系であり, 使用するパラメータについても図中に示している．実空間に絞りがあり, 逆空間にその Fraunhofer 回折である Airy パターンが結像される．実際の TEM の光学系は, 図 3.2 に示すように, 試料面より上の照射レンズ系と試料面より下の結像レンズ系からなる．図 3.2 の例では, 電子源から発生した電子は, 2 段のコンデンサレンズを透過する．一般に, 1 番目のコンデンサレンズ (Condenser lens 1, CL1) 直下に形成される仮想光源はスポットサイズと呼ばれ, CL1 の励磁が大きいほど小さい仮想光源が形成される．2 番目のコンデンサレンズ (CL2) は試料面のビーム径を変えるために使用される．CL2 によって, 対物レンズの前方磁場に

よるレンズの焦点位置にクロスオーバーを形成させると, 平行ビームが得られる. CL2 の励磁を強く/弱くしクロスオーバーを焦点位置よりも上/下にすると, 試料面のビーム径は大きく/小さくなる. 試料面を透過したビームは対物レンズの後方磁場によるレンズを通って結像される. 結像には中間レンズ (Intermediate lens, IL) と投影レンズ (Projector lens, PL) が使われる. 対物レンズの後焦点面を結像すれば電子回折となり, 対物レンズの像面を結像すれば試料面の拡大像が得られる. 対物レンズの像面には制限視野絞り (Selected area aperture, SA 絞り) がある. すなわち SA 絞りは試料面と共役面 (倍率を除いて同じ空間) にある. したがって, 対物レンズの倍率だけ縮小された絞りが試料面にある系と等価である. 試料面における絞りの実効径と, ビームのコヒーレンス長が少なくとも同程度かそれ以上の時, 電子回折は絞りの Fraunhofer 回折として Airy パターンとなる. 熱電子銃について評価する場合, 第 2.4.1 節で述べたようにビームのコヒーレンス長が典型的には数 nm 程度 [7] であるから, 実効径が 10 nm 以下の絞りを作製する必要があることがわかる.

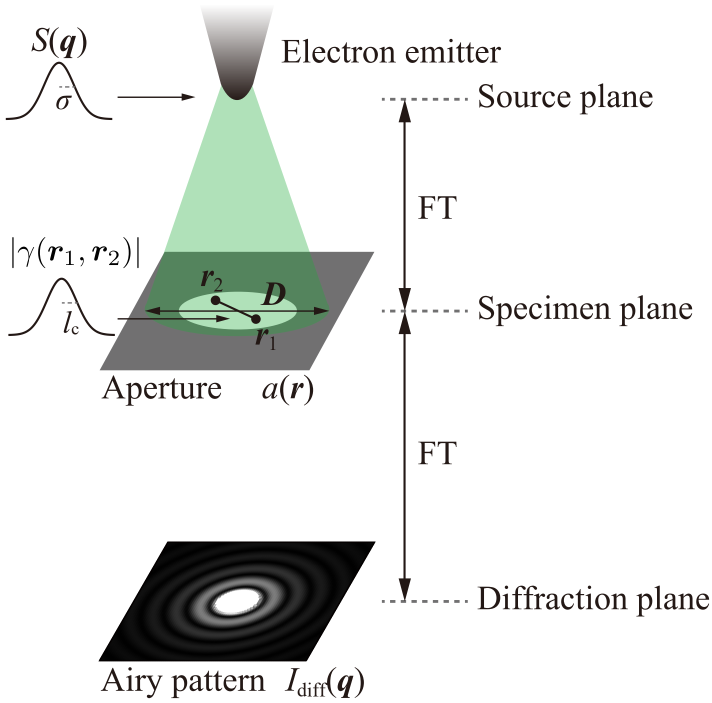

図 3.1　簡単化した Airy パターンを取得する光学系 [71]. D ビーム径, $S(\boldsymbol{q})$ 電子源の強度分布, $\gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ コヒーレンス関数, l_c コヒーレンス長, $a(\boldsymbol{r})$ 絞り関数, FT, フーリエ変換.

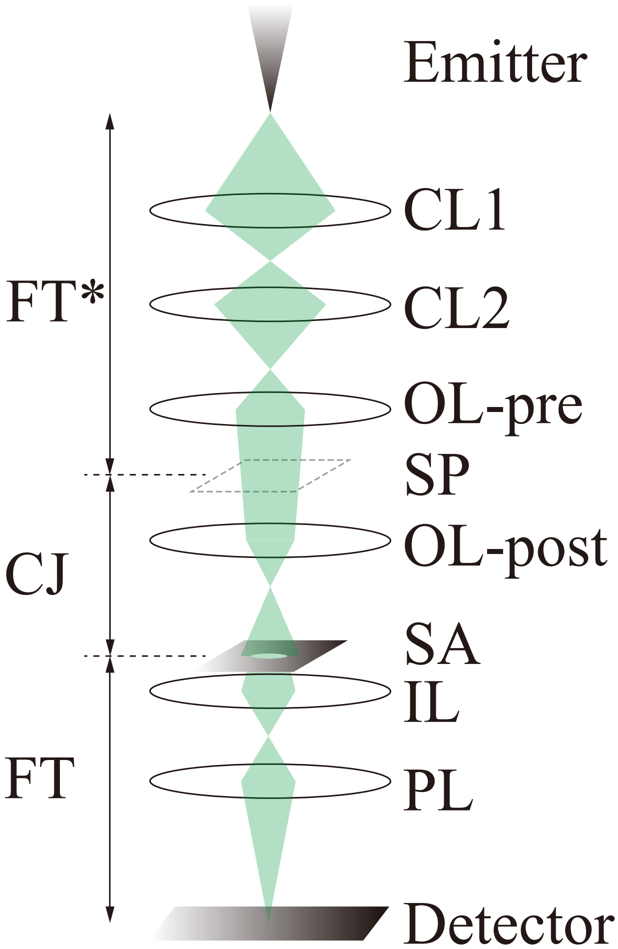

図 3.2　Airy パターンを取得する実際の光学系 [71]. CL1, CL2 はそれぞれ 1 段目, 2 段目のコンデンサレンズ, OL-pre, OL-post は対物レンズの前方磁場, 後方磁場, IL は中間レンズ, PL は投影レンズを表す. SP は試料面, SA は制限視野絞り, CJ は共役関係, FT はフーリエ変換で, FT*は平行照射時にフーリエ変換であることを示す.

3.1.2　Airy パターンの結像モデル

理想的な平行ビームで絞りを照射した時, ビームが完全コヒーレントであれば, Airy パターンの強度分布は絞り関数 $a(\boldsymbol{r})$ のフーリエ変換の絶対値 2 乗に等しい [57]. ここで, 絞り関数は絞り内で 1, 絞り外で 0 をとる. 実際の場合には, レンズ収差の影響で波動場が変調されること, コヒーレンス長が有限であること, ドリフトやカメラの点拡がり関数といった複数の要因によって Airy パターンはボケる. これらの影響について順に述べる.

レンズ収差について, 電子回折の結像時に影響するのは, CL1, CL2, IL, および PL である. これは, これらのレンズ面が回折面とフーリエ面にあり, 収差による波動場の変調がフーリエ変換を通して影響するためである. まず電子源から発生した電子は, CL1, 2 の影響をうける. CL レンズ収差の影響による試料面における理想的波面からのずれ, すなわち位相変化は収差関数 $X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})$ で書くことができ [70, 72], $\exp(-\mathrm{i}kX_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}))$ の位相変化をかけた波動場になる. 同様に, 試料面より下の IL および PL で, それぞれ同様の位相変調の影響を受ける. これらの収差関数の影響は CL も含めて合計として考えることができ, 位相変化を $\exp(-\mathrm{i}kX(\boldsymbol{r}))$ と表す. さらに, ポストカラム型エネルギーフィルタを用いる場合には, エネルギーフィルタ内のレンズ収差も同様に扱うことができる [70]. ビームに位相分布が存在するのと同様に, 実際の場合には振幅分布 $\xi(\boldsymbol{r})$ が存在することがほとんどである. これは, 光軸のずれやアライメントずれなどが主な原因である. 位相分布と振幅分布を考慮すると, 絞り内の波動場は $a(\boldsymbol{r})\xi(\boldsymbol{r})\exp(-\mathrm{i}kX(\boldsymbol{r}))$ となる. したがって, これらを考慮した Airy パターンの強度分布は $|\mathcal{F}[a(\boldsymbol{r})\xi(\boldsymbol{r})\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kX(\boldsymbol{r})}]|^2$ となる. ここで, $\mathcal{F}$ はフーリエ変換を表す.

コヒーレンス長の有限性による逆空間のボケは, 第 2.1.3 節で述べた van Cittert-Zernike の定理から, 電子源の強度分布 $S(\boldsymbol{q})$ の畳み込みで表される. これは, 電子源の異なる点から発生した電子が異なる角度で試料面に到達し, 絞りを照射していることに対応する. この絞りを照明している角度分布が電子源の強度分布に他ならない. 同様に, ドリフトおよびカメラの点拡がり関数といったその他のボケ $T(\boldsymbol{q})$ も畳み込まれるため, 観測される強度分布 $I_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{q})$ は

$$I_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{q}) = \left|\mathcal{F}\left[a(\boldsymbol{r})\xi(\boldsymbol{r})\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kX(\boldsymbol{r})}\right]\right|^2 \otimes S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q}) \tag{3.1}$$

となる. ここで $\otimes$ は畳み込みを表す.

一般に, FEG の強度分布は 2 次元の Gaussian 分布で近似される [70], $S(\boldsymbol{q}) = \exp(-q^2/2\sigma^2)$. ここで, q は $\boldsymbol{q}$ のノルム, σ は標準偏差である. 露光中のドリフトによるボケがドリフト方向にボケ幅が大きくなることを考慮し, $T(\boldsymbol{q})$ を非対称性な 2 次元 Gaussian 分布で近似する [70]. したがって, $S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ も非対な 2 次元 Gaussian 分布となる. 逆空間の座標 $\boldsymbol{q} = (q_x, q_y)$ を用いて

$$\begin{aligned} S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q}) = & \frac{1}{2\pi\sigma_{\max}\sigma_{\min}} \exp\left[-\left(\frac{\cos^2\theta}{2\sigma_{\max}^2} + \frac{\sin^2\theta}{2\sigma_{\min}^2}\right)q_x^2 - \left(\frac{\sin^2\theta}{2\sigma_{\max}^2} + \frac{\cos^2\theta}{2\sigma_{\min}^2}\right)q_y^2\right] \\ & \times \exp\left[-\left(\frac{-\sin 2\theta}{2\sigma_{\max}^2} + \frac{\sin 2\theta}{2\sigma_{\min}^2}\right)q_x q_y\right] \end{aligned} \tag{3.2}$$

と書ける. ここで, θ は主軸方向の回転角, $\sigma_{\max}, \sigma_{\min}$ はそれぞれ, q_x と q_y 方向の標準偏差を表す. ここでは, θ は, $\sigma_{\max} > \sigma_{\min}$ を満たすようにとる. すなわち, 主軸方向 $\sigma_{\max}$ はド

リフトなどのボケを含み, σ_{min} は余分なボケを含まない. $X(\boldsymbol{r})$ は, 3 次収差まで展開すると [72],

$$X(\boldsymbol{r}) \simeq \mathrm{Re}\left[\frac{1}{2}C_1 r_\mathrm{c} r_\mathrm{c}^* + \frac{1}{2}A_1 r_\mathrm{c}^{*2} + B_2 r_\mathrm{c}^2 r_\mathrm{c}^* + \frac{1}{3}A_2 r_\mathrm{c}^{*3} + \frac{1}{4}C_3 r_\mathrm{c}^2 r_\mathrm{c}^{*2} + S_3 r_\mathrm{c}^3 r_\mathrm{c}^* + \frac{1}{4}A_3 r_\mathrm{c}^{*4}\right] \tag{3.3}$$

と書ける. ここで, 2 次元ベクトル $\boldsymbol{r}$ の複素表示 $r_\mathrm{c} = r_x + \mathrm{i}r_y$ を用いた. Re は実数部をとることを表す. 収差係数 $A_1, A_2, A_3, C_1, B_2, C_3$, および S_3 はそれぞれ, 1 次, 2 次, 3 次の非点収差, デフォーカス, 2 次の軸上コマ収差, 3 次の球面収差, および 3 次のスター収差を表す.

$a(\boldsymbol{r})$ は SA 絞り像を TEM で撮影して決定する. 計測した Airy パターンに対するフィッティング計算で, 上で述べたフィッティングパラメータすべてを求めることができる [70]. 各収差係数は直交関数系であるため分離が可能である. $T(\boldsymbol{q})$ と $S(\boldsymbol{q})$ の分離は, 後に測定結果を用いて具体的に示すが, ビーム径に対する依存性が異なることから, 複数のビーム径に対する測定で分離可能である. $T(\boldsymbol{q})$ はカメラ長と 1 枚の画像取得時間に大きな違いがなければ, 一定になる. 一方, $S(\boldsymbol{q})$ の標準偏差はビーム径に対する依存性を持つ. これは CL2 の励磁を変えて試料面のビーム径を変えることが, 試料面からみた電子源サイズを変えることに対応するためである. van Cittert-Zernike の定理によれば, ビーム径を大きくすると, 試料面から見た電子源サイズは小さくなるため, コヒーレンス長は長くなる. Gaussian の逆フーリエ変換が

$$\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}q\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}qr}\frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}}\mathrm{e}^{-\frac{q^2}{2\sigma^2}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\mathrm{e}^{-\frac{\sigma^2 r^2}{2}} \tag{3.4}$$

であるから, 明らかに実空間の Gaussian の標準偏差であるコヒーレンス長との間に, $l_\mathrm{c} = 1/\sigma$ の関係がある. フィッティング計算で σ が決まると, 実空間の l_c を求めることができる.

3.1.3 熱電子銃について測定するための改良

前節までで, FEG での測定の理論を簡単にまとめた [70]. 以下では, この手法を $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃に適用するための改良点を述べる. $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃が FEG と異なる点で, 影響を及ぼすのは主に以下の 2 点である.

1. 電子源の強度分布が非対称である.
2. ビームの干渉性が 1–2 桁程度おとる.

1 点目の強度分布に非対称性があることは, 図 3.3(a) に示す電子源像 (フィラメント像) からも確認できる. この像は, 試料面にクロスオーバーを形成することで得られる. この非

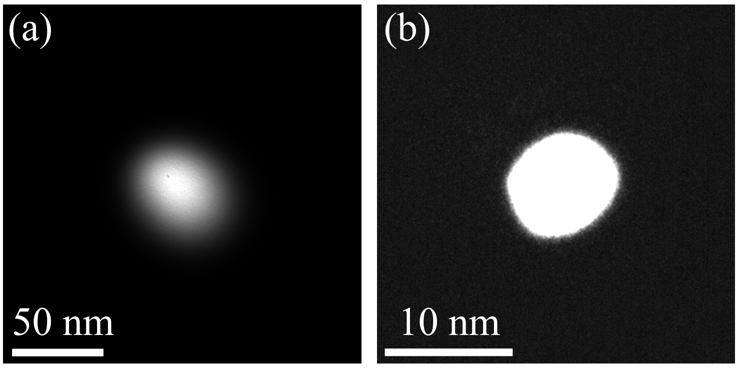

図 3.3　LaB_6 熱電子銃 TEM での Airy パターンの結像のための改良点 [71]. (a) フィラメント像 (b) 絞り像.

対称な強度分布は, Gaussian では近似できないため, Airy パターンの計算モデルに修正を必要とする. 一般に, フィラメント像にあらわれる非対称性は, フィラメントそのものがわずかに傾いてマウントされていること, もしくは電子銃のアライメントコイルのわずかなずれに起因していることが知られている. 熱電子銃は電流加熱によって電子放出するため, その熱によってこれらの経時変化がおこり, 非対称性のない状況で使用し続けることは難しい.

原子分解能 STEM に収差補正技術が使われていることから分かるように, FEG のように縮小像が 1 nm 以下の原子スケールである場合, 照射レンズ系の収差が影響する [1]. 一方, 熱電子銃の場合, 電子源の縮小像は比較的大きく, 図 3.3(a) に示すように 50 nm 程度の条件ではレンズ収差の影響はほとんどないと考えられる. したがって, 照射レンズのフォーカスと非点収差を注意深く調整しておけば, フィラメント像は実際の電子源強度分布を反映していると考えられる. そこでフィッティング計算に, 電子源強度分布として, 2 次元 Gaussian 分布の代わりにフィラメント像 $S_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{\kappa})$ を用いる. ここで, $\boldsymbol{\kappa}$ は電子源面のベクトルである. 図 3.2 からわかるように, Airy パターン結像時, 電子源面とディテクタ面は共役の関係にある. したがって, $\boldsymbol{\kappa}$ と $\boldsymbol{q}$ の間に, 倍率 m と回転角 ζ の関係があるとして,

$$\boldsymbol{q} = m\Theta(\zeta)\boldsymbol{\kappa}, \tag{3.5}$$

$$\Theta(\zeta) = \begin{pmatrix} \cos\zeta & -\sin\zeta \\ \sin\zeta & \cos\zeta \end{pmatrix} \tag{3.6}$$

と書ける. m および ζ は一般にレンズ設定によって決まるが, 通常その値を知ることはできない. 式 3.5 を用いて, フィラメント像を $S_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{\kappa}) = S_{\mathrm{f}}(m^{-1}\Theta^{-1}\boldsymbol{q})$ と書き, フィッティング計算に用いる.

2 点目のビームの干渉性が劣ることで, 先に述べたように, Airy パターンを得るのに直

径の小さい絞りを必要とする．次節で詳しく述べるが, 集束イオンビーム (Focused Ion Beam, FIB) 装置を用いて, 厚さ 10 μm の白金膜に穴をあけ, 実効径約 9 nm の SA 絞りを作製した．以下のような絞りの不完全性から, 計算モデルに修正を必要とする．図 3.3(b) が作製した絞り像であるが, FIB はその性質から穴の加工断面を垂直にすることはできない．これは, 図 3.5 の下段中央および右に示すように, 集束ビームの形状に沿って断面が斜めになるためである．このことから, 絞りの淵に 200 kV の電子が透過を許す薄い領域が生じる．多くの金属において, 非弾性散乱の平均自由行程は数十 nm であるから [27, 73], この領域を透過した電子の多くはエネルギーを失う．エネルギーを失った電子は, 色収差と同様にフォーカス位置がずれる．そのため, コンスタントなバックグラウンド強度 I_{bg} が発生する．先に述べた点と合わせ, $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃 TEM での Airy パターンの強度分布は

$$I_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{q}) = \left|\mathcal{F}\left[a(\boldsymbol{r})\xi(\boldsymbol{r})\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kX(\boldsymbol{r})}\right]\right|^2 \otimes S_{\mathrm{f}}(m^{-1}\Theta^{-1}\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q}) + I_{\mathrm{bg}} \tag{3.7}$$

と修正される．m, ζ, 各収差係数, $T(\boldsymbol{q})$, および I_{bg} はフィッティングパラメータとして計算によって求まる．

3.2　実験装置

本研究では 3 種類の電子源を比較するため, $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃 TEM (FEI, Tecnai Femto UEM), cold FEG TEM (JEOL, JEM-ARM200F) を用いて測定を実施した (図 3.4(a), (b))．この $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃の TEM は, $\mathrm{LaB_6}$ を熱電子銃および, フォトカソードの両方として利用できる装置である．本研究では, 熱電子銃として用いた．また, Schotkky FEG については, Schotkky FEG TEM (JEOL, JEM-ARM200F) (図 3.4(c)) を用いて実施された結果 [70] を引用し比較する．すべての TEM の加速電圧は 200 kV である．各 TEM の測定条件である, スポットサイズおよび CL2 直下にある CL 絞り径, および Airy パターンを得るのに用いた SA 絞り径 d_{a} を表 3.1 にまとめた．cold FEG TEM および Schottky FEG TEM にはポストカラム型エネルギーフィルター (Gatan, Quantum) が備わっており, カメラ長を拡大する目的で用いている．

表 3.1　各 TEM の測定条件．Schottky FEG TEM は文献 [70] からの引用である．

	$\mathrm{LaB_6}$ TEG	cold FEG	Schottky FEG
spot size	9	3, 4	5
CL 絞り径 / μm	200	70	70
SA 絞り実効径 d_{a} / nm	9	88	127

$\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃 TEM 用の絞りの作製には FIB 装置 (Thermo Fisher Scientific, Scios2

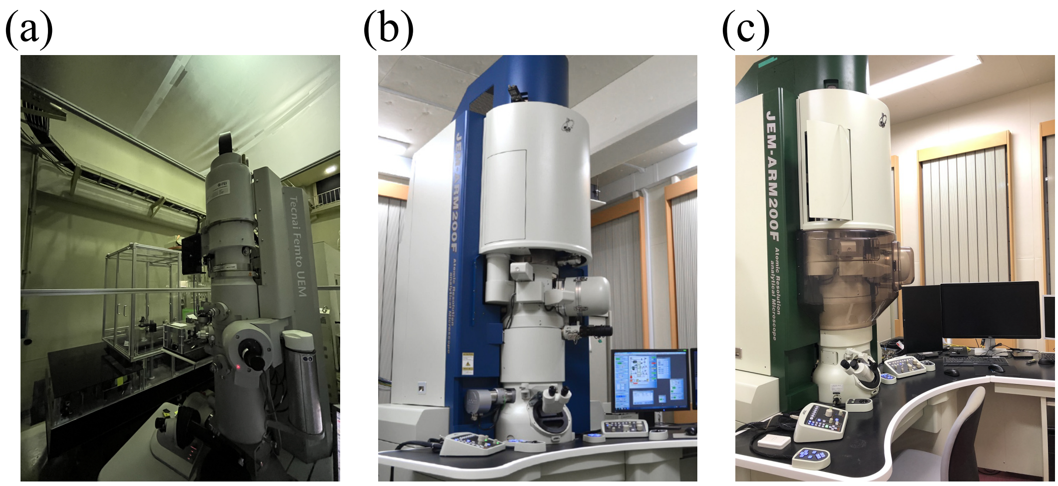

図 3.4 測定に用いた全ての TEM. (a) LaB_6 熱電子銃 TEM (FEI, Tecnai Femto UEM). (b) cold FEG TEM (Jeol, JEM-RM200F). (c) Schottky FEG TEM (Jeol, JEM-RM200F). cold FEG TEM および Schottky FEG TEM にはポストカラム型エネルギフィルターが備わっている.

DualBeam) を用いた. この装置は SEM と Ga イオンビームによる加工の両方の機能を備えているため, より高精度な加工が可能である. 絞りの作製は以下の手順で実施した. 図 3.5 はその手順の概略を示している.

1. 厚さ 10 μm の白金膜を直径 3 mm の円形に切りぬく.
2. リン青銅を厚さ 0.25 mm, 直径 3 mm, 穴径 1 mm のディスク上に加工する.
3. 加工したリン青銅のディスクをエタノールおよびアセトンで洗浄する.
4. リン青銅のディスクに, 2 液混合熱硬化性エポキシ接着剤 (Gatan, G2) を塗布し, 切り抜いた白金膜を貼り付ける.
5. 白金膜とディスクを小型の万力で圧力をかけ, 100 °C に熱したホットプレートの上に 1 時間おき, 熱硬化させる.
6. 白金膜とディスクの側面に, 導電性ペーストであるドータイトを塗布する. 白金膜とディスクの間の電気抵抗をさげ, 電子ビームが当たった際に絞りがチャージアップしないようにしている.
7. FIB で, 白金膜に直径 5 μm, 深さ 8 μm の下穴をほる.
8. 下穴の底にできるだけ小さい穴をあける

図 3.6 は作製した絞りの SEM 像である. 直径約 310 nm の絞りが加工できていることが分かる. TEM の対物レンズの倍率が約 34 倍であるから, 図 3.3(b) に示すように実効径が

約 9 nm の SA 絞りとして機能する．対物レンズの倍率は，クロスグレイティングを用いて校正している．

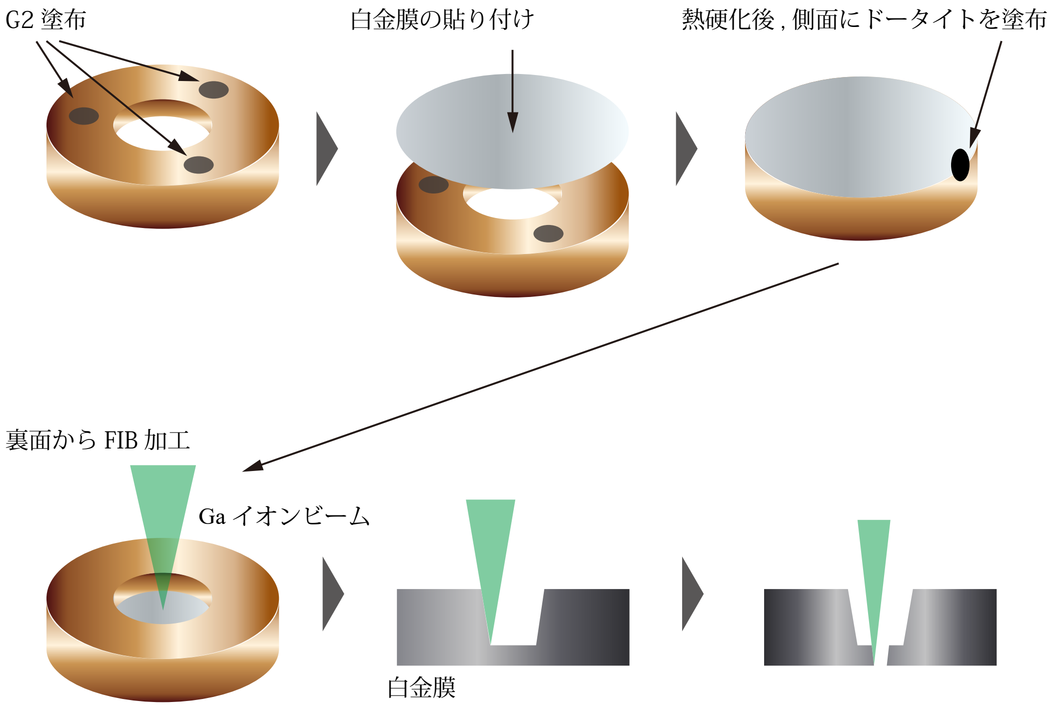

図 3.5　絞り作製の手順.

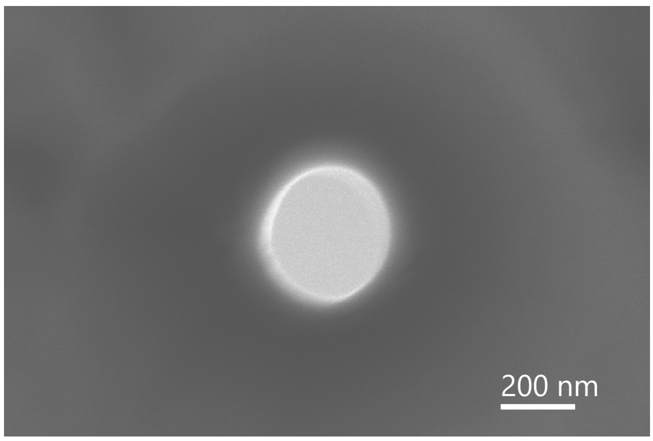

図 3.6　作製した絞りの SEM 像.

cold FEG TEM の Airy パターンの撮影手順は，以下の通りである．スポットサイズは中間の ‘3’，および 2 番目に小さい ‘4’ で，ビーム径をそれぞれ．1.0 μm から 4.7 μm, 1.2 μm

から 4.6 μm まで変えて撮影した．カメラは 2k×2k CCD カメラ (Gatan, US1000FTXP) を使用した．Gatan のカメラをコントロールするソフトウェアである Digitalmicrograph でスクリプトを作製し, 20–30 枚連続撮影した．1 枚当たりの露光時間は 0.02 – 0.4 s 程度で, カメラカウントが 5000 を超えない範囲に設定している．この撮影方法のメリットは, カメラが電子数に対してほぼ線形で応答する範囲で使用できること, およびカメラ露光中のドリフトによるボケの影響が小さくなることである．撮影した画像について, カメラのバックグラウンドを取り除く処理をした後, 相互相関によって画像のドリフト量を計算し補正後, それぞれの画像を足し合わせた．

LaB_6 熱電子銃 TEM では, スポットサイズを 3 番目に小さい '9' に固定し, CL2 の励磁を変えて, ビーム径を 2.0 μm–6.9 μm まで変え, それぞれ Airy パターンを撮影した．撮影には, TEM のボトム位置にある 4k×4k CMOS カメラ (Gatan, Oneview) を用いた．熱電子銃が FEG と比較して輝度が劣ること, また絞り径がきわめて小さいことから, 十分な信号対雑音比 (Signal-to-noise ratio, SN 比) を確保するには, トータルで 400 s から 1500 s の露光時間を必要とした．カメラの露光中のドリフトによるボケを防ぐため, FEG と同様のスクリプトを作製し 1 枚あたり 2 s で 200 枚から 750 枚連続撮影した．同様に, バックグラウンドの処理をして, 相互相関によって画像のドリフト量を計算し補正後, それぞれの画像を足し合わせた．

3.3 実験結果

3.3.1 cold FEG TEM の結果

cold FEG TEM で取得した Airy パターンを図 3.7 に示す．どちらのスポットサイズでも, Airy パターンのボケはビーム径 D を広げるにつれて減少していくことがわかる．フィッティング計算で得た Airy パターンと比較するため, 図 3.8 にフィッティング計算の一例を示した．図 3.8(a), (b) はそれぞれ, スポットサイズ 3, ビーム径 $D = 2.9\,\mu$m で測定した Airy パターンと, フィッティング計算で得た Airy パターンである．さらに両者を比較するため, 図 3.8(c) に, 図 3.8(a) 中の実線に沿ったプロファイルの比較を示す．両者のプロファイルはよく一致しており, フィッティング計算によって実測の Airy パターンをよく再現できていることがわかる．他のビーム径で取得した Airy パターンについても同等の結果であった．フィッティング計算で決定したパラメータの一覧の例を表 3.2 に示す．これらの結果から, 2 次収差までが支配的で 3 次収差はほとんど効いていないことがわかる．

$S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ を分離するため, $S(\boldsymbol{q})$ と $T(\boldsymbol{q})$ のビーム径に対する依存性を考える．ビーム径を広げていくと, 空間コヒーレンス関数の幅が拡がり, あるところで絞り内が完全コ

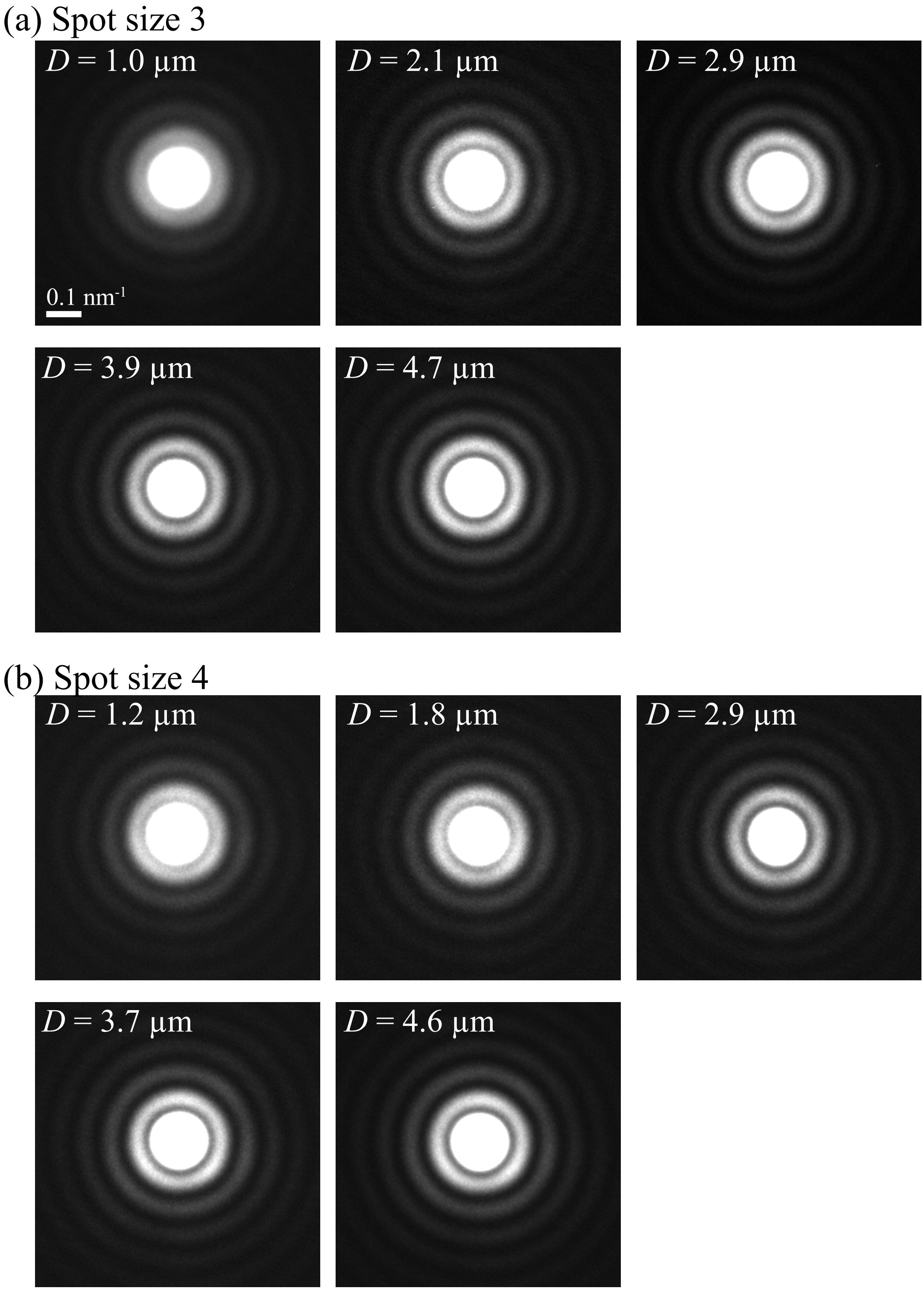

図 3.7　cold FEG TEM でビーム径を変えて得た Airy パターン．(a) スポットサイズ 4, (b) スポットサイズ 3.

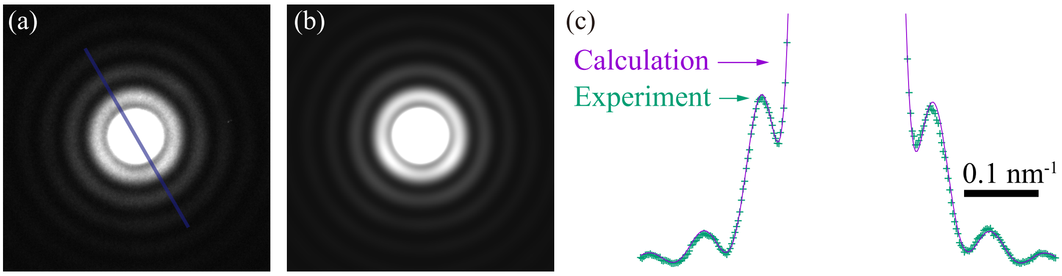

図 3.8　Airy パターンのフィッティング計算の例．(a) スポットサイズ 3, ビーム径 $D = 2.9\,\mu$m で測定した Airy パターン (b) フィッティング計算による Airy パターン (c) (a) 中の実線に沿った実測と計算のプロファイルの比較．

表 3.2　cold FEG TEM で取得した Airy パターンに対してフィッティング計算で決定したパラメータの例．ΔI_x および, ΔI_y はそれぞれ x 方向および y 方向の規格化した強度の相対的な傾斜を表す．

fitting parameter	Spot size 3, D = 2.9 μm	Spot size 4, D = 2.9 μm
C_1/m^{-1}	302	−175
$\|A_1\|$/m^{-1}	13.4	5.27
argument of A_1/deg.	−152	119
$\|A_2\|$/m^{-1}	0.413	0.613
argument of A_2 /deg.	−174	−172
$\|B_2\|$/m^{-1}	0.0628	0.234
argument of B_2 /deg.	28.3	−16.2
C_3/m^{-1}	-6.63×10^{-4}	2.72×10^{-4}
$\|A_3\|$/m^{-1}	0.0110	0.00315
argument of A_3 /deg.	6.7	98.3
$\|S_3\|$/m^{-1}	5.34×10^{-4}	2.73×10^{-4}
argument of S_3 /deg.	179.2	−45.0
Intensity gradient ΔI_x/nm^{-1}	2.47×10^{-4}	9.02×10^{-4}
Intensity gradient ΔI_y/nm^{-1}	9.87×10^{-4}	5.41×10^{-4}
σ/nm^{-1}	6.04×10^{-3}	4.48×10^{-3}

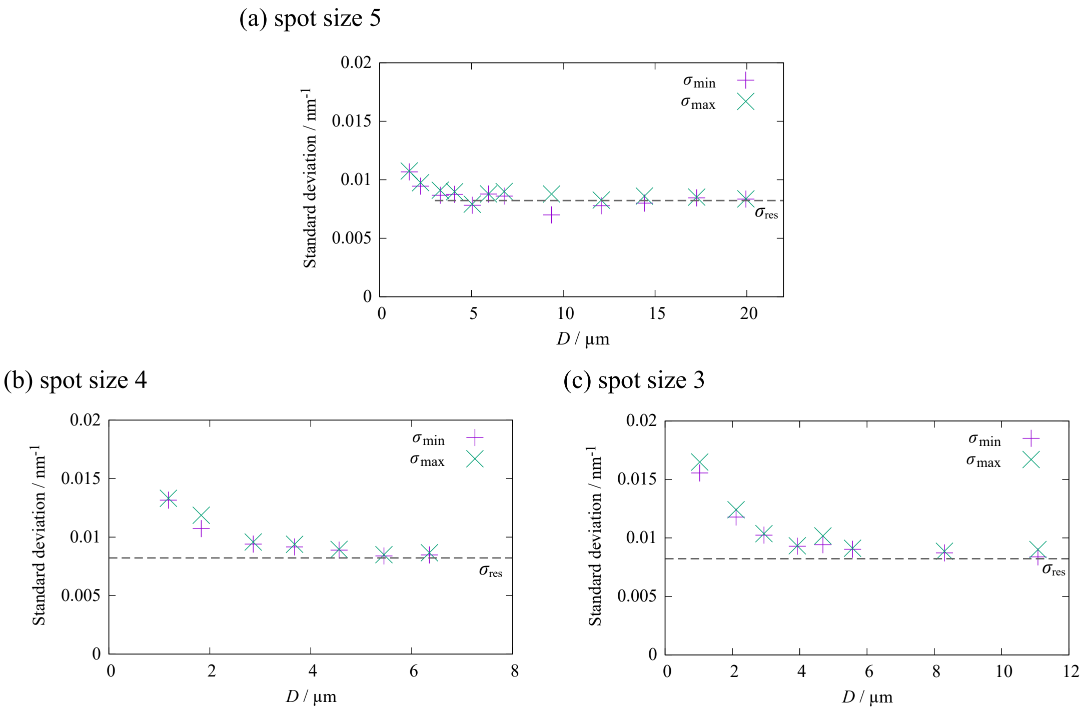

図 3.9　ビーム径を変えた時のボケの変化．式 3.2 に示す非等方 Gaussian である $S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ の主軸方向の標準偏差 $\sigma_{\max}$ および副軸方向の標準偏差 $\sigma_{\min}$ のビーム径依存性. (a) スポットサイズ 5, (b) スポットサイズ 4, (c) スポットサイズ 3.

ヒーレントになる．この状況に達すると, 空間コヒーレンスによるボケはなくなるため $S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ は $T(\boldsymbol{q})$ に収束する．つまり, それ以上ビームを広げてもボケが変わらなくなる [70]. $T(\boldsymbol{q})$ を見積るため, ビームの空間コヒーレンスが最もよいスポットサイズ '5' で Airy パターンを取得し, フィッティング計算を行った．図 3.9 にすべてのスポットサイズについて, 非等方 Gaussian 分布 $S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ の主軸方向の標準偏差 $\sigma_{\max}$ および副軸方向の標準偏差 $\sigma_{\min}$ をプロットした．すべてのスポットサイズで, ビーム径を広げていくとボケが収束していることがわかる．図 3.9(a) に示すスポットサイズ 5 のビーム径が $3\,\mu$m 以上の $\sigma_{\min}$ を用いて, 収束値である標準偏差を $\sigma_{\mathrm{res}} = 8.22 \times 10^{-3}\,\mathrm{nm}^{-1}$ と見積った．$S(\boldsymbol{q}) \otimes T(\boldsymbol{q})$ の関係から, $S(\boldsymbol{q})$ の標準偏差は明らかに

$$\sigma = \sqrt{\sigma_{\min}^2 - \sigma_{\mathrm{res}}^2} \tag{3.8}$$

と見積られる．図 3.9(b), (c) のスポットサイズ '4' および '3' について, $\sigma_{\min}$ から式 3.8 を用いて σ を求め, コヒーレンス長に変換した結果を図 3.10 に示す．図 3.10 中の l_c のエ

ラーバーは以下のような手続きで求めた [70]. l_c に対する誤差伝搬を考えると,

$$\begin{aligned}\Delta l_c &= \sqrt{\left(\frac{\partial l_c}{\partial \sigma_{\min}}\Delta\sigma_{\min}\right)^2 + \left(\frac{\partial l_c}{\partial \sigma_{\mathrm{res}}}\Delta\sigma_{\mathrm{res}}\right)^2} \\ &= \frac{1}{(\sigma_{\min}^2 - \sigma_{\mathrm{res}}^2)^{3/2}}\sqrt{(\sigma_{\min}\Delta\sigma_{\min})^2 + (\sigma_{\mathrm{res}}\Delta\sigma_{\mathrm{res}})^2} \end{aligned} \tag{3.9}$$

となる. $\Delta\sigma_{\mathrm{res}}$ には σ_{res} の標準誤差を代入する. Airy パターンのボケに対するフィッティング精度を σ_{res} の測定精度と同等と仮定して $\Delta\sigma_{\min}$ に σ_{res} の標準偏差を代入し, 各 l_c に対してそのエラーバーを見積った. 図 3.10 に示すように, l_c とビーム径 D との間に, 比例関係が得られた. この比例関係は理論 [35] および Schottky FEG についての測定結果 [70] とも一致している.

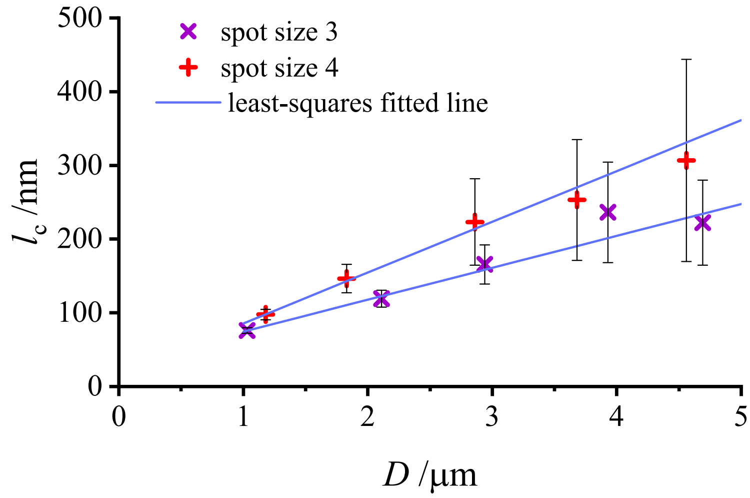

図 3.10　cold FEG TEM で測定した, ビーム径 D とコヒーレンス長 l_c の関係.

3.3.2　LaB_6 熱電子銃 TEM の結果

LaB_6 熱電子銃 TEM で取得した Airy パターンを図 3.11 に示す. cold FEG と同様に, ビーム径を大きくするにつれて, Airy パターンのボケが明らかに小さくなっていることがわかる. また, Airy パターンが楕円形状であるのは, 図 3.3(b) に示すように絞りの形状自体が楕円のためである. 明環の強度分布の 4 回対称性は 2 回対称の非点収差 [72] に由来している [70]. フィッティング計算と実測の Airy パターンを比較するため, 図 3.12(a) にビーム径 3.5 μm の Airy パターン, (b) に式 3.7 を用いたフィッティング計算によって得た Airy パターンを示す. 図 3.12(c) は, 図 3.12(a) 中の実線に沿った, 実測の Airy パターンと計算によって得た Airy パターンのプロファイルの比較である. これらの結果から,

実測のパターンがフィッティング計算によって, よく再現できていることがわかる. 他のビーム径で取得した Airy パターンについても同等の結果であった.

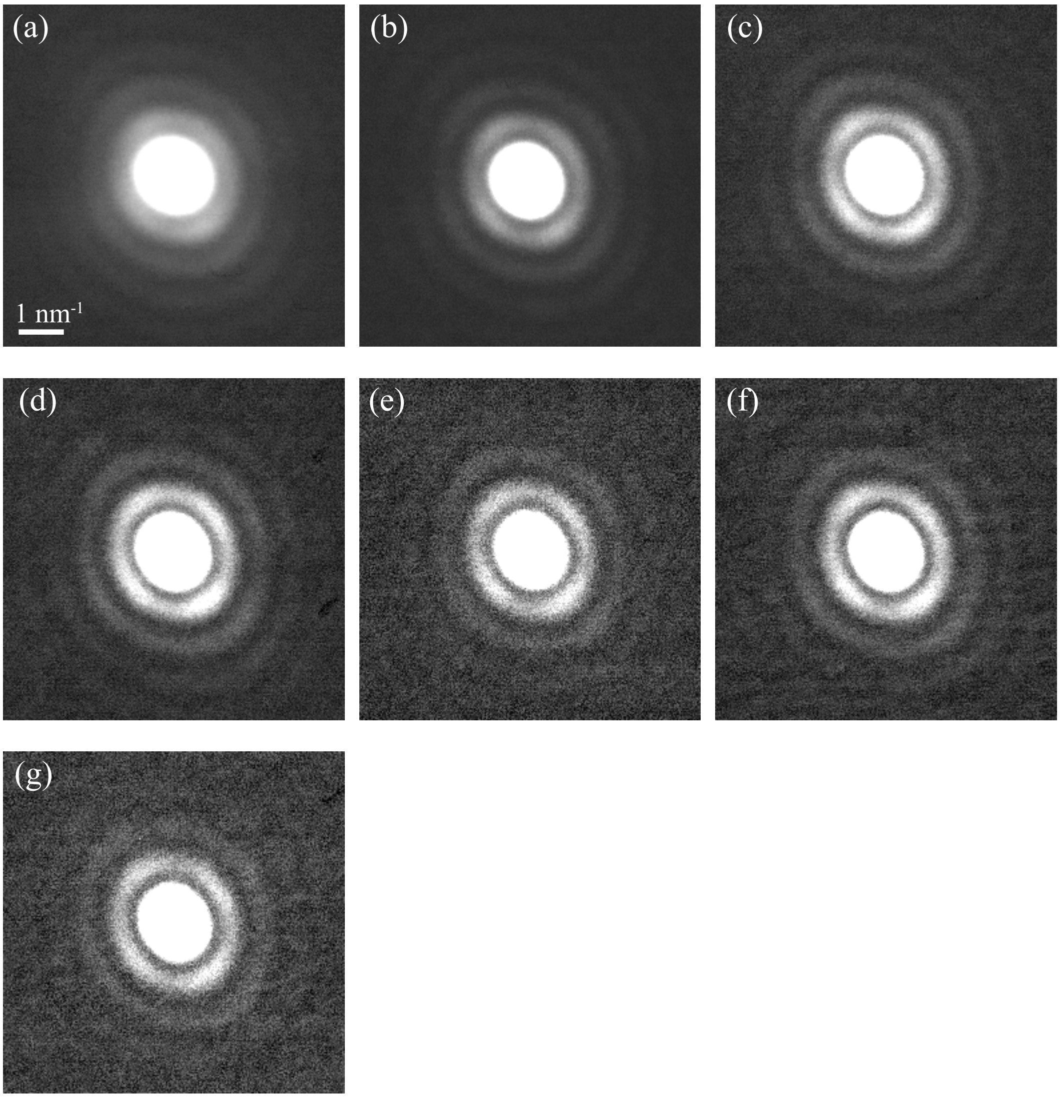

図 3.11　LaB_6 熱電子銃 TEM で撮影した, ビーム径が異なる Airy パターン. (a)2.0 μm, (b)2.8 μm, (c) 3.5 μm, (d) 4.3 μm, (e) 5.1 μm, (f) 5.9 μm, (g) 6.9 μm[71].

電子源の強度分布を Gaussian とした計算モデルと比較するため, 規格化残差

$$\Delta(\boldsymbol{q}) = \frac{I_{\mathrm{ex}}(\boldsymbol{q}) - I_{\mathrm{cal}}(\boldsymbol{q})}{I_{\mathrm{cal}}(\boldsymbol{q})} \tag{3.10}$$

を考える. ここで, $I_{\mathrm{ex}}(\boldsymbol{q})$ は実測の Airy パターンの強度分布, $I_{\mathrm{cal}}(\boldsymbol{q})$ は計算で得た Airy パターンの強度分布である. 図 3.13(a) は, ビーム径 3.5 μm で撮影した Airy パターンの中

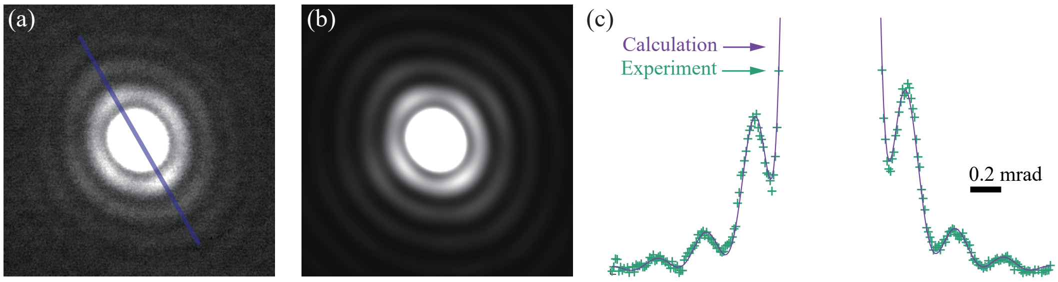

図 3.12　実測と計算の Airy パターンの比較. (a) ビーム径 3.5 μm で撮影した Airy パターン. (b) 式 3.7 を用いて計算で得た Airy パターン. (c) (a) 中の実線にそった実測と計算のプロファイル比較 [71].

心付近の拡大図で, 図 3.13(b), (c) はそれぞれ, 電子源強度を Gaussian 分布として式 3.1 で計算した場合の $\Delta(\boldsymbol{q})$ と, 電子源強度をフィラメント像で置き換えバックグラウンド強度を考慮した式 3.7 で計算した $\Delta(\boldsymbol{q})$ である. 両者を比較すると, 5 時方向および 10 時方向が明らかであるように, 式 3.7 を用いた方が残差が少なく, フィッティング結果がよい. このことは, Gaussian 分布よりもフィラメント像が実際の電子源強度分布に近いことを示している.

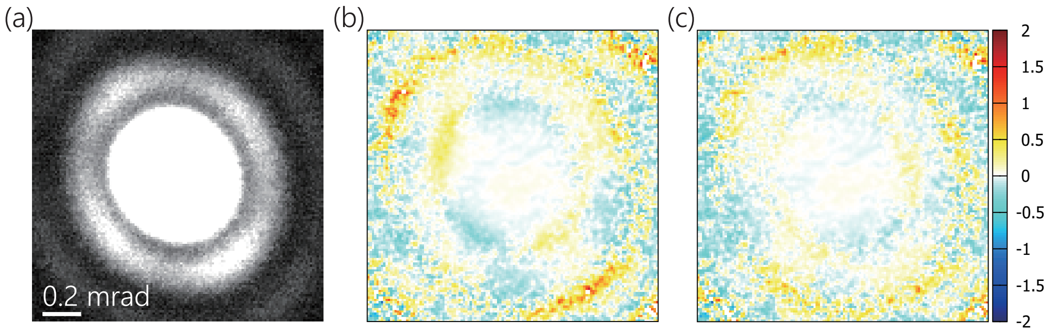

図 3.13　規格化残差 $\Delta(\boldsymbol{q}) = (I_{\rm ex}(\boldsymbol{q}) - I_{\rm cal}(\boldsymbol{q}))/I_{\rm cal}(\boldsymbol{q})$. (a) ビーム径 3.5 μm で撮影した Airy パターンの中心付近の拡大図. (b) 電子源強度分布を Gaussian 分布とした式 3.1 で計算した場合の規格化残差. (c) 電子源強度をフィラメント像で置き換えバックグラウンド強度を考慮した式 3.7 で計算した規格化残差 [71].

FEG の場合には, 空間コヒーレンスを求めるには非等方ガウシアンのボケを分離する必要があったが, LaB_6 熱電子銃の場合にはフィッティング計算の式 3.7 でボケとして畳みこまれるフィラメント像の縮小率 m の項が空間コヒーレンスによるボケに直接対応するため, 分離は必要ない. 図 3.14 は, フィッティング計算で求めたフィラメント像の縮小率 m とビーム径 D の関係である. フィラメント像の縮小率は, 畳みこまれるフィラメント像

の幅, すなわちボケに比例する量である. したがって, 空間コヒーレンスに逆比例する. 言い換えると, 縮小率が小さい程, 幅の小さいボケ関数になり, Airy パターンのボケは小さくなる.

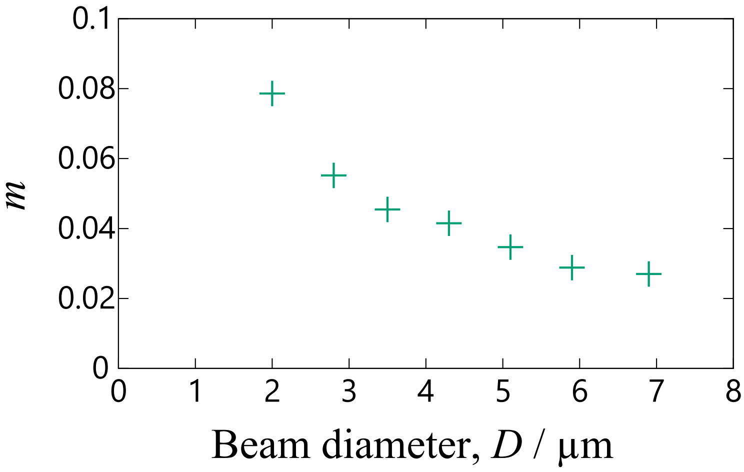

図 3.14　フィラメント像の縮小率 m とビーム径 D の関係. フィラメント像の縮小率は Airy パターンのボケに比例する量である.

ボケから空間コヒーレンスへの換算は, van Cittert-Zernike の定理を用いて空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) = \mathcal{F}[S_{\mathrm{f}}(m^{-1}\Theta^{-1}\boldsymbol{q})]$ を求める. ここで FEG の対称な空間コヒーレンス関数と区別するため, LaB_6 熱電子銃の空間コヒーレンス関数を $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ と記した. 先に述べたように, LaB_6 熱電子銃の電子源像の非対称性がアライメントのずれに起因していることを考慮すると, $S_{\mathrm{f}}(m^{-1}\Theta^{-1}\boldsymbol{q})$ の短軸 ($\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の長軸) が電子源そのものの性質を反映していると考えられる. $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の長軸方向の標準偏差をコヒーレンス長 l_{c} とし, ビーム径との関係を図 3.15 に示した. LaB_6 熱電子銃の場合, フィラメント像の標準偏差から直接 l_{c} を換算するため, 測定誤差の見積に式 3.9 を使うことはできない. l_{c} の誤差伝搬から考えると,

$$\begin{aligned}\Delta l_{\mathrm{c}} &= \sqrt{\left(\frac{\mathrm{d}l_{\mathrm{c}}}{\mathrm{d}\sigma_{\mathrm{f}}}\right)^2 \Delta\sigma_{\mathrm{f}}^2} \\ &= \frac{1}{\sigma_{\mathrm{f}}^2}\Delta\sigma_{\mathrm{f}} \qquad (3.11)\end{aligned}$$

が成り立つ. ここで, σ_{f} はフィラメント像短軸の標準偏差である. フィラメント像によるボケの測定精度 $\Delta\sigma_{\mathrm{f}}$ と, その他のボケの測定精度 $\Delta\sigma_{\mathrm{res}}$ を同等と仮定し, 各 l_{c} に対するエラーバーを見積った. 図 3.15 中のフィッティング結果が示すように, FEG と同様にビーム径に対して比例する結果が得られた.

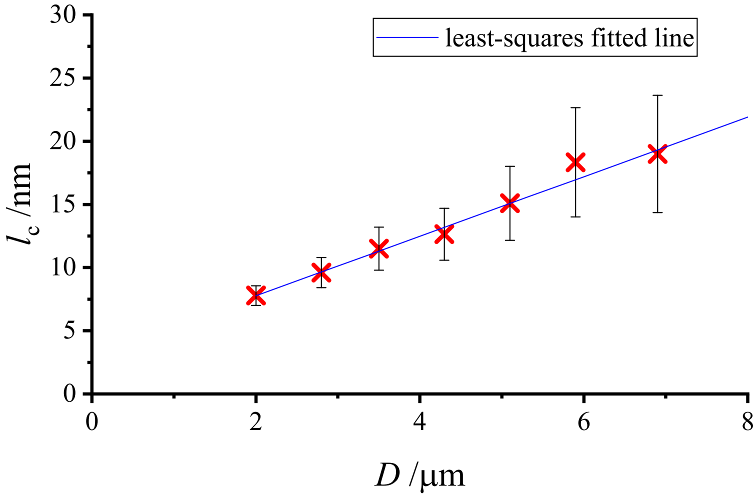

図 3.15　熱電子銃からのビームについて測定した, ビーム径とコヒーレンス長 l_c の関係.

3.4　考察

3.4.1　異なる電子源の比較

異なる電子源の測定結果を実使用条件で比較するため, ビーム径とコヒーレンス長の関係から, コヒーレンス長と軸上電流密度の関係に変換する. これによって, 同じ明るさで照明した場合の空間コヒーレンスを比較できる. 軸上電流密度 j はビーム径 D に対して, $j \propto D^{-2}$ が成り立つ. 一方, 先に述べたようにコヒーレンス長 l_c はビーム径に比例 $l_c \propto D$ する [35] から, $j \propto l_c^{-2}$ が成り立つ. 絞り径が小さいため, j を絞り内の平均電流密度で近似してもよい. Parseval の定理から

$$j = \frac{\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{q}\left(J(\boldsymbol{q}) - J_{\mathrm{bg}}\right)}{S_{\mathrm{a}}} \tag{3.12}$$

が成り立つ. ここで, $J(\boldsymbol{q})$, および J_{bg} は, 強度 $I_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{q})$, および I_{bg} に対応する電流である. S_{a} は SA 絞りの面積である. 図 3.16 に, LaB_6 熱電子銃と cold FEG についての測定結果を示している. また Schottky FEG については文献 [70] のデータを用いて合わせてプロットした. ここで, 電流密度のエラーバーは十分小さいため, 図 3.16 に表示していない. 図 3.16 によって, 同じ電流密度で試料面を照明した時, FEG からのビームの空間コヒーレンスが LaB_6 熱電子銃と比較して, 1 桁以上優れていることが初めて定量的に確認された.

cold FEG および Schottky FEG では, オレンジ色のフィッティング曲線に示すように, 理論から期待される $j \propto l_c^{-2}$ に概ね合う結果が得られた. 指数部がわずかに −2 からずれて

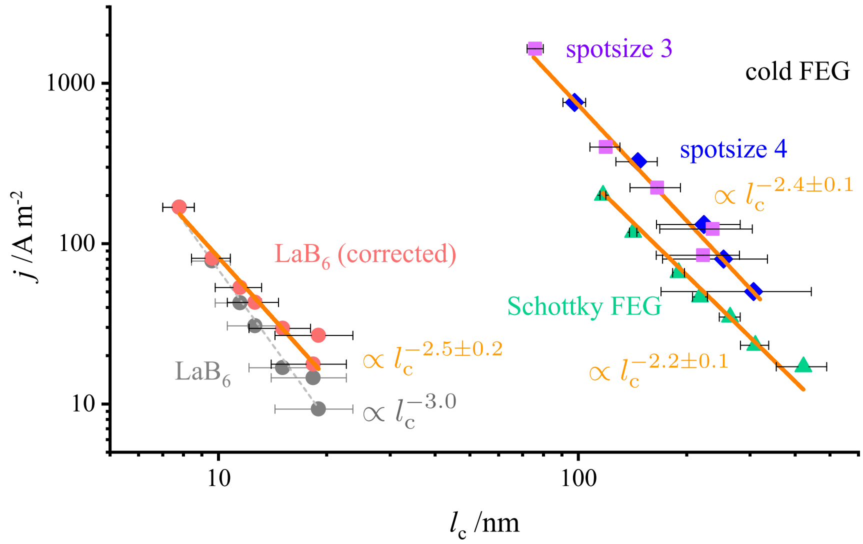

図 3.16 電流密度 j とコヒーレンス長 l_c の関係．Schottky FEG のデータは文献 [70] のデータを用いてプロットした．電流密度のエラーバーは十分小さいため表示していない．

いるのは, 図 3.10 の切片の影響と考えられる．Schottky FEG についても同様に切片があることが確認されている [70]．一方, LaB_6 熱電子銃はグレーの点と点線のフィッティング曲線に示すように, $j \propto l_c^{-3.0}$ の結果が得られた．このように $j \propto l_c^{-2}$ から解離した結果が観測された原因は, 熱電子銃の性質として一般に知られているビーム電流の経時変化だと考えられる．表 3.3 に Airy パターン測定直前に SA 絞りを外した状態で, ビーム電流 J_{beam} を測定した結果を示す．表の 3 列目は規格化した値であり, 最大で 3 割程度まで電流が減少していることが分かる．このような変化には, 次の 2 つの可能性がある．

1. フィラメントの傾きの経時変化
2. LaB_6 からのエミッション電流の経時変化

以下では, この 2 つが l_c, J_{beam}, および D に及ぼす影響を考え, 観測したビーム電流の変化の要因がどちらであるかを検討する．

一つ目の, フィラメントの傾きは, エミッション電流の中心と光軸とのずれを引き起こす．通常の TEM では CL1 近くに固定絞りがあるため, 光軸からのずれで絞りを透過する電流が減少することで, ビーム電流が減少する．一方, l_c は空間コヒーレンス関数 $\gamma_f(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の長軸の標準偏差であるので, フィラメントの傾きには鈍感である．2 つ目の, 温度不安定性によって起きるエミッション電流の経時変化は, エミッション電流密度の変化, エミッション領域の変化, もしくはその両方でもたらされると考えられる．l_c は, 電子源のエミッ

表 3.3　Airy パターン測定時のビーム電流の経時変化

D/μm	J_{beam}/nA	J_{beam}/0.431 nA
2.0	0.431	1.00
2.8	0.414	0.96
3.5	0.345	0.80
4.3	0.308	0.71
5.1	0.245	0.57
5.9	0.355	0.82
6.9	0.150	0.35

ション領域 (強度分布の標準偏差) の逆数として決まるが, エミッション電流密度の変化には影響されない. D は CL2 直下にある CL 絞りと CL2 の励磁で決まるため, エミッション領域の変化, エミッション電流密度の変化, フィラメントの傾きのいずれに対しても変化しない.

上の議論をまとめると, l_c と D はエミッション電流密度の変化および, フィラメントの傾きに対して, ともに影響されない. 一方, エミッション領域の変化は D には影響せず, l_c のみに影響する. したがって, 実験中にエミッション領域が変わったとすると, 図 3.15 に示すような $l_c \propto D$ の関係は測定されていないはずである. したがって, エミッション領域の変化は表 3.3 に示す観測した電流変化の要因ではない. しかしながら, エミッション電流密度およびフィラメント傾斜は, 実験中に変化した可能性がある. この影響は, l_c にはないが, 図 3.16 中の j には及ぶ. この影響は, j を各ビーム径の実験で測定した J_{beam} で規格化する (表 3.3 の最右列の値で j を割る) ことで補正できる. 補正した j と l_c の関係は, 図 3.16 中のピンクの点で示されている. フィッティング曲線は $j \propto l_c^{-2.5\pm0.2}$ となり, FEG と同等で概ね理論と一致した結果を得た.

イントロダクションで述べたように, 空間コヒーレンスはレンズ系に依存するため電子源そのものの性質を示す物理量ではない. 輝度を算出し, 電子源の性能としての直接比較は第 5 章で述べる.

3.4.2　電子線ホログラフィーとの比較

第 2 章で述べたように, 空間コヒーレンス測定として最も一般的なのは, バイプリズムを用いる手法である. この手法の概略を図 3.17 に示す. 電子源から生成したビームは試料面を透過し, バイプリズムで 2 つに分けられる. バイプリズムは正の電圧がかかっており, 分けられた電子波は偏向され, 重なった領域で干渉縞が生じ, その鮮明度から空間コヒー

レンズを評価できる．

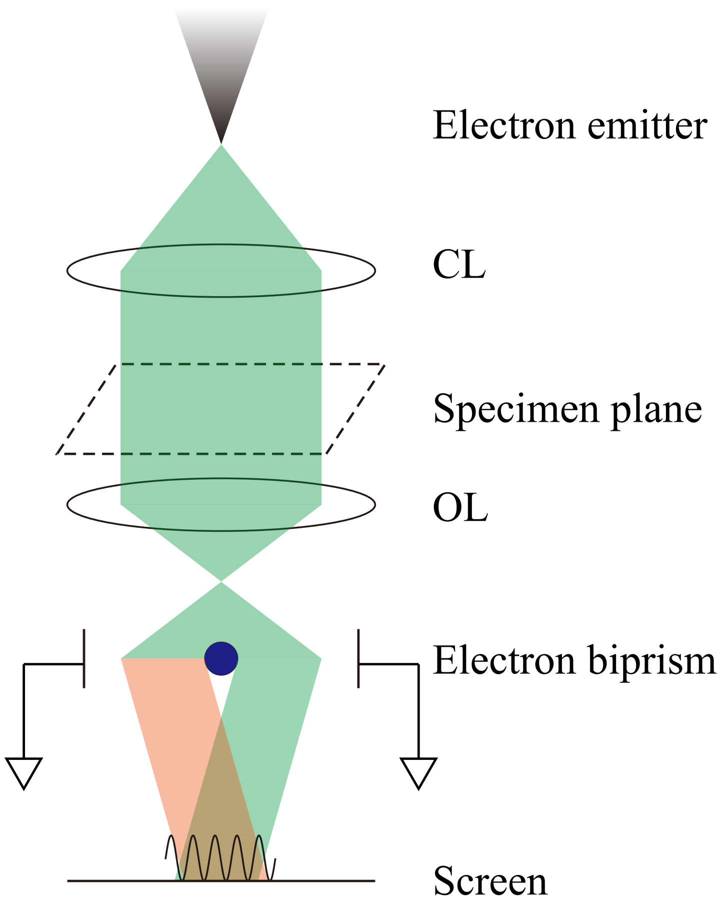

図 3.17　電子線バイプリズムを用いた干渉性評価の光学系の概略図．バイプリズムで分けられたビームの色を変えている．

この手法は，試料面上にバイプリズムの共役像ができるため，コヒーレンス長がバイプリズムの実効径よりも長い必要がある．これは，コヒーレンス長がバイプリズムの実効径よりも短い場合，ビームの干渉領域がバイプリズムでほとんど消されてしまい，干渉縞が生じないためである．バイプリズムは導電性ワイヤで，典型的な径は 1 μm 程度である．本実験で用いた TEM の対物レンズの倍率が約 34 倍であるから，仮にバイプリズムを用いたとすると，その実効径はおよそ 30 nm 程度になる．この大きさでは，図 3.15 に示したコヒーレンス長よりも長いため，ビームの可干渉な領域はバイプリズムによって消されてしまい空間コヒーレンス測定は困難になる．対物レンズの倍率が 100 倍程度の TEM，もしくは直径の細い特別なバイプリズムを用いることで，10 nm 程度の離れた距離に対して干渉縞を計測することは可能である [74, 75]．しかしながら，干渉領域が狭い場合にはバ

イプリズムからの Fresnel 散乱の影響によって, 干渉縞の鮮明度の定量評価は困難になる [29, 76]. そのため, バイプリズムを使った空間コヒーレンスの定量測定は, コヒーレンス長がバイプリズム径よりもずっと大きい領域で可能である. したがって, 今回測定したコヒーレンス長 7–19 nm の結果をバイプリズムを使った測定で得ることは難しいと考えられる.

また, 特別に細いバイプリズムと対物レンズの倍率が高い TEM を用いて, 熱電子銃から生成したビームで干渉縞を測定できたとしても, ビームの干渉性が悪いため, ビーム径を大きく広げる必要がある. 当然であるが, ビーム強度が低下するため, 干渉縞の測定に長い露光時間を要する. バイプリズムによって得られる干渉縞の鮮明度は, バイプリズムのドリフトや機械的振動, 偏向レンズのドリフトなどによる装置の不安定性によって低下することが知られている. これらは, 干渉縞のシフトだけでなく, 干渉縞の間隔を変えるような影響を及ぼす. バイプリズムで測定を実現するにはこのような別の困難な点も解決する必要がある.

3.4.3　エネルギー幅の影響

電子ビームのエネルギー幅は, 色収差としての影響および, 時間コヒーレンスの影響がある. 熱電子銃の場合, ビームのエネルギー幅 ΔE は, $1-2\,\mathrm{eV}$[1] である. 電子のエネルギーが 200 keV であるから, 相対的に 5×10^{-6} のオーダーの影響は十分無視でき, 通常は単色とみなしてよい. 実際に同様のオーダーのエネルギー幅をもつ Schottky FEG の測定において, 色収差の影響がほとんどないことが確認されている [70]. cold FEG はエネルギー幅が最も狭く 0.5 eV 程度であるため, 同様に色収差の影響は無視できる.

時間コヒーレンスの影響は, 絞りの寸法と Airy パターンの散乱角を用いて見積られる [77]. 図 3.18 に示すように, 光路差 Δ_{path} は散乱角 ϑ を用いて, $\Delta_{\mathrm{path}} = d_{\mathrm{a}}\sin\vartheta$ とかける. ここで, d_{a} は絞り直径である. $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃の場合, 図 3.11 から散乱角はせいぜい 1.5 mrad 程度と見積られるから, 光路差は

$$\begin{aligned}\Delta_{\mathrm{path}} &\sim 10\,\mathrm{nm}\times\sin(1.5\,\mathrm{mrad})\\ &\simeq 0.015\,\mathrm{nm}\end{aligned}\tag{3.13}$$

のオーダーであることが分かる. 一方, 時間コヒーレンス長 l_{time} はおおよそ $vh/\Delta E$ で見積られることが知られている [57]. ここで, v, h はそれぞれ速度およびプランク定数である. 電子のエネルギー幅が 1 eV の時に $l_{\mathrm{time}}\sim 850\,\mathrm{nm}$, 2 eV の時に $l_{\mathrm{time}}\sim 400\,\mathrm{nm}$ のオーダーと見積もられる. $l_{\mathrm{time}} \gg \Delta_{\mathrm{path}}$ であるから, Airy パターンの結像する近軸の範囲では, 時間方向の可干渉度は 1 として十分よいと考えられる. cold FEG や Schottky FEG では絞り径が大きいため, $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃よりもさらに小角散乱になる. また, エネルギー幅が狭い

ため, 時間コヒーレンスが伸びる．そのため, 当然 $l_{\mathrm{time}} \gg \Delta_{\mathrm{path}}$ を満たし, 時間方向の可干渉度を 1 としてよい.

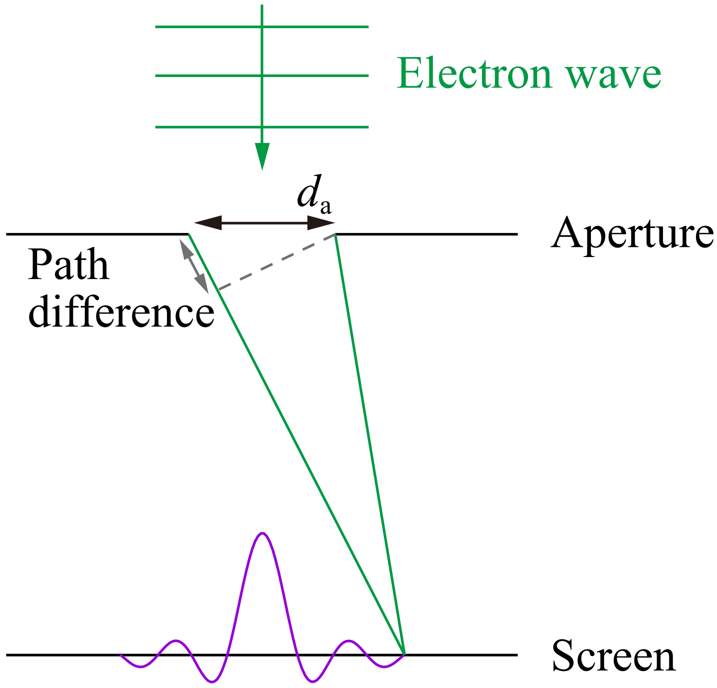

図 3.18　Airy パターン結像時の, 絞りによる光路差を示す概略図.

第 4 章

Wigner 関数の再構成

本章では, 第 3 章で述べたコヒーレンス測定を応用して, Wigner 関数を再構成する. Wigner 関数の再構成に必要となる, 密度演算子の計算について述べ, 再構成手順を述べる. 提案した手法を用いて, FEG の空間コヒーレンス測定の結果から Wigner 関数を再構成した結果について述べる. さらに, LaB_6 熱電子銃について, 空間コヒーレンス測定の修正に関連した Wigner 関数の再構成法の修正点を述べ, 再構成結果を述べる.

4.1　再構成法の理論

4.1.1　TEM における Wigner 関数の再構成の問題

第 2 章で述べた通り, Wigner 関数は

$$W(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\boldsymbol{q}\boldsymbol{\mu}} \left\langle \boldsymbol{r} + \frac{\boldsymbol{\mu}}{2} \middle| \hat{\rho} \middle| \boldsymbol{r} - \frac{\boldsymbol{\mu}}{2} \right\rangle \tag{4.1}$$

と書ける. 式 4.1 から明らかなように, 直接的には密度演算子を通して, Wigner 関数を再構成可能である. また別のアプローチとしては, 位相空間分布を回転させながら強度分布を撮影し再構成する, 位相空間トモグラフィがある [45]. 位相空間を回転させた強度測定は, 光学系ではビームをレンズに通し, レンズ面のすぐ後の面で強度測定を行い, 焦点方向に少し面をずらして強度測定, という様に異なるフォーカス位置で強度測定を実施することで実現できる. この手法は密度演算子の非対角成分を求める必要がなく, 強度測定のみでよい利点がある. TEM では, 過去にインラインホログラフィおよび, オフアクシスホログラフィによる位相空間トモグラフィが検討された [48]. 前者では, TEM の磁界レンズの励磁に限界があり, 撮影できるフォーカスシリーズ像の数が再構成に不十分であると結論されている. 後者では, 面内回転が可能なバイプリズムで十分なフォーカスシリーズ像の撮影が可能であるが, バイプリズムからの Fresnel 散乱が再構成に深刻な影響を及ぼすこ

とが指摘されている．

4.1.2　コヒーレンス測定を応用した Wigner 関数の再構成

本研究では, TEM において電子ビームの密度演算子を通した Wigner 関数の再構成を提案する．まず, 密度演算子を用いた光学系の記載について述べた後, Wigner 関数の再構成法について述べる．

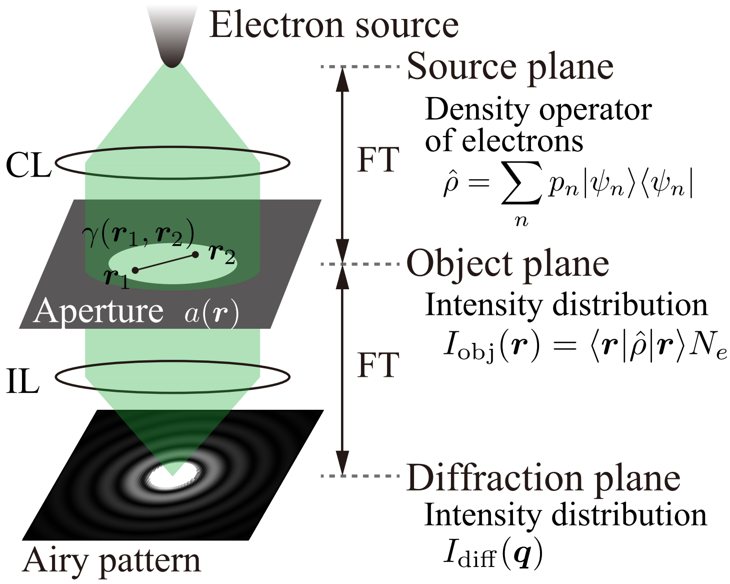

図 4.1　Airy パターン結像の簡単化した光学系 [78]. CL は複数の照射レンズの組, IL は複数の中間レンズ, 投影レンズ, エネルギフィルターのレンズ系の組, FT はフーリエ変換を表す. $\hat{\rho}$ は密度演算子, $I_{\mathrm{obj}}(\boldsymbol{r})$ は実空間の強度分布, $I_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{q})$ は逆空間の強度分布である.

考える光学系は第 3 章と同様であり, 図 4.1 に簡単化した光学系を示す．中間レンズ, 投影レンズ, およびエネルギフィルターのレンズをまとめて IL と記した．電子源から発生した電子の状態を密度演算子 $\hat{\rho}$ で記述する．一般に, 電子にはレーザーのような電子源が存在しないため, どのような電子源を用いても電子は混合状態にある [38]. これは先に述べたように, 粒子モデルでは, 有限サイズの電子源の異なる点から発生した電子がわずかに異なる向きに試料面に照射されることに対応し, 波動モデルでは, 異なる点から発生した僅かに異なる波面が, インコヒーレントに足し合わせれることに相当する．電子の状態を

$|\psi_n\rangle$ と書くと, 密度演算子は

$$\hat{\rho} = p_n \sum_n |\psi_n\rangle \langle\psi_n| \tag{4.2}$$

と書ける．ここで, p_n は状態 $|\psi_n\rangle$ の混合確率である．正確には, 電子はエネルギー分布をもつため, $|\psi_n\rangle$ はエネルギーの異なる状態も含まれている．しかしながら, 第 3.4.3 節で述べたように, エネルギー幅は十分狭いため, Airy パターンの結像に影響しない．ここでは, 絞り内の電子波のエネルギー分布を無視し, 単色近似の範囲で記述する．

電子の伝搬は, 時間発展演算子により記述される．理想的なレンズ作用は電子のエネルギーを変化させないから, 状態変化はないように記述される．つまり, 収差のない理想的なレンズを用いた場合, 実空間および逆空間の強度分布はそれぞれ, $\langle \boldsymbol{r}|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}\rangle$, および $\langle \boldsymbol{q}|\hat{\rho}|\boldsymbol{q}\rangle$ に相当する．これらの値は式 2.10 に示すように 1 で規格化するが, 強度は慣習的に電子数 N_e で規格化することが多い．つまり実空間では

$$\begin{aligned} \iint_{S_\mathrm{a}} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}\, I_\mathrm{obj}(\boldsymbol{r}) &= \iint_{S_\mathrm{a}} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}\, \xi(\boldsymbol{r})^2 \\ &= N_e \end{aligned} \tag{4.3}$$

が成り立つ．ここで, $\xi(\boldsymbol{r})$ は波動場 $\Psi(\boldsymbol{r})$ の振幅, S_a は絞り面積を表す．したがって, 本質的ではないがここでは

$$I_\mathrm{obj}(\boldsymbol{r}) = \langle \boldsymbol{r}|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}\rangle\, N_e \tag{4.4}$$

が成り立つとしておく．逆空間の強度分布も同様に

$$I_\mathrm{diff}(\boldsymbol{q}) = \langle \boldsymbol{q}|\hat{\rho}|\boldsymbol{q}\rangle\, N_e \tag{4.5}$$

が成り立つ．

Wigner 関数の再構成には, 式 4.1 から明らかなように, 非対角成分も含めて密度行列を求める必要がある．一般に, 密度演算子の対角項は強度測定で求められるが, 非対角項の決定には, 位相を求めることが必要となる．さらに混合状態であるので, 空間コヒーレンスも重要となる．密度演算子の非対角項は, 2 点間の相関 $\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}_2\rangle = \langle \psi(\boldsymbol{r}_1)\psi^*(\boldsymbol{r}_2)\rangle$ を表す．光学分野では, これは相互可干渉度関数 $\Gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) = \langle \Psi(\boldsymbol{r}_1)\Psi^*(\boldsymbol{r}_2)\rangle$ に相当する [45]. 相互可干渉度関数は, 強度と同様に $\iint_{S_\mathrm{a}} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}\, \Gamma(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{r}) = \iint_{S_\mathrm{a}} \mathrm{d}^2\boldsymbol{r}\, I_\mathrm{obj}(\boldsymbol{r}) = N_e$ が成り立ち, 電子数で規格化される．

まず, 照明が理想的な場合として, 実空間の強度分布と位相分布が一様な場合を考える．これは, 図 4.1 に示すように, CL によって試料面が平行照射されている時に対応する．こ

の時, 密度行列の非対角項は, 相互可干渉度関数の規格化因子を考慮して,

$$\begin{aligned}\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}_2\rangle &= \frac{\Gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)}{N_e} \\ &= \frac{\gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)\sqrt{\Gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_1)\Gamma(\boldsymbol{r}_2,\boldsymbol{r}_2)}}{N_e} \\ &= \frac{\gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)\xi_0^2}{N_e} \end{aligned} \tag{4.6}$$

となる. ここで, ξ_0 は波動の一様振幅である. 最終行の変形に, $\sqrt{\Gamma(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r})} = \sqrt{I_{\mathrm{obj}}(\boldsymbol{r})} = \xi_0$ の関係を用いた.

実際の場合, 平行照射ではなくビームは多少集束している, もしくは発散しているかのどちらかである. これは, CL の励磁 (デフォーカス) をかえて, 試料面上でビーム径を調整しているために起こる. このため, 集束ビームを用いれば試料面上の振幅は増加し, 発散ビームを用いれば振幅は減少する. さらに, ビームの軸からのアライメントずれ, デフォーカス以外の収差といった影響で, 現実には振幅分布 $\xi(\boldsymbol{r})$ が発生する. 同様に, 位相分布も一様でなく, レンズ収差による影響で位相が変調される. この効果は, 理想的な波面からのずれとして記述できる [72]. 位相のずれは, 量子力学ではユニタリ演算子をかけることに対応する. CL によるレンズ収差を表す演算子を $\hat{U}_{\mathrm{CL}}$ と書くと, CL の収差の影響を受けた電子の状態 $|\psi'\rangle$ は

$$|\psi'\rangle = \hat{U}_{\mathrm{CL}}\,|\psi\rangle \tag{4.7}$$

とかける. このユニタリ演算子の具体的な表示は, 第 3.1.2 節で述べた, 収差関数を演算子にして

$$\hat{U}_{\mathrm{CL}} = \exp\left[-\mathrm{i}k\hat{X}_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})\right] \tag{4.8}$$

とかける. $\hat{U}_{\mathrm{CL}}$ は位置基底 $|\boldsymbol{r}\rangle$ に対して固有値 $\exp\left[-\mathrm{i}kX_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})\right]$ をもつ. すなわち,

$$\hat{U}_{\mathrm{CL}}\,|\boldsymbol{r}\rangle = \exp\left[-\mathrm{i}kX_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})\right]|\boldsymbol{r}\rangle \tag{4.9}$$

が成り立つ. 実空間において, 収差による位相分布を求めることは, 位置基底に対する固有値 $\exp\left[-\mathrm{i}kX_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})\right]$ を求めることに対応する. この CL の収差の影響を受けた電子の密度演算子 $\hat{\rho}'$ は

$$\begin{aligned}\hat{\rho}' &= \sum_n p_n\,|\psi'_n\rangle\langle\psi'_n| \\ &= \sum_n p_n\hat{U}_{\mathrm{CL}}\,|\psi_n\rangle\langle\psi_n|\,\hat{U}^{\dagger}_{\mathrm{CL}}\end{aligned} \tag{4.10}$$

となる．ここで, † はエルミート共役を表し, 共役な演算子は $\hat{U}^\dagger_{\mathrm{CL}}|\boldsymbol{r}\rangle = \mathrm{e}^{\mathrm{i}kX_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})}|\boldsymbol{r}\rangle$ を満たす．密度演算子 $\hat{\rho}'$ の非対角項は

$$
\begin{aligned}
\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}'|\boldsymbol{r}_2\rangle &= \sum_n p_n \langle \boldsymbol{r}_1|\hat{U}_{\mathrm{CL}}|\psi_n\rangle\langle\psi_n|\hat{U}^\dagger_{\mathrm{CL}}|\boldsymbol{r}_2\rangle \\
&= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_1)-X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_2)]}\sum_n p_n \langle \boldsymbol{r}_1|\psi_n\rangle\langle\psi_n|\boldsymbol{r}_2\rangle \\
&= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_1)-X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_2)]}\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}|\boldsymbol{r}_2\rangle \\
&= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_1)-X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_2)]}\frac{\Gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)}{N_e} \\
&= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_1)-X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}_2)]}\frac{\gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)\xi(\boldsymbol{r}_1)\xi(\boldsymbol{r}_2)}{N_e}
\end{aligned}
\tag{4.11}
$$

となる．ここで, $\sqrt{\Gamma(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r})} = \xi(\boldsymbol{r})$ であることを用いた．

CL の収差で位相が変調されるのと同様に, 電子回折の結像までに電子は IL を透過するため, IL の収差の影響をうける．先ほどと同様に, IL の収差によるユニタリ演算子を $\hat{U}_{\mathrm{IL}}$ と書く．CL の影響と合わせてユニタリ演算子は $\hat{U} = \hat{U}_{\mathrm{CL}}\hat{U}_{\mathrm{IL}}$ と書くことができ, 収差関数は和として, 第 3.1.2 節と同様に, $X(\boldsymbol{r}) = X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r}) + X_{\mathrm{IL}}(\boldsymbol{r})$ と書くことができる．第 3.1.2 節で述べたように, Airy パターンのフィッティング計算で求められるのは, 合成の収差関数 $X(\boldsymbol{r})$ であるから, 式 4.11 中の $X_{\mathrm{CL}}(\boldsymbol{r})$ を $X(\boldsymbol{r})$ に入れ替えた密度行列

$$
\langle \boldsymbol{r}_1|\hat{\rho}'|\boldsymbol{r}_2\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X(\boldsymbol{r}_1)-X(\boldsymbol{r}_2)]}\frac{\gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)\xi(\boldsymbol{r}_1)\xi(\boldsymbol{r}_2)}{N_e}
\tag{4.12}
$$

を考える．式 4.12 は実空間ではなく, 余剰な位相 $kX_{\mathrm{IL}}(\boldsymbol{r})$ が追加された仮想的な実空間における密度行列を示している．密度演算子の対角成分についても同様に, 式 4.12 から求められ

$$
\langle \boldsymbol{r}|\hat{\rho}'|\boldsymbol{r}\rangle = \frac{\xi(\boldsymbol{r})^2}{N_e}
\tag{4.13}
$$

となる．式 4.12 を式 4.1 に代入し, 絞り内の電子波に対して再構成される Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{q})$ は

$$
\begin{aligned}
W_{\mathrm{a}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^2 N_e}\iint_{-\infty}^{\infty}&\mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\boldsymbol{q}\boldsymbol{\mu}}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\left[X(\boldsymbol{r}+\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})-X(\boldsymbol{r}-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})\right]}\gamma\left(\boldsymbol{r}+\frac{\boldsymbol{\mu}}{2},\boldsymbol{r}-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \\
&\times a\left(\boldsymbol{r}+\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\xi\left(\boldsymbol{r}+\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)a\left(\boldsymbol{r}-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\xi\left(\boldsymbol{r}-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)
\end{aligned}
\tag{4.14}
$$

と書ける．

第 3 章で述べた Airy パターンの強度分布解析によって, フィッティングパラメータである $\xi(\boldsymbol{r})$, $X(\boldsymbol{r})$, $\gamma(\boldsymbol{r}_1,\boldsymbol{r}_2)$ が求まっている．TEM 像から決定した $a(\boldsymbol{r})$ と合わせて, 式 4.14 から Wigner 関数を再構成できる．まず cold FEG および Schottky FEG について, 第 3 章で得た結果をもとに, Wigner 関数を再構成していく．

4.2 再構成結果

4 次元で再構成した $W_{\mathrm{a}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{q})$ を図示することはできないので, 2 次元の Wigner 関数を示す. 1 次元の実空間基底として, r_x を図 4.2(a) 中の実線にそってとる. また, 対応する 1 次元の逆空間基底を q_x とする. r_x に沿った密度行列 $\langle r_{x1}|\hat{\rho}|r_{x2}\rangle$ が式 4.12 と同様に

$$\langle r_{x1}|\hat{\rho}|r_{x2}\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X(r_{x1})-X(r_{x2})]}\frac{\gamma(r_{x1},r_{x2})\xi(r_{x1})\xi(r_{x2})}{N_e} \tag{4.15}$$

と書けるから, 2 次元の Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x)$ は,

$$\begin{aligned}W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x) =& \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}\mu\ \mathrm{e}^{-\mathrm{i}q_x\mu}\left\langle r_x+\frac{\mu}{2}\middle|\hat{\rho}\middle|r_x-\frac{\mu}{2}\right\rangle \\ =&\frac{1}{2\pi N_e}\int_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}\mu\ \mathrm{e}^{-\mathrm{i}q_x\mu}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\left[X(r_x+\frac{\mu}{2})-X(r_x-\frac{\mu}{2})\right]}\gamma\left(r_x+\frac{\mu}{2},r_x-\frac{\mu}{2}\right) \\ &\times a\left(r_x+\frac{\mu}{2}\right)\xi\left(r_x+\frac{\mu}{2}\right)a\left(r_x-\frac{\mu}{2}\right)\xi\left(r_x-\frac{\mu}{2}\right)\end{aligned} \tag{4.16}$$

とかける. 図 4.2 および図 4.3 に, cold FEG のスポットサイズ 3 および, スポットサイズ 4 で得た Airy パターンから, 再構成した Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x)$ の結果をまとめた. すべての結果でピークを 1 とする規格化をしている.

再構成した $W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x)$ の実空間方向への投影は絞りのプロファイルに対応する. 解析的には,

$$\int \mathrm{d}q_x W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x) = \frac{a(r_x)\xi(r_x)^2}{N_e} \tag{4.17}$$

とかける. 同様に逆空間への投影は 1 次元プロファイルから計算した Airy パターンに対応し,

$$\int \mathrm{d}r_x W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x) = \frac{1}{N_e}\left|\mathcal{F}\left[a(r_x)\xi(r_x)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}kX(r_x)}\right]\right|^2 \otimes S(q_x) \tag{4.18}$$

とかける. 光学系が完全に軸対称な場合, これらは任意の角度の 1 次元プロファイルと一致するため, Wigner 関数の再構成として, $W_{\mathrm{a}}(r_x,q_x)$ を求めることに簡略化できる [79]. しかしながら, TEM では試料がなく電子ビームだけの系でも軸対称な系にはなっていない. これは TEM に使用される磁界レンズの主な収差として 2 回対称な非点収差が存在しているためである [72].

得られた Wigner 関数の形状は, 1 次元の絞りからの回折として求めた Wigner 関数の解析解を示した図 2.6 とよく一致している [63]. 異なる点は, 実験結果では, ピーク付近の峰の部分が斜めになっていることである. これはデフォーカスの効果であり, Airy パターンを撮影する際に, 結像面で多少ビームが集束もしくは発散していることを示している.

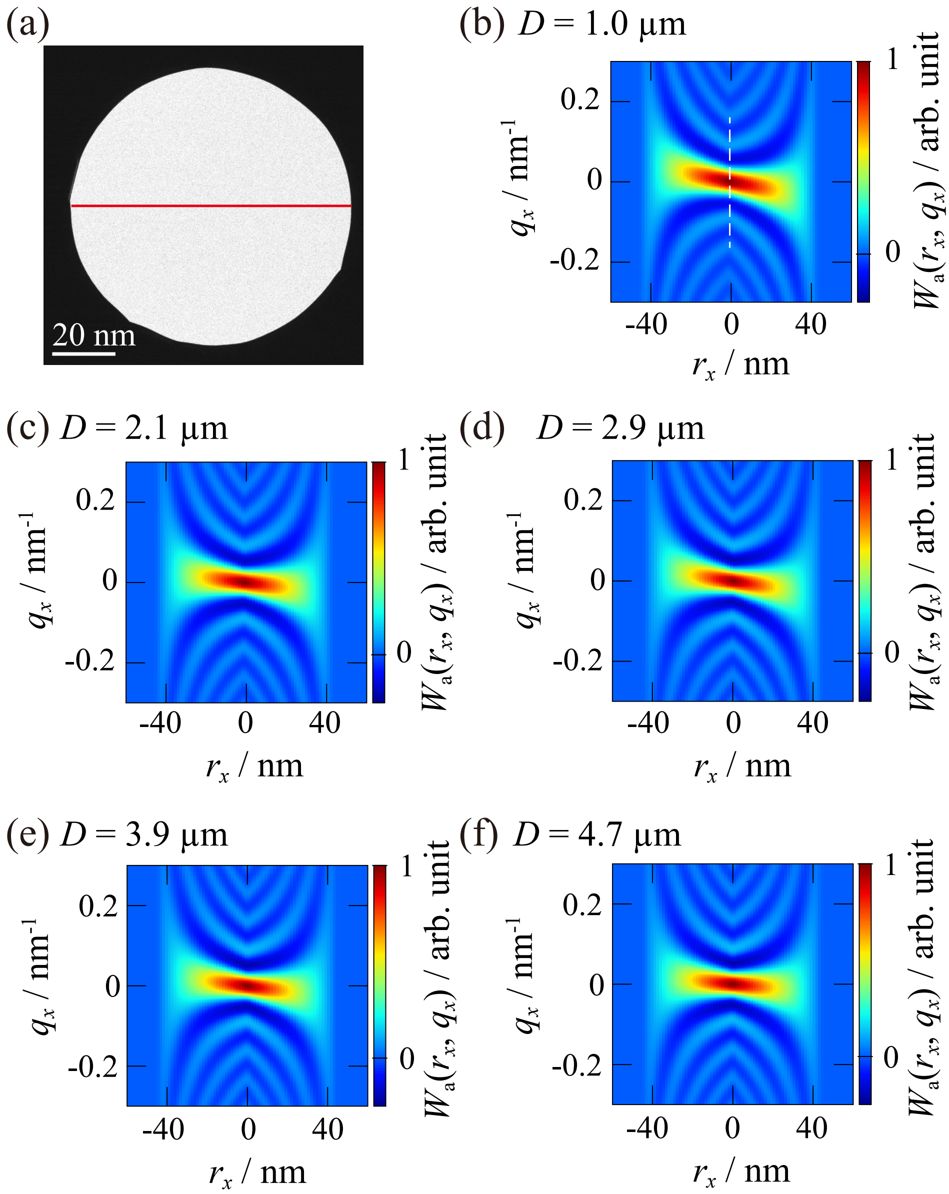

図 4.2　cold FEG TEM のスポットサイズ 3 の電子ビームで得た Airy パターンに基づいた, Wigner 関数の再構成結果. (a) 絞り像. 絞り中の実線は実空間の 1 次元基底 r_x を表す. 異なるビーム径 D (空間コヒーレンス長) で再構成した Wigner 関数 $W_\mathrm{a}(r_x, q_x)$ (b) D = 1.0 μm (l_c = 76 nm) (c) D = 2.1 μm (l_c = 120 nm) (d) D = 2.9 μm (l_c = 166 nm) (e) D = 3.9 μm (l_c = 236 nm) (f) D = 4.7 μm (l_c = 222 nm).

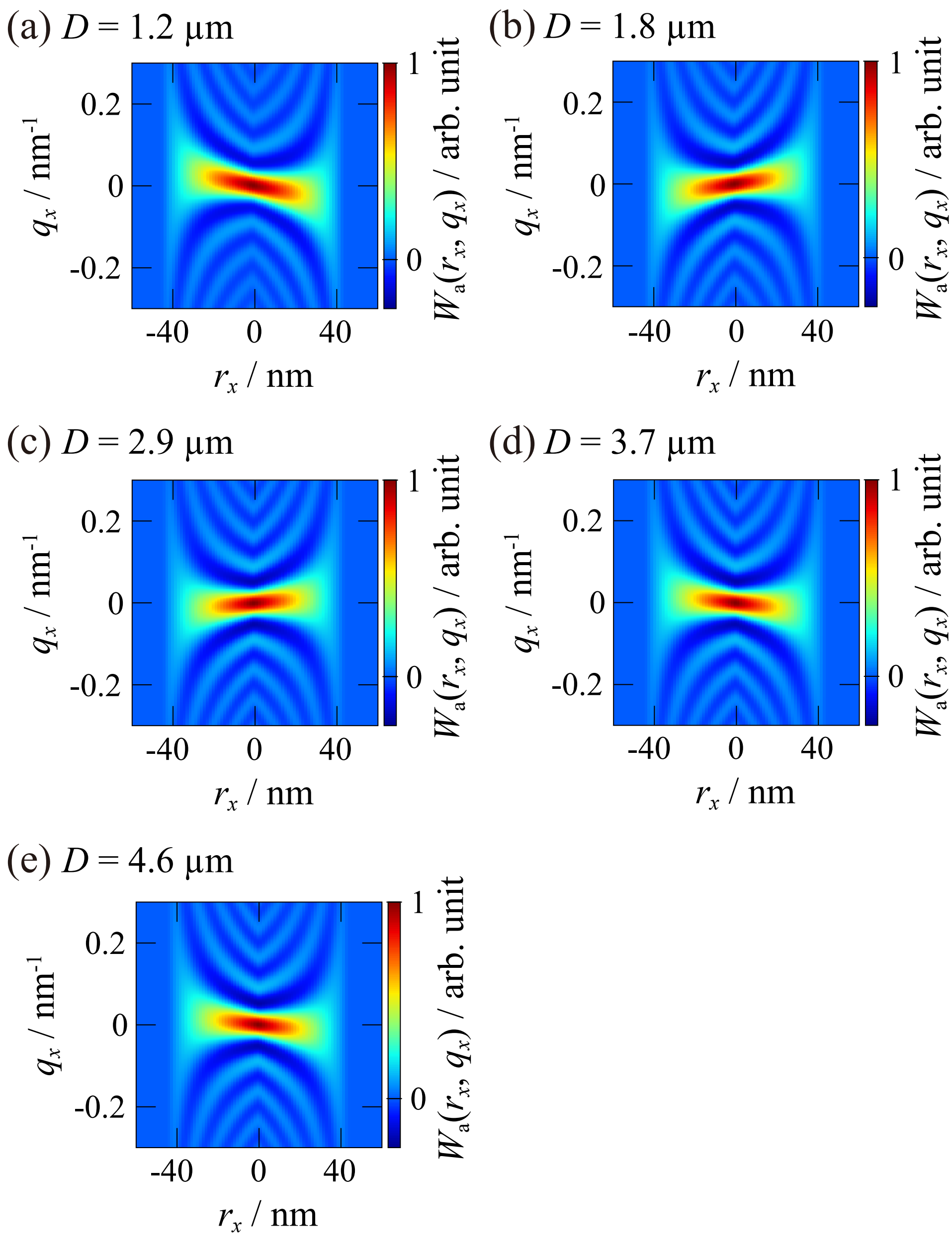

図 4.3　cold FEG TEM のスポットサイズ 4 の電子ビームで得た Airy パターンに基づいた, Wigner 関数の再構成結果. 異なるビーム径 D (空間コヒーレンス長) で再構成した Wigner 関数 $W_a(r_x, q_x)$ (a) $D = 1.2\,\mu$m ($l_c = 98$ nm) (b) $D = 1.8\,\mu$m ($l_c = 146$ nm) (c) $D = 2.9\,\mu$m ($l_c = 223$ nm) (d) $D = 3.7\,\mu$m ($l_c = 253$ nm) (e) $D = 4.6\,\mu$m ($l_c = 307$ nm).

同様に Schottky FEG について, 文献 [70] の Airy パターンのフィッティング計算のデータを用いて, 再構成した Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x, q_x)$ を図 4.4 に示す. cold FEG と同様に図 2.6 とよく一致した再構成結果が得られた.

$\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃の空間コヒーレンス測定では, 図 3.3(a) に示すような非対称なフィラメント像をフィッティング計算に使った. CL2 の励磁を変えてビーム径を変えると, 試料面からみた電子源像が回転する. 実際にフィッティング計算の結果, 異なるビーム径ではフィラメント像の回転角が異なっている. つまり空間コヒーレンス関数の長軸方向が, 絞りに対して, 各ビーム径で回転する. 式 4.16 の計算には, 空間コヒーレンス関数の長軸方向で計算することが, 電子源の性質を反映しているため望ましい. 空間コヒーレンス関数の長軸方向に沿った座標を r_l とおくと, 絞りが楕円であるため絞り関数 $a(r_l)$ が示す直径がビーム径に依存して変わる. この問題を避けるため, 図 4.5(a) の点線で示すように, 直径が実際の絞りの長軸に等しいような仮想的な絞り S'_{a} を考える. 仮想的な絞りを表す絞り関数を $a'(\boldsymbol{r})$ とおく. 空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の長軸方向のプロファイル $\gamma_{\mathrm{f_{long}}}(r_{l1}, r_{l2})$ と, $a'(\boldsymbol{r})$ を用いて,

$$W_{\mathrm{a}}(r_l, q_x) = \frac{1}{2\pi N_e}\int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}\mu\ \mathrm{e}^{-\mathrm{i}q_x\mu}\mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\left(X(r_l+\frac{\mu}{2})-X(r_l-\frac{\mu}{2})\right)}\gamma_{\mathrm{f_{long}}}\left(r_l+\frac{\mu}{2}, r_l-\frac{\mu}{2}\right)$$
$$\times a'\left(r_l+\frac{\mu}{2}\right)\xi\left(r_l+\frac{\mu}{2}\right)a'\left(r_l-\frac{\mu}{2}\right)\xi\left(r_l-\frac{\mu}{2}\right), \tag{4.19}$$

を計算する. 図 4.5 は再構成結果であり, FEG で得た形状と同様であった. $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃には, 空間コヒーレンス関数にフィラメント像に起因する非対称性があるが, 再構成した Wigner 関数に歪の影響は大きくないと考えられる.

2 次元の位相空間分布としては式 4.16 以外に, 4 次元空間から 2 次元空間を切り出した Wigner 関数を示すこともできる. 式 4.14 で $\boldsymbol{r} = (r_x, 0)$, $\boldsymbol{q} = (q_x, 0)$ 平面について再構成した Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x, 0, q_x, 0)$ を図 4.6 に示す. 図 4.6 (a), (b), および (c) はそれぞれ, cold FEG, Schottky FEG, $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃からのビームで再構成した Wigner 関数である. これらは図 4.2–4.5 で示した, 2 次元の Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x, q_x)$ とよく一致している. 両者の差異は, $W_{\mathrm{a}}(r_x, q_x)$ は実空間および逆空間への投影がそれぞれ式 4.17, 4.18 に対応するが,$W_{\mathrm{a}}(r_x, 0, q_x, 0)$ は 4 次元空間からの切り出しであるため対応する強度分布はない.

図 4.2, 4.3, 4.4, および 4.5 に示したように, 再構成した Wigner 関数は, すべて同様の形状で, 図 2.6 の解析解によく一致している. 空間コヒーレンス長による Wigner 関数の変化をより詳しく比較するため, 図 4.2 中の破線に沿ったプロファイル $W_{\mathrm{a}}(0, q_x)$ を比較する. 図 4.7(a), (b), (c), および (d) はそれぞれ cold FEG のスポットサイズ 3, および 4, Schottky FEG, $\mathrm{LaB_6}$ TEG で再構成した Wigner 関数のプロファイルである. すべての電子源について, l_{c} の値が大きいほど, ピークに対するフリンジの強度が大きいことが分かる. 逆に空間コヒーレンス長が短くなると, Wigner 関数のフリンジ強度が下がる. これは

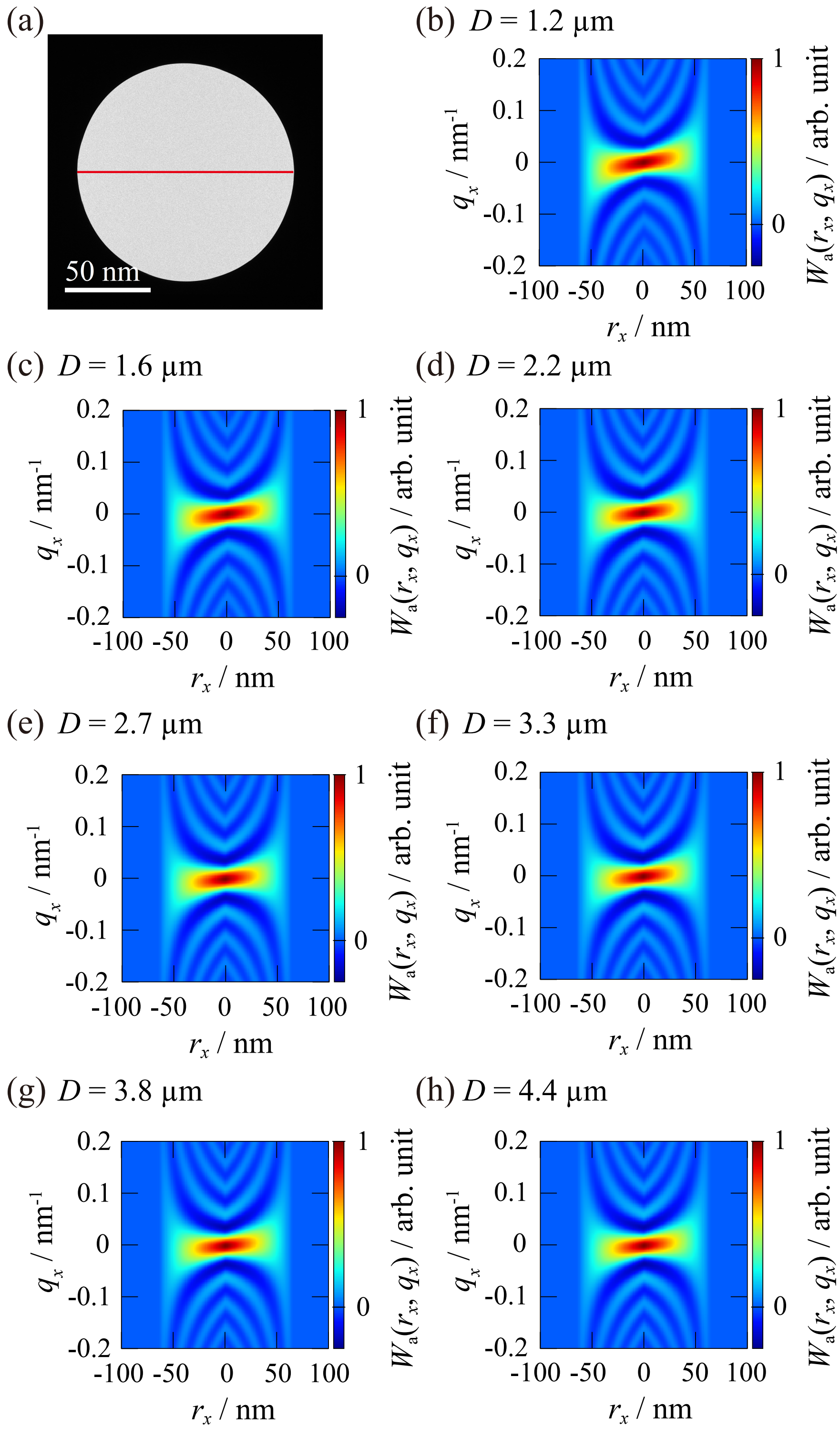

図 4.4　Schottky FEG からの電子ビームで得た Airy パターンに基づいた, Wigner 関数の再構成結果 [78]. (a) 絞り像. 絞り中の実線は実空間の 1 次元基底 r_x を表す. 異なるビーム径 D (空間コヒーレンス長) で再構成した Wigner 関数 $W_a(r_x, q_x)$ (b) $D = 1.2\,\mu$m (l_c = 117 nm) (c) $D = 1.6\,\mu$m (l_c = 142 nm) (d) $D = 2.2\,\mu$m (l_c = 190 nm) (e) $D = 2.7\,\mu$m (l_c = 218 nm) (f) $D = 3.3\,\mu$m (l_c = 264 nm) (g) $D = 3.8\,\mu$m (l_c = 310 nm) (h) $D = 4.4\,\mu$m (l_c = 420 nm).

電子の波動性が消失していくことに対応し, Airy パターンではボケが大きくなることに対応している. さらに空間コヒーレンス長がゼロの極限では, 回折が起きないため, Airy パターンのフリンジおよび Wigner 関数のフリンジは消失する. 結論として, 非古典性を示す Wigner 関数の負の値は, 電子の波動性とその回折現象に起因している.

4.3　状態測定としての応用に関する議論

ここで提案した手法は, 別の言い方をすると, 位相イメージングと呼ばれる手法を改良し, 電子ビームそのものの状態測定へ応用したとも言える. TEM の位相イメージングとして最も一般的な電子線ホログラフィーでも, 電子状態の再構成が原理的には可能である [48, 80]. しかし, レンズ系の限界のため現状では困難であるのは前に述べた通りである. さらに, 仮にバイプリズムを用いたオフアクシスホログラフィーで Wigner 関数を再構成できたとしても, 軸上にバイプリズムがあるため軸上輝度の算出は難しい. 次章で述べる軸上輝度の算出に応用できることも, 本手法の優位性である.

輝度算出以外への応用としては, 本章で述べた密度演算子の再構成手法を, 量子的な相互作用による電子状態変化の計測に応用可能と考えられる. 一般に, 電子が物質を透過する際, プラズモンや表面プラズモン, フォノン, バンド間遷移など何らかの励起を伴いうる. このような過程でエネルギーを失った電子を非弾性散乱電子と呼ぶ. 非弾性散乱電子は, エネルギーを失うこと以外に, コヒーレンスを失うことが知られている [27, 81]. これらの内, プラズモンや表面プラズモンと相互作用した電子のデコヒーレンス測定の提案がある [56]. さらに, プラズモン散乱については, 電子線バイプリズムを用いて相互可干渉度測定の研究ある [75, 82]. しかしながら, 相互可干渉度の減衰距離がバイプリズムの実効径よりもはるかに短いため, 相互可干渉度関数の減衰曲線の全体形状が不明である. いくつかの理論計算による報告によれば [83–85]. プラズモンで非弾性散乱した電子の相互可干渉度は 2–3 nm 程度で急速に減衰するとされている. さらに, 相互可干渉度関数の減衰曲線の形状が Gaussian ではないとされている. 実効径が数 nm の絞りを用いて電子回折を取得し, 非弾性散乱電子をエネルギーフィルターで選択することで, 非弾性散乱電子による Airy パターンを結像させることができる. この強度分布を解析することで, 密度演算子から相互可干渉度関数を求められるだろう. また, 非弾性散乱電子が非古典的な状態にあるかどうかが, Wigner 関数が負の値を含むかに着目することでわかるだろう.

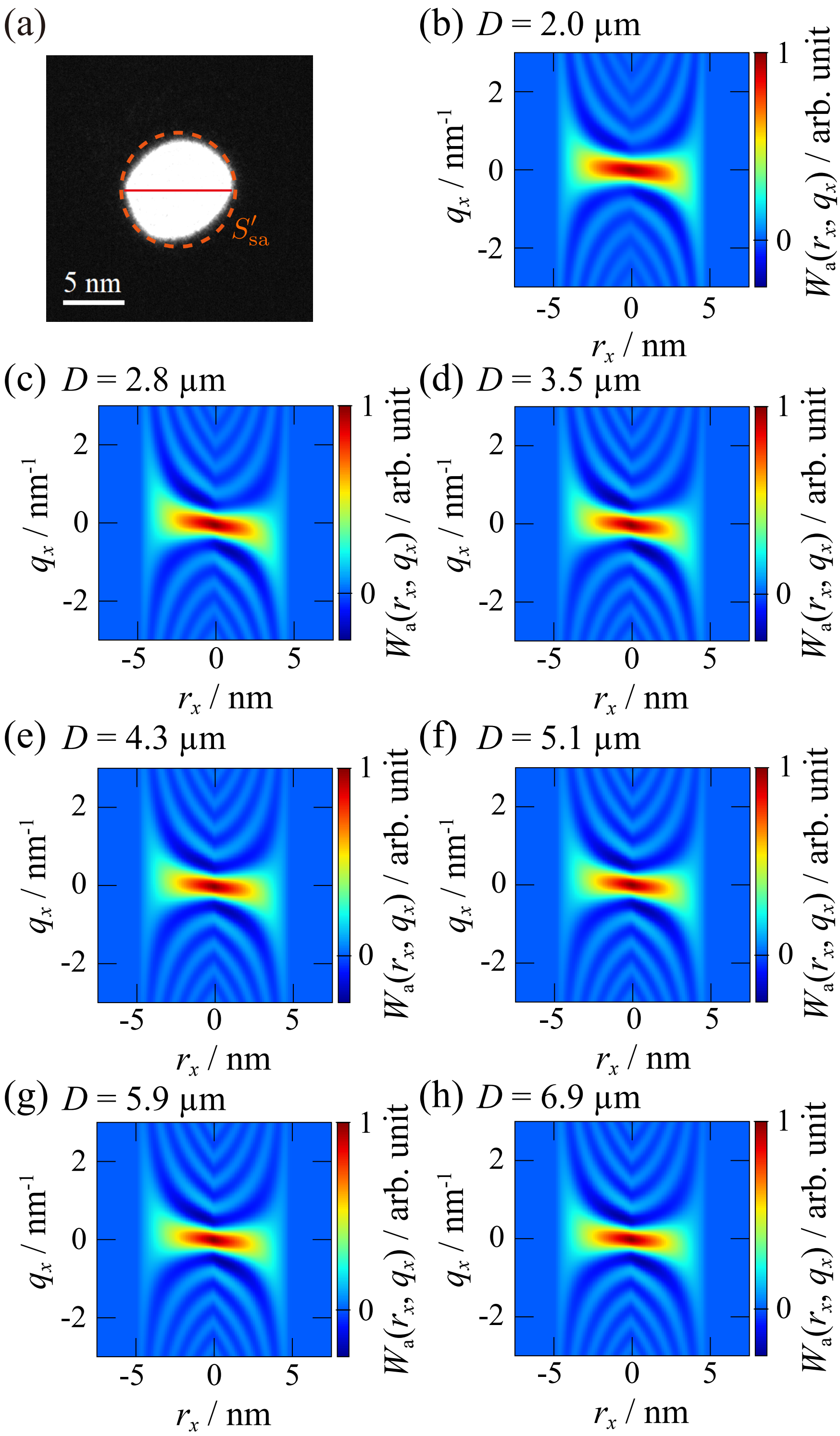

図 4.5　LaB_6 TEG からの電子ビームで得た Airy パターンに基づいた, Wigner 関数の再構成結果. (a) 絞り像. 破線は, 直径が実際の絞りの長軸径に等しい仮想的な絞り S'_a を表す. 異なるビーム径 D (空間コヒーレンス長) で再構成した Wigner 関数 $W_a(r_x, q_x)$ (b) $D = 2.0\,\mu$m ($l_c = 7.8$ nm) (c) $D = 2.8\,\mu$m ($l_c = 9.6$ nm) (d) $D = 3.5\,\mu$m ($l_c = 11$ nm) (e) $D = 4.3\,\mu$m ($l_c = 13$ nm) (f) $D = 17\,\mu$m ($l_c = 264$ nm) (g) $D = 5.9\,\mu$m ($l_c = 18$ nm) (h) $D = 6.9\,\mu$m ($l_c = 19$ nm).

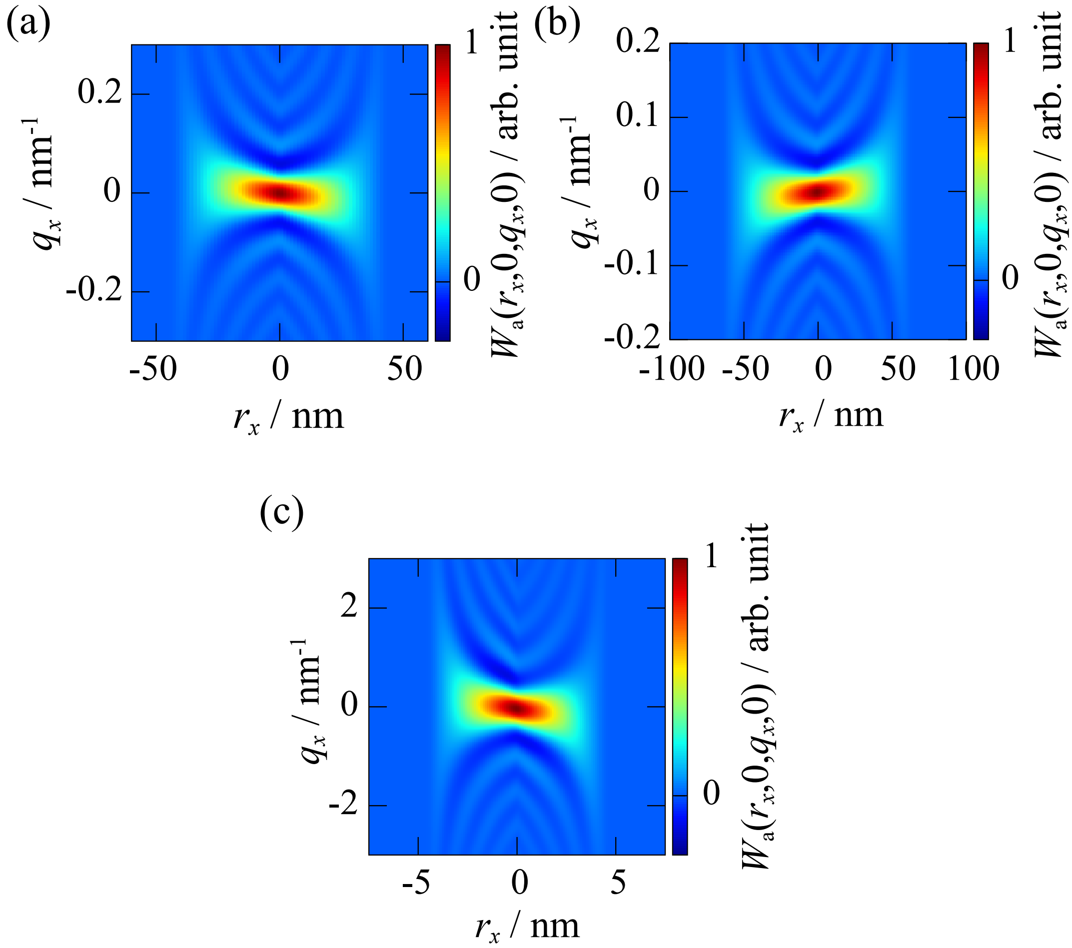

図 4.6　4 次元位相空間内の 2 次元面 $\boldsymbol{r} = (r_x, 0)$, $\boldsymbol{q} = (q_x, 0)$ における Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(r_x, 0, q_x, 0)$. (a) cold FEG スポットサイズ 4, $l_{\mathrm{c}} = 307$ nm, (b) Schottky FEG $l_{\mathrm{c}} = 264$ nm (c) $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃 $l_{\mathrm{c}} = 11$ nm.

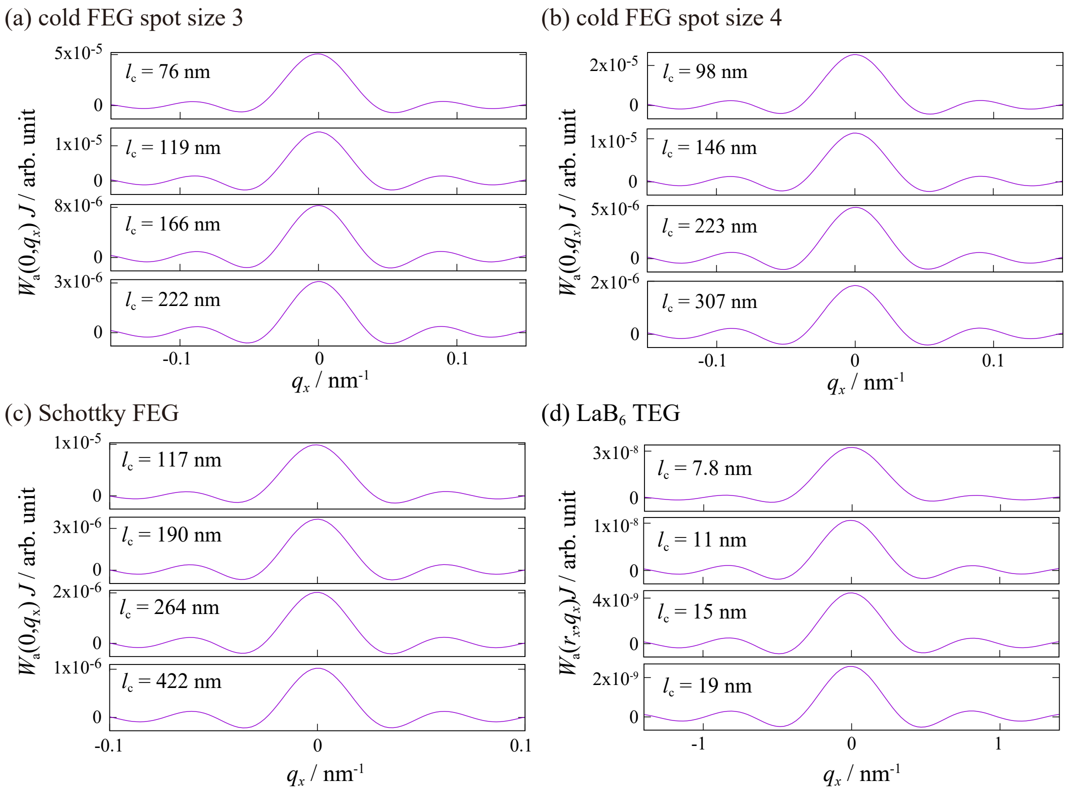

図 4.7　異なる空間コヒーレンス長で再構成した Wigner 関数のプロファイル $W_a(0, q_x)$ の比較. (a) cold FEG スポットサイズ 3 (b) cold FEG スポットサイズ 4 (c) Schottky FEG (d) LaB_6 熱電子銃.

第 5 章

電子源の輝度比較

本章では, Wigner 関数に関する議論を通して, 軸上輝度を算出する. 原理的には, 位相空間原点の電流密度が光軸上を伝搬する電流を表すため, 軸上輝度への換算が可能である. ここでは, まず絞りを電子ビームが透過する系の Wigner 関数から, 軸上輝度の式を導出する. この式を用いて, FEG の軸上輝度を見積る. また LaB_6 熱電子銃については, 電子源の非対称性を考慮し, 計算モデルを修正して軸上輝度を見積る. また従来の測定法に基づいた平均輝度の見積と比較するため, Schottky FEG についてその測定結果についても述べる.

5.1 従来の輝度測定における問題

一般に, 輝度と呼ばれる物理量は 2 種類あり, 第 2.3.1 節で述べたように, 平均輝度と軸上輝度である. 通常, 単に ‘輝度’ と呼ぶと平均輝度を指すことが多く, これまで報告されているほとんどの輝度測定は, 平均輝度測定を意味している. 平均輝度の測定には, 図 2.7 に示すように, 照射面積におけるビームの角度分布を求める必要がある. 平均輝度の測定にはいくつかの種類があるが, ほとんどすべての手法は幾何光学的な測定である [34, 36, 37]. これはおそらく, ビームの角度分布を正確に測定することが難しいため, 角度分布を絞りを使って幾何光学的に算出することで代用していると考えられる.

平均輝度測定を位相空間で考えると, 図 2.4 に示すような分布に対して, ある範囲で平均電流密度を測定することに対応する. 位相空間分布が一様である場合, 平均輝度と軸上輝度は一致するが, 現実には電流分布は一様ではない. そのため平均輝度は輝度としては過小評価される傾向がある [86]. 平均輝度測定における問題は, 第 2.3.1 節で述べたように, 平均の範囲が絞りサイズやレンズ条件などに依存し, 装置や測定条件に依存することに起因して, 輝度測定に正確度および精度がないことである. このような問題に対して, Wigner 関数の再構成によって求めた位相空間分布から, 正確な軸上輝度の算出を行う.

5.2　Wigner 関数と軸上輝度の関係

輝度は光軸上の微小立体角, 微小面積内の電流で定義される. したがって, 軸上輝度は直観的には, 光軸上を横向きの運動量なく伝搬する電流に対応する. 位相空間の原点の値を表す $W(\mathbf{0},\mathbf{0})$ がその電子を表す. Wigner 関数が擬確率分布であるから, 軸上輝度は, 位相空間の全電流 J を用いて

$$B_0 = W(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J \tag{5.1}$$

と書ける [38]. ここで波数は, 単位を逆空間の nm^{-2} から sr^{-1} へ変換するためにかけている. しかしながら, 第 4 章で再構成した Wigner 関数 $W_{\mathrm{a}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{q})$ は, 絞りを含む回折場から再構成したため, 式 5.1 と同様の関係が直接成立しない, $B_0 \neq W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J$. 以下では, このことと, 測定値である $W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0})$ と $W(\mathbf{0},\mathbf{0})$ の関係について議論し, 軸上輝度を求める方法を述べる.

5.2.1　FEG の軸上輝度算出

Wigner 関数の原点の値 $W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0})$ は, 式 4.14 から

$$W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0}) = \frac{1}{(2\pi)^2 N_e}\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\ \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\left[X(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})-X(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})\right]}\gamma\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2},-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)a\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\xi\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)a\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\xi\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \tag{5.2}$$

と書ける. ここで, 以下の 2 つの近似を適用することで, 式 5.2 の計算を進める.

1. 絞り内の波動場の振幅が一様である.
2. 収差による位相分布が, 光軸に対して偶数回転対称である.

1 点目の近似は, 試料面の絞りを照射し Airy パターンを結像させるような場合, つまりほとんど平行照射のような場合には比較的よい近似で成り立っている. 実際に振幅がほとんど一様であることは, Airy パターンのフィッティング計算の結果からも確認できる. 図 5.1(a) は, cold FEG のスポットサイズ 3, ビーム径 $D = 2.9\,\mu\mathrm{m}$ の Airy パターンのフィッティング計算結果から得た絞り内の波動場の振幅分布である. 絞り内で振幅の傾斜による不均一性はせいぜい 2% 程度であるから振幅を一様と近似し,

$$\xi\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\xi\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \simeq \xi_{\mathrm{ave}}^2 \tag{5.3}$$

と平均振幅 ξ_{ave} で置き換える.

2 点目の近似, 位相分布が光軸に対して偶数回転対称な場合,

$$\mathrm{e}^{-\mathrm{i}k\left[X(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})-X(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2})\right]} \simeq 1 \tag{5.4}$$

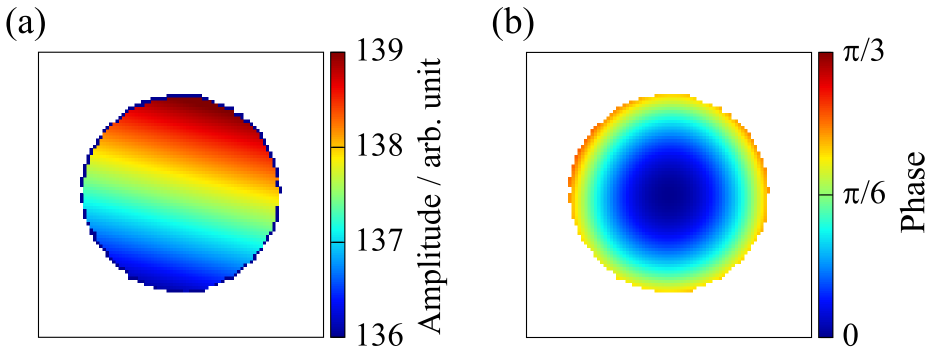

図 5.1　cold FEG のスポットサイズ 3, ビーム径 $D = 2.9\,\mu$m の Airy パターンのフィッティング計算結果から得た絞り内の波動場の (a) 振幅分布 および (b) 位相分布.

が成り立つ. 一般に TEM に使用される磁界レンズでは, 収差の主な要因がデフォーカス, 球面収差, および 2 回の非点収差であることが知られている [72]. 前者の 2 つは, 光軸に対して任意の角度の回転対称性, 後者は 2 回の回転対称性を有する [72]. 図 5.1(b) は, 先と同じ cold FEG の Airy パターンのフィッティング計算結果から得た波動場の位相分布である. ほとんど回転対称な位相分布であり, 式 5.4 の近似は十分成り立っていると考えられる. これらの 2 つの近似のもとで, 式 5.2 は

$$W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0}) \simeq \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2}{(2\pi)^2 N_e}\iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\,\gamma\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2},\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)a\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)a\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \tag{5.5}$$

となる. さらに図 4.2(a) に示すように, 絞りがほとんど円形であるから, $a(\boldsymbol{\mu}/2) = a(-\boldsymbol{\mu}/2)$ が成り立つ. FEG の場合には, 電子源強度分布が Gaussian 分布であることから, そのフーリエ変換である空間コヒーレンス関数も Gaussian 分布となる. 距離 $\boldsymbol{\mu}/2 - (-\boldsymbol{\mu}/2) = \boldsymbol{\mu}$ 離れた空間コヒーレンス関数の標準偏差が l_{c} であるから,

$$\gamma\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2},-\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) = \exp\left(-\frac{\mu^2}{2l_{\mathrm{c}}^2}\right) \tag{5.6}$$

とかける. ここで, $\mu = |\boldsymbol{\mu}|$ である. したがって, 式 5.5 は, Gaussian 分布を絞りの範囲まで積分することを意味する. $(\mu/2)$ に対する積分範囲が絞り半径 $d_{\mathrm{a}}/2$ であることに注意し, 位相空間原点の電流は

$$\begin{aligned}W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2J &\simeq \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J}{(2\pi)^2 N_e}\iint_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\,\exp\left(-\frac{\mu^2}{2l_{\mathrm{c}}^2}\right)a\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right)\\ &= \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J}{\pi^2 N_e}2\pi\int_0^{d_{\mathrm{a}}/2}\mathrm{d}\left(\frac{\mu}{2}\right)\frac{\mu}{2}\exp\left(-\frac{2(\mu/2)^2}{l_{\mathrm{c}}^2}\right)\\ &= \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J l_{\mathrm{c}}^2}{2\pi N_e}\left(1-\exp\left(-\frac{d_{\mathrm{a}}^2}{2l_{\mathrm{c}}^2}\right)\right)\end{aligned} \tag{5.7}$$

と計算できる．式 5.7 は, コヒーレンス長が絞り径に対して十分小さい時, つまり, $l_\mathrm{c}/d_\mathrm{a}$ がゼロに近づいていくと, $\xi_\mathrm{ave}^2 k^2 J l_\mathrm{c}^2/2\pi N_e$ に収束する．この収束値が $W(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J$, つまり軸上輝度 B_0 に等しいことは, 次のことから簡単にわかる．式 5.5 は空間コヒーレンス関数を絞り径まで積分することを意味している．コヒーレンス長が絞り径より十分短い極限, もしくは, 絞りが存在しない系では, 空間コヒーレンス関数の全体の積分になるため, $W_\mathrm{a}(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J$ は $W(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2 J$ に等しくなる．したがって, 軸上輝度は式 5.7 の収束値に等しく,

$$
\begin{aligned}
B_0 &= \frac{\xi_\mathrm{ave}^2 k^2 J l_\mathrm{c}^2}{2\pi N_e} \\
&= \frac{k^2 J l_\mathrm{c}^2}{2\pi S_\mathrm{a}} \\
&= \frac{k^2 j l_\mathrm{c}^2}{2\pi}
\end{aligned} \tag{5.8}
$$

となる．ここで, $\xi_\mathrm{ave}^2 S_\mathrm{a} = N_e$ であることを用いた．図 3.16 に示した FEG の j と l_c の組を式 5.8 に代入し, 軸上輝度を見積ることができる．最終的な軸上輝度を, 異なる l_c で求めた軸上輝度に対して, それぞれの l_c の測定誤差を考慮した重み付き平均をとって見積る．l_c の測定誤差から, 軸上輝度への誤差伝搬は

$$
\begin{aligned}
\Delta B_0 &= \sqrt{\left(\frac{\mathrm{d}B_0}{\mathrm{d}l_\mathrm{c}}\right)^2 \Delta l_\mathrm{c}^2} \\
&= \frac{k^2 j l_\mathrm{c}}{\pi}\Delta l_\mathrm{c}
\end{aligned} \tag{5.9}
$$

と計算できる．異なる l_c で見積ったデータに対する重みを $w = (\Delta B_0)^{-2}$ とし, 軸上輝度の重み付き平均 $\bar{B}_0$ および重み付きの標準偏差 σ_weight を

$$
\bar{B}_0 = \frac{\displaystyle\sum_\mathrm{k}^{n} w_\mathrm{k} B_{0\mathrm{k}}}{\displaystyle\sum_\mathrm{k}^{n} w_\mathrm{k}}, \tag{5.10}
$$

$$
\sigma_\mathrm{weight} = \sqrt{\frac{\displaystyle\sum_\mathrm{k}^{n} w_\mathrm{k}(B_{0\mathrm{k}} - \bar{B}_0)^2}{(n-1)\displaystyle\sum_\mathrm{k}^{n} w_\mathrm{k}}} \tag{5.11}
$$

で求める．ここで, $B_{0\mathrm{k}}$ は各 l_c における軸上輝度, n は標本数を表す．cold FEG および Schottky FEG について, それぞれ最終的な軸上輝度を $(7.2 \pm 0.6) \times 10^{12}\,\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$, $(2.5 \pm 0.1) \times 10^{12}\,\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$ と見積った．図 5.2 に, cold FEG と Schottky FEG について,

式 5.2 で求めた位相空間原点の電流密度 $W_a(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2J$ の測定結果と, 決定した B_0 の値による式 5.7 の曲線を示している. 測定点に対して, 曲線がよくあっていることは式 5.7 および 5.8 の正しさを示している.

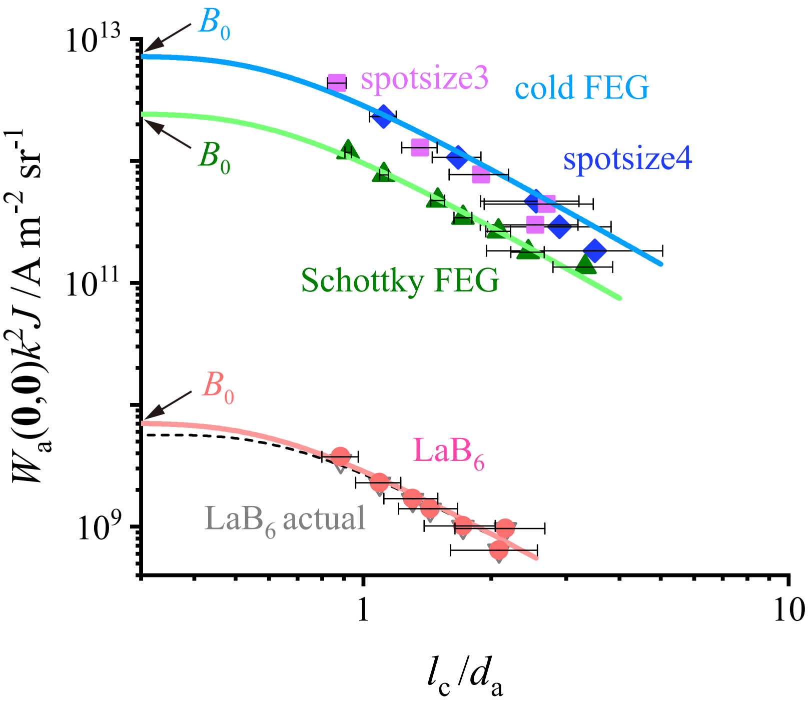

図 5.2　位相空間原点の電流密度と l_c/d_a の関係. l_c はコヒーレンス長, d_a は絞り直径である. cold FEG および Schottky FEG の測定データに対する実線の曲線は式 5.7 で描かれている. LaB_6 熱電子銃のデータに対する実線の曲線は式 5.12, 点線の曲線は式 5.13 で描かれている. 実線の曲線の $l_c/d_a \ll 1$ における値が軸上輝度に対応する.

5.2.2　LaB_6 熱電子銃の軸上輝度算出

LaB_6 熱電子銃の場合, FEG と異なる点は, 図 3.3 に示したように電子源の強度分布が非対称であること, および楕円の絞りを使用していることの 2 点である. これらは, FEG について式 5.7 を計算する上で前提とした Gaussian の強度分布および, ほぼ真円の絞りが使えないため, 式 5.7 を LaB_6 熱電子銃に適用することはできない. 式 5.2 に戻り, LaB_6 熱電子銃に適用可能なモデルを考える.

絞り形状については第 4.2 節と同様に, 図 4.5(a) で示した仮想的な真円の絞り関数 $a'(\boldsymbol{\mu}/2)$ を用い, Airy パターンのフィッティング計算から求めた $\xi(\boldsymbol{r})$, $X(\boldsymbol{r})$ をその範囲まで外挿する. 第 3.1.3 節で述べたように, 電子源強度分布の非対称性は, フィラメントの傾き, ガンコイルのアライメントずれ, およびそれらの経時変化に起因するため, フィラメン

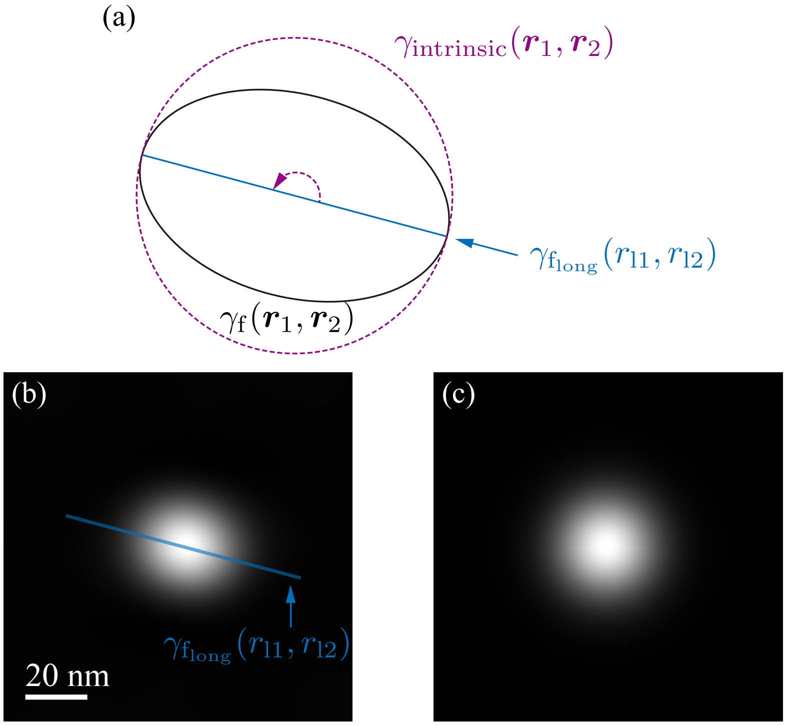

図 5.3　電子源の性質を表す空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の構成．(a) $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の角度プロファイルは，非対称な空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の長軸 $\gamma_{\mathrm{f_{long}}}(r_{11}, r_{12})$ のプロファイルに等しいように構成する．r_{11}, r_{12} は，空間コヒーレンス関数の長軸に沿った座標を表す．(b) フィラメント像をフーリエ変換して得た空間コヒーレンス関数の例 (c) 実際に (b) の長軸に沿った $\gamma_{\mathrm{f_{long}}}(r_{11}, r_{12})$ から構成した $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$.

ト像の短軸が電子源そのものの性質を反映している．空間コヒーレンス関数はフィラメント像のフーリエ変換 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) = \mathcal{F}[S_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{q})]$ であるから，空間コヒーレンス関数の長軸が電子源の性質を反映している．アライメントのずれなどの影響を取り除いて，電子源のそのものの性質を反映した軸上輝度を見積るため，空間コヒーレンス関数の長軸 $\gamma_{\mathrm{f_{long}}}(r_{11}, r_{12})$ から回転対称な空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ を構成する．図 5.3(a) にその構成法を示しており，$\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ の任意の角度プロファイルが $\gamma_{\mathrm{f_{long}}}(r_{11}, r_{12})$ となるようにとる．図 5.3(b) および (c) は，それぞれ，非対称な空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ とその長軸から構成した空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$ である．空間コヒーレンス関数と絞り関数を修正し，位相空間原点の電流は，

$$W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0}, \mathbf{0}) k^2 J' = \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J'}{(2\pi)^2 N_e'} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\ \gamma_{\mathrm{intrinsic}}\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}, -\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) a'\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \tag{5.12}$$

となる．ここで，J', N_e' は，仮想的な絞り S_{a}' 内の電流および電子数である．これらは外挿し

た波動場の振幅から求められる．また絞り関数について, $a'(\boldsymbol{\mu}/2) = a'(-\boldsymbol{\mu}/2)$ が成り立つことを用いた．また FEG の場合と同様に, 波動場の振幅を平均に置き換え, 位相分布に関する近似 $\mathrm{e}^{-\mathrm{i}k[X(\boldsymbol{\mu}/2)-X(-\boldsymbol{\mu}/2)]} \simeq 1$ も用いた．

式 5.12 は, FEG の場合の式 5.7 と同様に, $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ の標準偏差である l_{c} と, 積分範囲を決める絞り関数 $a'(\boldsymbol{\mu}/2)$ の直径 d_{a} に対する依存性を持つ．式 5.7 と同様に, 式 5.12 も $l_{\mathrm{c}}/d_{\mathrm{a}} \ll 1$ の領域では, 絞りに対して空間コヒーレンス関数の拡がりが十分狭くなるため, 空間コヒーレンス関数全体を積分することと等価になる．そのため, $l_{\mathrm{c}}/d_{\mathrm{a}}$ がゼロに近づくと, 式 5.12 も軸上輝度に収束する．

図 5.2 中の紫丸が, $\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃について, 式 5.2 内の $\gamma(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ を $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ で, 絞り関数を $a'(\boldsymbol{\mu}/2)$ で置き換えて計算した $W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0}, \mathbf{0})k^2 J$ の測定結果である．この測定値は, 表 3.3 および図 3.16 に示すエミッション電流の変化の補正をしている．1 点のデータに対して, 式 5.12 の曲線を決定し, 収束値である縦軸との交点から軸上輝度を求めることが可能である．複数のデータに対する, 平均をとる操作として, 式 5.12 の係数 $\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J'/(2\pi)^2 N_e' = k^2 j/(2\pi)^2$ をパラメータとし, フィッティング計算を行う．フィッティング計算時に, l_{c} に対する測定誤差を考慮するため, 各点に対して式 5.9 で見積った重み $(\Delta B_0)^{-2}$ をつけた．図 5.2 中の紫の実線がその結果であり, 軸上輝度を $(7.0 \pm 0.4) \times 10^9\ \mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$ と見積った．

3 種類の電子源について見積った軸上輝度の値と, いくつかの文献から抜粋した平均輝度の値 [1, 2, 7] を表 5.1 に示す．また, 加速電圧で割った換算輝度の値も表 5.1 に示している．換算輝度は加速電圧に依存しない値で, SEM 分野でよく用いられる．cold FEG の不確かさが Schottky FEG に比べて大きい原因は, エミッション電流の不安定性が原因だと考えられる．一般に, cold FEG は表面に敏感なことから, エミッションが不安定であることが知られている [2]. 真空技術の向上により, 近年は改善されつつあるが, Schottky FEG ほどの安定性はない．

一般に言及されている平均輝度は, 文献によって異なる．さきに述べた平均輝度測定に正確性がないことに加え, 個別の電子源に依存する点があることがその原因だと考えられる．一般に, FEG の輝度はチップ先端形状 [37] や引き出し電圧 [87], 他にもアノード電圧に依存すると考えられる．$\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃についてもフィラメントの先端形状や真空度に依存し [88], 他にもウェーネルトバイアスに依存すると考えられる．$\mathrm{LaB_6}$ 熱電子銃の測定結果が, 平均輝度の値と比較し低い原因は, このような電子銃の駆動条件や真空環境によって, 実際に輝度が低かったと考えられる．このようなことから, 平均輝度の値と詳しく比較することに意義はないが, 大きな解離がないことは確認できる．本手法の優位性は, 個別の電子源に対して, 精度および確度よく軸上輝度を決定できる点である．

表 5.1　加速電圧 200 kV で測定した軸上輝度 B_0 と, 文献から抜粋した FEG の平均輝度 $\bar{B}$ の値 [1, 2, 7] および LaB_6 熱電子銃の平均輝度の値 [1, 7]. それぞれを加速電圧で割った換算輝度 $B_{r0} = B_0/200$ kV, および $\bar{B}_r = \bar{B}/200$ kV も示している.

	$B_0/\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$	$\bar{B}/\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$	$B_{r0}/\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}\,V^{-1}$	$\bar{B}_r/\mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}\,V^{-1}$
cold FEG	$(7.2\pm0.6)\times10^{12}$	$(2-20)\times10^{12}$	$(3.6\pm0.3)\times10^{7}$	$(1-10)\times10^{7}$
Schottky FEG	$(2.5\pm0.1)\times10^{12}$	$(2-10)\times10^{12}$	$(1.3\pm0.1)\times10^{7}$	$(1-5)\times10^{7}$
LaB_6 TEG	$(7.0\pm0.4)\times10^{9}$	$(2-10)\times10^{10}$	$(3.5\pm0.2)\times10^{4}$	$(1-5)\times10^{5}$

5.3 考察

5.3.1 熱電子銃の実使用下の軸上輝度

LaB_6 熱電子銃について, 軸上輝度の見積りに電子源の性質を示す対称な空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ を用いた. 式 5.12 で, $\gamma_{\mathrm{intrinsic}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ の代わりに非対称な空間コヒーレンス関数 $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ を用い

$$W_{\mathrm{a}}(\mathbf{0},\mathbf{0})k^2J' = \frac{\xi_{\mathrm{ave}}^2 k^2 J'}{(2\pi)^2 N_e'} \iint_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}^2\boldsymbol{\mu}\ \gamma_{\mathrm{f}}\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}, -\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) a'\left(\frac{\boldsymbol{\mu}}{2}\right) \tag{5.13}$$

で軸上輝度を算出すると, 実際の使用条件下における軸上輝度の見積が可能である. 式 5.2 内の $\gamma(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ を $\gamma_{\mathrm{f}}(\boldsymbol{\mu}/2, -\boldsymbol{\mu}/2)$ で, 絞り関数を $a'(\boldsymbol{\mu}/2)$ で置き換えて計算した, 位相空間原点の電流密度の測定結果と, 式 5.13 によるフィッティング曲線を, それぞれ図 5.2 内のグレーの三角と点線で示している. フィッティング曲線と縦軸との交点から減少した輝度は, $(6.0 \pm 0.2) \times 10^9\ \mathrm{A\,m^{-2}\,sr^{-1}}$ と見積もった. このことは, フィラメントの傾斜やミスアライメントによって, ミスアライメントがない理想的な駆動条件と比較して少なくとも輝度は 15% 程度低下することを意味する. 実際には, エミッション電流の変化があるため, これ以上の減少幅と予測される.

5.3.2 平均輝度測定との比較

絞りを用いた平均輝度測定の一つは, 図 5.4(a) に示すような光学系で実施される. この手法では, 試料面にビームを集束させ, 試料面のビームの集光径と角度分布とを別々に測定する. ビームの角度分布は CL2 レンズ面にある絞り (CL 絞り) の直径で決まり, 開き角 α に等しくなる. 実際の TEM では, CL 絞りは CL2 の直下にあることがほとんどであるが, 開き角が絞りで決まることに変わりはない.

試料面におけるビーム半径 r は, 試料面に集束したビームをカメラで撮影し, 半値幅を測

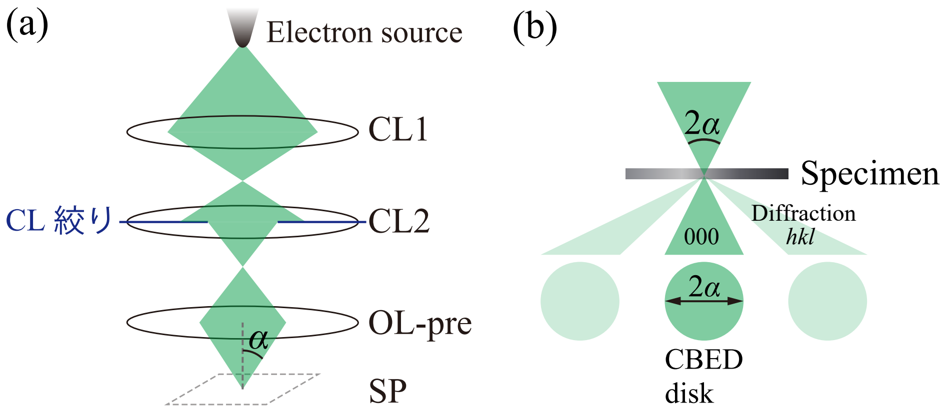

図 5.4　平均輝度測定の系. (a) 試料面より上の TEM 光学系. (b) 収束電子回折と開き角の関係. ディスク径が開き角と一致する.

定する. 図 5.5(a) は, Schottky FEG で撮影した収束したビームの測定例である. 開き角は, 試料面に単結晶試料をおき収束電子回折 (Convergent beam electron diffraction, CBED) の測定から決定できる. これは, 図 5.4(b) に示すように, CBED ディスク径が開き角と一致することから, 回折波の散乱ベクトルを用いて逆空間を校正し開き角を算出できる. さらに, ビーム電流 ΔJ を Faraday カップで測定し, 平均輝度は

$$\bar{B} = \frac{\Delta J}{\pi r^2 \pi \alpha^2} \tag{5.14}$$

で求めることができる.

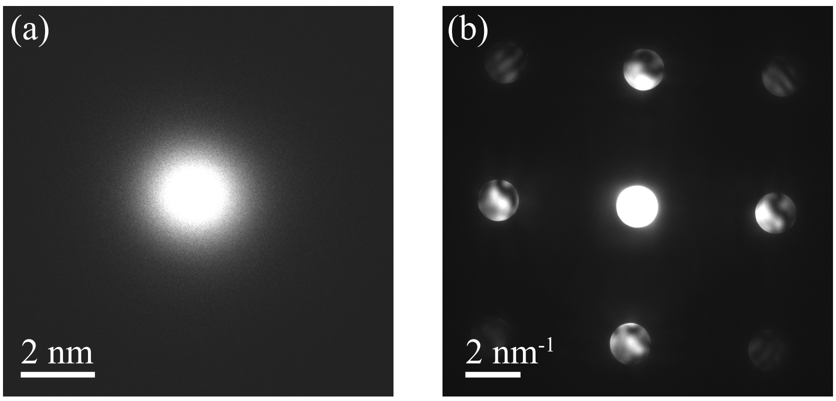

図 5.5　平均輝度測定. (a) 試料面に形成したクロスオーバー. (b) Si(100) の収束電子回折 (CBED) パターン. クロスオーバーの半値幅 r と, CBED ディスクからビームの開き角 α を測定.

図 5.5(a), (b) は, Schottky FEG について平均輝度測定を実施した結果で, 収束したビームと Si(100) の CBED である. CL 絞りを 20 μm に固定し, スポットサイズを変えて同様の測定を実施した. 各スポットサイズにおける平均輝度の測定結果を表 5.2 にまとめた. スポットサイズによって, 得られた値は最大で倍程度異なっており, 測定に精度がないことを示している. また, 平均輝度値が軸上輝度を上回っているのは, ΔJ にビームの半値幅 r の範囲外の電流の寄与も含めているためである. つまりエミッタンスの範囲の取り方と, 電流測定の範囲が一致していない. このことは, 測定の正確度が低いことを示している.

表 5.2　平均輝度の測定の結果.

Spot size	$\bar{B}$/A m^{-2} sr^{-1}
1	1.3×10^{13}
2	1.1×10^{13}
3	8.7×10^{12}
4	7.7×10^{12}
5	6.2×10^{12}

異なる平均輝度の求め方として, 式 5.8 と同様に, ビームに関する物理量で表す方法が考えられる. 平均輝度が $\bar{B} = \Delta J/\Delta S\,\Delta\Omega$ であるから, $\Delta S\,\Delta\Omega$ を他の物理量で表せればよい. Airy パターンの測定系で考えると, ビームの実空間の面積は絞り面積に等しいので, $\Delta S = \pi(d_\mathrm{a}/2)^2$ としてよい. 立体角の拡がりは, ビームの角度拡がりを $\Delta\alpha$ とおくと

$$\begin{aligned}\Delta\Omega &= \pi(\Delta\alpha)^2 \\ &= \pi\left(\frac{\Delta q\lambda}{2\pi}\right)^2 \end{aligned} \tag{5.15}$$

とかける. ここで, Δq はビームの波数 (逆) 空間における拡がりを表す. Δq を波面湾曲の影響 Δq_wc と, 部分コヒーレンスによる影響 Δq_c に分け, $\Delta q = \Delta q_\mathrm{c} + \Delta q_\mathrm{wc}$ とかく. Airy パターンの測定では, 軸上の狭い領域に SA 絞りを挿入し, 絞りを平行照射に近い条件で照明しているため, 波面湾曲を無視し, $\Delta q \simeq \Delta q_\mathrm{c} = 1/l_\mathrm{c}$ と近似する. $\Delta S\,\Delta\Omega$ は,

$$\begin{aligned}\Delta S\,\Delta\Omega &\simeq \pi\left(\frac{d_\mathrm{a}}{2}\right)^2 \pi\left(\frac{\lambda}{2\pi l_\mathrm{c}}\right)^2 \\ &= \frac{d_\mathrm{a}^2\lambda^2}{16 l_\mathrm{c}^2} \end{aligned} \tag{5.16}$$

と近似できる．したがって, 平均輝度は

$$
\begin{aligned}
\bar{B} &= \frac{\Delta J}{\Delta S\,\Delta\Omega} \\
&\simeq \frac{16\Delta J l_{\mathrm{c}}^2}{d_{\mathrm{a}}^2 \lambda^2} \\
&= 4\pi j \frac{l_{\mathrm{c}}^2}{\lambda^2}
\end{aligned}
\tag{5.17}
$$

となる．ここで, $j = \Delta J/\pi(d_{\mathrm{a}}/2)^2$ が成り立つことを用いた．同様の式は別の方法でも導かれている [35]. この式は, 式 5.8 と比較して 2 倍大きいが, その原因は, 実空間の電流密度 j に波数 (逆) 空間の拡がり Δk の範囲外からの寄与も含むためである．この近似や, 先に述べた CBED の手法でも, 実空間もしくは, 角度空間のいずれかに絞りを使用すると, 他方の空間では Gaussian のような分布に対して半値幅や標準偏差などを代表値として計算に用いる．このような手法を用いると, 平均輝度を正しく算出するには分布の範囲外にある電流を取り除く補正をしない限り, 値が大きくなる傾向がある．

第 6 章

まとめと展望

本研究では, 電子ビームのコヒーレンスおよび電子源輝度の精密測定法を開発した. 開発した手法を cold FEG, Shottky FEG, LaB_6 熱電子銃に適用し, 3 種類の電子源を比較した. 以下では得られた成果をまとめる.

第 2 章では, 電子ビームの特性を表すコヒーレンスの定義について述べ, 位相空間分布である Wigner 関数と電子源性能を示す輝度との関係について述べた. さらに測定する cold FEG, Shottky FEG, LaB_6 熱電子銃について, コヒーレンスと輝度の違いを, それらの電子放出機構の違いから定性的に述べた.

第 3 章では, 電子ビームの空間コヒーレンス測定について述べた. FEG に適用した手法を改良し, LaB_6 熱電子銃からの電子ビームの空間コヒーレンスを定量評価した. 空間コヒーレンス評価として一般的な電子線バイプリズムを用いる手法と比較し, コヒーレンス長がバイプリズムの実効径よりも短い, もしくは同程度である場合には干渉縞が得られないため, 空間コヒーレンスに劣る熱電子ビームでは本手法に優位性があることを述べた. また FEG と比較し, 試料面の電流密度を同程度にした時, コヒーレンスが 1 桁半異なることを初めて定量的に示した.

第 4 章では, 電子ビームの Wigner 関数再構成について述べた. 第 3 章で述べたコヒーレンス測定を応用して, 電子の状態を記述する密度演算子および, Wigner 関数の再構成法を提案した. 3 種類の電子源から生成した電子ビームの Wigner 関数を再構成し比較した. ビームの電子状態の測定法として, 密度演算子を用いて, デコヒーレンス測定など量子測定への応用が可能なことを述べた.

第 5 章では, Wigner 関数を用いた軸上輝度の算出について述べた. Wigner 関数を用いた考察から, 軸上輝度を電子ビームの物理量で表す式を導出した. 直接測定ができない軸上輝度をコヒーレンス長および電流密度で表したことによって, 軸上輝度を求めることが可能になった. cold FEG および Schottky FEG に適用し, 軸上輝度を求めた. LaB_6 熱電

子銃に適用するため, 計算モデルを修正し, 軸上輝度を求めた.

開発した手法の直接的な意義は, コヒーレンスだけでなく軸上輝度を同時に, かつ正確に測定できることである. 原理的には, ある 1 点のコヒーレンス長を測定すれば, 軸上輝度を求めることが可能である. この手法を用いて, フォトカソードや新しい FEG チップ [10–15] など, 新しい電子源に対して軸上輝度の定量測定が可能である. 正確な測定によって, パラメータの最適化により電子源の性能向上が期待される. また, 既存の電子源についても, 経時劣化による性能のモニタリングなどの応用が期待できる. 真空度や引き出し電圧, チップ形状などの駆動条件を変え, 劣化スピードなどの違いが明らかになればより高性能な電子源の開発に役立つだろう.

様々な電子源の中でもフォトカソードは高輝度化が望まれている. これは, 量子効率が低くビーム電流が低いことが応用上の課題になっていることが多いためである. 実際, 取得画像が多くなる時間分解計測では, その測定時間は極めて長くなる傾向がある. さらに, 量子効率のよいフォトカソードの実現は, 電子顕微鏡分野で研究されていた計測手法と組み合わせ, 様々な時間分解計測を可能にする. 例えば, 本研究で用いたコヒーレンス評価法を応用して, 電子回折位相イメージングが可能である [30–33]. 位相イメージングは, 微視的な電磁場分布の計測に有用な手法である. FEG では, 電子線ホログラフィーや回折位相イメージングといった位相イメージングが一般的に用いられているが, フォトカソードから生成したパルス電子を用いた時間分解位相イメージングは実現されていない. パルス電子で実現できれば, 微視的な電磁場の時間分解計測が可能となり, 新しい計測手法となりうる. 一部のフォトカソードで, 電子線ホログラフィーが試されているが, 電子ビームの電流量が低いことから, 長時間露光が必要になることが課題になっている [89].

現在使われているフォトカソードの中で, 最も量子効率がよく十分なビーム電流を生成できるのは, 表面にセシウムをつけることで負の電子親和力を実現したガリウム砒素および窒化ガリウムの半導体フォトカソード [18, 24] である. 従来の金属や LaB_6 の量子効率が 10^{-5} のオーダーであるのに対し, これらの半導体フォトカソードは 0.01–0.1 程度と数桁高い [18, 24]. 実際に, 半導体フォトカソードを用いて電子線ホログラフィーによるコヒーレンス評価も実現されている [90]. これらの半導体フォトカソード [24, 25, 90] に本手法を適用することで, 電子回折位相イメージングが実現できるだろう. 一方で, これらの半導体フォトカソードは表面状態に敏感という特徴があることから, 超高真空環境を必要とする. セシウムの蒸着機構も必要とするため, 通常の TEM にそのままこれらのフォトカソードを取り付けることは容易ではない. 量子効率がよく, 取扱いが容易なフォトカソードの開発が望まれる.

最後に, 異なる手法による Wigner 関数の再構成について検討し, 本研究の締めくくりとする. 本手法では, Airy パターンの強度分布を解析することで, 電子の波動場を決定し,

Wigner 関数を再構成した．この手法で重要なことは, 失われた波動の位相情報とコヒーレンスを逆空間の強度解析から再現している点である．波動場の位相情報の回復には, 何らかの反復計算によって求める手続きが一般的である．計算手続きの煩雑性を考慮すると, 強度測定から直接 Wigner 関数を再構成することができれば, より簡便に測定が実施できる．このアプローチが位相空間トモグラフィー [45] である．仮に位相空間トモグラフィーが実現できれば, Airy パターンのフィッティング計算なく, Wigner 関数が求めれれる．さらに位相回復の反復計算なく, Wigner 関数から実空間の波動場が求められるというメリットがある．レンズ系の問題から位相空間トモグラフィーは電子線ホログラフィーでは不可能とされた [48]．一方で, Airy パターンの結像には, 絞りにビームを照射するだけであり, 電子線ホログラフィーよりもフォーカスの調整範囲が広く十分なフォーカスシリーズ像を撮影できる可能性がある．

謝辞

本研究を進めるうえで, 多くの方のご協力を頂きました. この場を借りて心よりお礼申し上げます.

大阪大学 超高圧電子顕微鏡センター 山﨑 順 教授には, 指導教員として直接ご指導ご鞭撻をいただきました. 本研究を遂行するにあたり, 実験や電子顕微鏡の結像理論に関する助言をいただきました. また, 実験結果に関する考察や議論, 論文の執筆などを通して, 大変多くのことを学ぶことできました. ここに深く感謝いたします.

大阪大学 工学研究科 片山 竜二 教授および小島 一信 教授には, 下見委員として研究内容だけでなく, 研究成果のまとめ方ついても多くの助言をいただきました. 深く感謝いたします.

大阪大学 超高圧電子顕微鏡センター 佐藤 和久 准教授, 西 竜二 特任教授, 市川 聡 特任教授, 坂田 孝夫 博士には, 超高圧電子顕微鏡センターに着任以降, 電子顕微鏡の使い方から試料作製方法など様々なことを教えていただきました. 深く感謝いたします.

大阪大学 基礎工学研究科 中田 陽介 准教授には, 研究の理論的な部分に関して議論いただきました. また, 論文をまとめるにあたり多くの助言もいただきました. 深く感謝いたします.

大阪大学 工学研究科 市川 修平 准教授には, 超高圧電子顕微鏡センターに着任以降, 研究に関して様々な議論をしていただきました. 深く感謝いたします.

日本電子株式会社 大崎 暁弘氏, 高桑 禎将氏には, 装置に関するテクニカルな助言をいただきました. 感謝いたします.

本研究の一部の結果は, 名古屋大学 未来材料・システム研究所 超高圧電子顕微鏡施設の装置を利用し得られました.

最後に, 本研究の遂行にあたり, 理解し協力してくれた両親, および妻に感謝いたします.

参考文献

[1] L. Reimer and H. Kohl, “Transmission Electron Microscopy : Physics of Image Formation”, Springer, 5th edition (2008).

[2] D. B. Williams and C. B. Carter, “Transmission electron microscopy : a textbook for materials science”, Springer, 2nd edition (2009).

[3] T. Hibi, K. Yada and S. Takahashi, “Point cathodes and resolution of electronmicroscope”, Journal of Electron Microscopy **11**, 244–252 (1962).

[4] A. N. Broers, “Electron gun using long-life lanthanum hexaboride cathode”, Journal of Applied Physics **38**, 1991–1992 (1967).

[5] A. V. Crewe, D. N. Eggenberger, J. Wall and L. M. Welter, “Electron gun using a field emission source”, Review of Scientific Instruments **39**, 576–583 (1968).

[6] A. Tonomura and T. Komoda, “Field emission electron microscope”, Journal of Electron Microscopy **22**, 141–147 (1973).

[7] C. Humphreys and J. C. H. Spence, “Resolution and illumination coherence in electron microscopy”, Optik **58**, 125–142 (1981).

[8] L. H. Veneklasen and B. M. Siegel, “A field-emission illumination system using a new optical configuration”, Journal of Applied Physics **43**, 4989–4996 (1972).

[9] T. Someya, T. Goto, Y. Harada, K. Yamada, H. Koike, Y. Kokubo and M. Watanabe, “On development of a 100 kV field emission electron microscope”, Optik **41**, 225–244 (1974).

[10] H. Zhang, J. Tang, J. Yuan, Y. Yamauchi, T. T. Suzuki, N. Shinya, K. Nakajima and L.-C. Qin, “An ultrabright and monochromatic electron point source made of a LaB_6 nanowire”, Nature nanotechnology **11**, 273–279 (2016).

[11] H. Zhang, Y. Jimbo, A. Niwata, A. Ikeda, A. Yasuhara, C. Ovidiu, K. Kimoto, T. Kasaya, H. T. Miyazaki, N. Tsujii, H. Wang, Y. Yamauchi, D. Fujita, S.-i. Kitamura and H. Manabe, “High-endurance micro-engineered LaB_6 nanowire electron source for high-resolution electron microscopy”, Nature nanotechnology **17**, 21–26 (2022).

[12] N. De Jonge, Y. Lamy, K. Schoots and T. H. Oosterkamp, “High brightness electron beam from a multi-walled carbon nanotube”, Nature **420**, 393–395 (2002).

[13] S. Mamishin, Y. Kubo, R. Cours, M. Monthioux and F. Houdellier, “200 keV cold field emission source using carbon cone nanotip: Application to scanning transmission electron microscopy”, Ultramicroscopy **182**, 303–307 (2017).

[14] K. Kasuya, T. Kusunoki, T. Hashizume, T. Ohshima, S. Katagiri, Y. Sakai and N. Arai, “Monochromatic electron emission from CeB_6 (310) cold field emitter”, Applied Physics Letters **117**, 213103 (2020).

[15] C. W. Johnson, A. K. Schmid, M. Mankos, R. Röpke, N. Kerker, I. S. Hwang, E. K. Wong, D. F. Ogletree, A. M. Minor and A. Stibor, “Electron-beam source with a superconducting niobium tip”, Physical Review Applied **19**, 034036 (2023).

[16] B. Barwick, H. S. Park, O.-H. Kwon, J. S. Baskin and A. H. Zewail, “4D imaging of transient structures and morphologies in ultrafast electron microscopy”, Science **322**, 1227–1231 (2008).

[17] F. O. Kirchner, S. Lahme, F. Krausz and P. Baum, “Coherence of femtosecond single electrons exceeds biomolecular dimensions”, New Journal of Physics **15**, 063021 (2013).

[18] M. Kuwahara, S. Kusunoki, X. Jin, T. Nakanishi, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano and N. Tanaka, “30-kV spin-polarized transmission electron microscope with GaAs–GaAsP strained superlattice photocathode”, Applied Physics Letters **101**, 033102 (2012).

[19] A. Feist, N. Bach, N. Rubiano da Silva, T. Danz, M. Möller, K. E. Priebe, T. Domröse, J. G. Gatzmann, S. Rost, J. Schauss, S. Strauch, R. Bormann, M. Sivis, S. Schäfer and C. Ropers, “Ultrafast transmission electron microscopy using a laser-driven field emitter: Femtosecond resolution with a high coherence electron beam”, Ultramicroscopy **176**, 63–73 (2017).

[20] D. A. Plemmons and D. J. Flannigan, “Ultrafast electron microscopy: Instrument response from the single-electron to high bunch-charge regimes”, Chemical Physics Letters **683**, 186–192 (2017).

[21] F. Houdellier, G. M. Caruso, S. Weber, M. Kociak and A. Arbouet, “Development of a high brightness ultrafast transmission electron microscope based on a laser-driven cold field emission source”, Ultramicroscopy **186**, 128–138 (2018).

[22] M. Picher, K. Bücker, T. LaGrange and F. Banhart, “Imaging and electron energy-loss spectroscopy using single nanosecond electron pulses”, Ultramicroscopy **188**,

41–47 (2018).

[23] S. Hatanaka, T. Tsuchiya, S. Ichikawa, J. Yamasaki and K. Sato, "Ultrafast dynamics of a photoinduced phase transition in single-crystal trititanium pentoxide", Applied Physics Letters **123**, 241902 (2023).

[24] T. Nishitani, M. Tabuchi, H. Amano, T. Maekawa, M. Kuwahara and T. Meguro, "Photoemission lifetime of a negative electron affinity gallium nitride photocathode", Journal of Vacuum Science & Technology B **32**, 06F901 (2014).

[25] L. Cultrera, E. Rocco, F. Shahedipour-Sandvik, L. D. Bell, J. K. Bae, I. V. Bazarov, P. Saha, S. Karkare and A. Arjunan, "Photoemission characterization of n-polar iii-nitride photocathodes as candidate bright electron beam sources for accelerator applications", Journal of Applied Physics **131**, 124902 (2022).

[26] S. Henning and R. Adhikari, "Chapter 1 - scanning electron microscopy, ESEM, and X-ray microanalysis", Microscopy Methods in Nanomaterials Characterization (Eds. by S. Thomas, R. Thomas, A. K. Zachariah and R. K. Mishra), Elsevier (2017).

[27] R. Egerton, "Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope", Springer, 3rd edition (2011).

[28] G. Möllenstedt and H. Düker, "Beobachtungen und Messungen an Biprisma-Interferenzen mit Elektronenwellen", Zeitschrift für Physik **145**, 377–397 (1956).

[29] K. Harada, "Interference and interferometry in electron holography", Microscopy **70**, 3–16 (2021).

[30] S. Morishita, J. Yamasaki, K. Nakamura, T. Kato and N. Tanaka, "Diffractive imaging of the dumbbell structure in silicon by spherical-aberration-corrected electron diffraction", Applied Physics Letters **93**, 183103 (2008).

[31] J. Yamasaki, K. Ohta, S. Morishita and N. Tanaka, "Quantitative phase imaging of electron waves using selected-area diffraction", Applied Physics Letters **101**, 234105 (2012).

[32] J. Yamasaki, S. Morishita, Y. Shimaoka, K. Ohta and H. Sasaki, "Phase imaging and atomic-resolution imaging by electron diffractive imaging", Japanese Journal of Applied Physics **58**, 120502 (2019).

[33] J. Yamasaki, "Wave field reconstruction and phase imaging by electron diffractive imaging", Microscopy **70**, 116–130 (2021).

[34] P. W. Hawkes and E. Kasper, "Principles of Electron Optics: Applied Geometrical Optics", Vol. 2, Academic press (1989).

[35] G. Pozzi, "Theoretical considerations on the spatial coherence in field emission

electron microscopes”, Optik **77**, 69–73 (1987).

[36] S. Horiuchi, “Fundamentals of High-Resolution Transmission Electron Microscopy”, North-Holland (1994).

[37] A. H. V. Van Veen, C. W. Hagen, J. E. Barth and P. Kruit, “Reduced brightness of the ZrO/W Schottky electron emitter”, Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena **19**, 2038–2044 (2001).

[38] A. Lubk and F. Röder, “Semiclassical TEM image formation in phase space”, Ultramicroscopy **151**, 136–149 (2015).

[39] 裏克己,“電子・イオンビーム光学”, 共立出版 (1994).

[40] E. P. Wigner, “On the quantum correction for thermodynamic equilibrium”, Physical Review **40**, 749–759 (1932).

[41] D. T. Smithey, M. Beck, M. G. Raymer and A. Faridani, “Measurement of the Wigner distribution and the density matrix of a light mode using optical homodyne tomography: Application to squeezed states and the vacuum”, Physical Review Letters **70**, 1244 (1993).

[42] D. Leibfried, D. M. Meekhof, B. E. King, C. H. Monroe, W. M. Itano and D. J. Wineland, “Experimental determination of the motional quantum state of a trapped atom”, Physical Review Letters **77**, 4281 (1996).

[43] C. Kurtsiefer, T. Pfau and J. Mlynek, “Measurement of the Wigner function of an ensemble of helium atoms”, Nature **386**, 150–153 (1997).

[44] A. I. Lvovsky, H. Hansen, T. Aichele, O. Benson, J. Mlynek and S. Schiller, “Quantum state reconstruction of the single-photon Fock state”, Physical Review Letters **87**, 050402 (2001).

[45] M. G. Raymer, M. Beck and D. F. McAlister, “Complex wave-field reconstruction using phase-space tomography”, Physical Review Letters **72**, 1137 (1994).

[46] D. F. McAlister, M. Beck, L. Clarke, A. Mayer and M. G. Raymer, “Optical phase retrieval by phase-space tomography and fractional-order Fourier transforms”, Optics Letters **20**, 1181–1183 (1995).

[47] K. F. Lee, F. Reil, S. Bali, A. Wax and J. E. Thomas, “Heterodyne measurement of Wigner distributions for classical optical fields”, Optics Letters **24**, 1370–1372 (1999).

[48] A. Lubk and F. Röder, “Phase-space foundations of electron holography”, Physical Review A **92**, 033844 (2015).

[49] M. E. Haine and T. Mulvey, "The formation of the diffraction image with electrons in the gabor diffraction microscope", Journal of the Optical Society of America **42**, 763–773 (1952).

[50] G. Möllenstedt and H. Wahl, "Elektronenholographie und rekonstruktion mit laserlicht", Naturwissenschaften **55**, 340–341 (1968).

[51] K. E. Echternkamp, A. Feist, S. Schäfer and C. Ropers, "Ramsey-type phase control of free-electron beams", Nature Physics **12**, 1000–1004 (2016).

[52] S. Löffler, T. Schachinger, P. Hartel, P.-H. Lu, R. E. Dunin-Borkowski, M. Obermair, M. Dries, D. Gerthsen and P. Schattschneider, "A quantum logic gate for free electrons", Quantum **7**, 1050 (2023).

[53] M. Kuwahara, Y. Yoshida, W. Nagata, K. Nakakura, M. Furui, T. Ishida, K. Saitoh, T. Ujihara and N. Tanaka, "Intensity interference in a coherent spin-polarized electron beam", Physical Review Letters **126**, 125501 (2021).

[54] R. Haindl, A. Feist, T. Domröse, M. Möller, J. H. Gaida, S. V. Yalunin and C. Ropers, "Coulomb-correlated electron number states in a transmission electron microscope beam", Nature Physics **19**, 1410–1417 (2023).

[55] A. Ben Hayun, O. Reinhardt, J. Nemirovsky, A. Karnieli, N. Rivera and I. Kaminer, "Shaping quantum photonic states using free electrons", Science Advances **7**, eabe4270 (2021).

[56] C. Mechel, Y. Kurman, A. Karnieli, N. Rivera, A. Arie and I. Kaminer, "Quantum correlations in electron microscopy", Optica **8**, 70–78 (2021).

[57] M. Born and E. Wolf, "Principles of Optics", Cambridge University Press, 7th edition (1999).

[58] R. Loudon, "The quantum theory of light", Oxford University Press (2000).

[59] A. H. Zewail and J. M. Thomas, "4D electron microscopy: imaging in space and time", World Scientific (2009).

[60] B. Cho, T. Ichimura, R. Shimizu and C. Oshima, "Quantitative evaluation of spatial coherence of the electron beam from low temperature field emitters", Physical Review Letters **92**, 246103 (2004).

[61] D. Ehberger, J. Hammer, M. Eisele, M. Krüger, J. Noe, A. Högele and P. Hommelhoff, "Highly coherent electron beam from a laser-triggered tungsten needle tip", Physical Review Letters **114**, 227601 (2015).

[62] 北野正雄,"量子力学の基礎", 共立出版 (2010).

[63] A. Torre, "Linear Ray and Wave Optics in Phase Space: Bridging Ray and Wave

Optics via the Wigner Phase-Space Picture", Elsevier Science (2005).

[64] 古澤明,"量子光学の基礎", 内田老鶴圃 (2013).

[65] P. Meystre and M. Sargent, "Elements of Quantum Optics", Springer, 4th edition (2007).

[66] R. L. Hudson, "When is the Wigner quasi-probability density non-negative?", Reports on Mathematical Physics **6**, 249–252 (1974).

[67] C. Maunders, C. Dwyer, P. C. Tiemeijer and J. Etheridge, "Practical methods for the measurement of spatial coherence—a comparative study", Ultramicroscopy **111**, 1437–1446 (2011).

[68] 大島忠平, 青野正和,"LaB_6 の電子放射特性と表面物性", 真空 **24**, 287–295 (1981).

[69] W. O. Saxton, "Spatial coherence in axial high resolution conventional electron microscopy", Optik **49**, 51–62 (1977).

[70] J. Yamasaki, Y. Shimaoka and H. Sasaki, "Precise method for measuring spatial coherence in TEM beams using Airy diffraction patterns", Microscopy **67**, 1–10 (2018).

[71] S. Hatanaka and J. Yamasaki, "Quantitative measurement of spatial coherence of electron beams emitted from a thermionic electron gun", Journal of the Optical Society of America A **38**, 1893–1900 (2021).

[72] R. Erni, "Aberration-corrected imaging in transmission electron microscopy: An introduction", Imperial College Press, 2nd edition (2015).

[73] K. Iakoubovskii, K. Mitsuishi, Y. Nakayama and K. Furuya, "Mean free path of inelastic electron scattering in elemental solids and oxides using transmission electron microscopy: Atomic number dependent oscillatory behavior", Physical Review B **77**, 104102 (2008).

[74] A. Harscher, H. Lichte and J. Mayer, "Interference experiments with energy filtered electrons", Ultramicroscopy **69**, 201–209 (1997).

[75] P. L. Potapov, H. Lichte, J. Verbeeck and D. Van Dyck, "Experiments on inelastic electron holography", Ultramicroscopy **106**, 1012–1018 (2006).

[76] R. Speidel and D. Kurz, "Richtstrahlwertmessungen an einem strahlerzeugungssystem mit feldemissionskathode", Optik **49**, 173–185 (1977).

[77] S. Morishita, J. Yamasaki and N. Tanaka, "Measurement of spatial coherence of electron beams by using a small selected-area aperture", Ultramicroscopy **129**, 10–17 (2013).

[78] S. Hatanaka and J. Yamasaki, "Reconstruction of the Wigner function of electron

beams based on coherence measurements", Physical Review A **110**, 013702 (2024).

[79] D. Dragoman, "Can the Wigner transform of a two-dimensional rotationally symmetric beam be fully recovered from the wigner transform of its one-dimensional approximation?", Optics Letters **25**, 5, 281–283 (2000).

[80] F. Röder and A. Lubk, "Transfer and reconstruction of the density matrix in off-axis electron holography", Ultramicroscopy **146**, 103–116 (2014).

[81] P. Schattschneider and S. Löffler, "Entanglement and decoherence in electron microscopy", Ultramicroscopy **190**, 39–44 (2018).

[82] H. Lichte and B. Freitag, "Inelastic electron holography", Ultramicroscopy **81**, 177–186 (2000).

[83] P. Schattschneider and B. Jouffrey, "Correlation in the al plasma excitation", The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems **37**, 3–6 (2004).

[84] P. Schattschneider and H. Lichte, "Correlation and the density-matrix approach to inelastic electron holography in solid state plasmas", Physical Review B **71**, 045130 (2005).

[85] P. Schattschneider and W. S. Werner, "Coherence in electron energy loss spectrometry", Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **143**, 81–95 (2005).

[86] H. Shimoyama and S. Maruse, "Theoretical considerations on electron optical brightness for thermionic, field and TF emissions", Ultramicroscopy **15**, 239–254 (1984).

[87] M. J. Fransen, M. H. F. Overwijk and P. Kruit, "Brightness measurements of a ZrO/W Schottky electron emitter in a transmission electron microscope", Applied surface science **146**, 357–362 (1999).

[88] J. D. Verhoeven and E. D. Gibson, "Evaluation of a LaB_6 cathode electron gun", Journal of Physics E: Scientific Instruments **9**, 65 (1976).

[89] F. Houdellier, G. M. Caruso, S. Weber, M. Hÿtch, C. Gatel and A. Arbouet, "Optimization of off-axis electron holography performed with femtosecond electron pulses", Ultramicroscopy **202**, 26–32 (2019).

[90] M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, X. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka, "Coherence of a spin-polarized electron beam emitted from a semiconductor photocathode in a transmission electron microscope", Applied Physics Letters **105**, 193101 (2014).

研究業績

査読付き原著論文

- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Quantitative measurement of spatial coherence of electron beams emitted from a thermionic electron gun," Journal of the Optical Society of America A **38**, 1893–1900 (2021).
- Shuhei Hatanaka, Taro Tsuchiya, Shuhei Ichikawa, Jun Yamasaki, and Kazuhisa Sato, "Ultrafast dynamics of a photoinduced phase transition in single-crystal trititanium pentoxide," Applied Physics Letters **123**, 241902 (2023).
- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Reconstruction of the Wigner function of electron beams based on coherence measurements," Physical Review A **110**, 013702 (2024).
- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Precise measurement of spatial coherence and axial brightness based on the Wigner function reconstruction in transmission electron microscopes with field emission guns and a thermionic emission gun," Microscopy, accepted.

国際会議

口頭発表 (査読あり)

- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Precise measurement of spatial coherence of electron beams emitted from a thermionic emission gun," 20th International Microscopy Congress, Busan, Korea (September 2023).

ポスター発表 (査読あり)

- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Brightness measurement of electron sources based on reconstruction of Wigner function," International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2023, Nagoya, Japan (December 2023).
- Shuhei Hatanaka, Taro Tsuchiya, Shuhei Ichikawa, Jun Yamasaki and Kazuhisa Sato, "Time-resolved observation of photoinduced phase transition of trititanium pentoxide by ultrafast electron microscopy," 14th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices '22, Okinawa, Japan (October 2022).
- Shuhei Hatanaka and Jun Yamasaki, "Precise evaluation of spatial coherence of thermionic-emitted electron beams based on the analysis of Airy patterns," 13th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices '21, Online (October 2021).

国内学会 (口頭発表)

- 畑中修平, 山﨑順, "プラズモン散乱した電子の干渉性測定," 日本物理学会 2024 年春季大会," オンライン (2024 年 3 月).
- 畑中修平, 山﨑順, "Wigner 関数の再構成に基づいた電子源の輝度測定," 日本顕微鏡学会 第 79 回学術講演会, 島根 (2023 年 6 月).
- 畑中修平, 山﨑順, "電子ビームの干渉性測定に基づいた Wigner 関数の再構成," 日本物理学会 第 77 回年次大会, オンライン (2022 年 3 月).
- 畑中修平, 山﨑順, 保田英洋, "熱電子銃と FEG による電子ビームの空間干渉性比較," 日本顕微鏡学会第 77 回学術講演会, 筑波 (2021 年 6 月).
- 畑中修平, 山﨑順, 保田英洋, "熱電子ビームの空間干渉性定量計測," 日本物理学会 2020 年秋季大会, オンライン (2020 年 9 月).
- 畑中修平, 山﨑順, 保田英洋, "熱電子ビームの空間干渉性定量評価," 日本顕微鏡学会 第 76 回学術講演会, 紙上開催 (2020 年 5 月).
- 畑中修平, 山﨑順, 保田英洋, "熱電子ビームの空間干渉性評価," 日本物理学会 第 75 回年次大会, 紙上開催 (2020 年 3 月).

受賞

- International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2023, Best Presentation Prize (2023 年 12 月).
- 日本物理学会 第 77 回年次大会, 学生優秀発表賞 (2022 年 4 月).
- 13th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices ’21, Excellent Presentation Award (2021 年 10 月).