透過電子顕微鏡

3. 電場・磁場可視化機能

進 藤 大 輔*

3.1 はじめに

本入門講座の第1回と第2回では、それぞれ透過電子顕微鏡の微細構造観察機能と組成・状態分析機能について概説した。最終回となる今回は、透過電子顕微鏡の新しい機能として注目を集めている電場と磁場の可視化機能について説明する。電場と磁場のナノスケールでの可視化機能は、他の実験手段では得難い機能であり、特に先端材料の電氣的・磁氣的特性を理解する上で極めて有用である。電場・磁場を可視化するには、電子の波動性に着目し、その干渉効果を利用した電子線ホログラフィーという実験技法を利用することになる。

電子線ホログラフィーの実験技法は、1948年に D. Gabor (ガボール) によって提案された⁽¹⁾。もともと Gabor が提案したホログラフィーは、電子顕微鏡の分解能の向上を目的とし、その対物レンズの収差を補正するためのものであったが、当時干渉性の高い電子源がなかったため、この目的を達成することはできなかった。その後、レーザーの出現によ

り、ホログラフィーの応用研究は光の分野で開花することとなった⁽²⁾。近年、電界放出型電子銃の開発により、干渉性の高い電子源が得られるようになり、電子顕微鏡の分野においても、このホログラフィーの実験が可能となっている。

ホログラフィー(holography)とは、注目する情報の“すべて(ホロ: holo)”を“再現させる記録法(グラフィ: graphy)”を意味している。レーザー光を用いたホログラフィーについて、図1に基本原理が模式的に示してある。通常の写真撮影では、二次元的な画像(強度分布)が得られるのみであるが、図1(a)に示すように、ホログラフィーでは物体光に参照光を重ね合わせ、振幅に加え位相情報も写真乾板に記録する。この写真乾板に再生光を照射させることにより、図1(b)のように写真乾板から回折光を発生させる。ここで、この回折光にはもともとの物体光の振幅と位相情報が含まれているため、図右より覗き込み回折光を両眼で捉えれば、もともとの物体光と同様遠近感のある立体像(虚像)が観察できることになる。以下では、電子線を用いたホログラフィーにおける位相再生プロセスについて数式を用いて概説するが、そこでは試料を透過した電子の位相情報を再生させる

図1 レーザー光を用いたホログラフィーの原理を示す模式図。

* 東北大学教授；多元物質科学研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平2-1-1)
Transmission Electron Microscope 3. Function of Visualization of Electric and Magnetic Fields; Daisuke Shindo (Institute of Multidisciplinary for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai)
Keywords: *electron holography, biprism, electric field, magnetic field, electromagnetic force*
2005年9月20日受理

ことにより、試料の厚さ情報は勿論のこと、電子の位相に影響を及ぼす電場や磁場の情報が記録され、顕微鏡外でそれらを定量的に再生できることがわかる。

3.2 電子線ホログラフィーの原理

電子線ホログラフィーは、「電子顕微鏡内での電子波の位相情報の記録」と、「光学再生システムあるいはコンピュータを用いた位相再生」の二段階からなる。位相情報を記録するための電子波の干渉法には種々の様式があるが、本稿では、最近最も多く用いられてきているパイブリズム[†]を用いた電子波干渉法の原理について述べる。また、位相再生については、最近多用されているコンピュータを用いたデジタル画像データ処理法に基づいて説明する。図2に、電子線ホログラフィーの原理を模式的に示す。物体内外の電場や磁場による入射電子の振幅と位相の変化を示す波動関数は、一般的に

$$q(r) = A(r) \exp(i\phi(r)) \quad (1)$$

と記述することができる。ここで、汎用の電子顕微鏡法による観察を考えると、分解能や像の拡大率を無視すると得られる電子顕微鏡像の強度は式(1)より、

$$I(r) = |q(r)|^2 = A^2(r) \quad (2)$$

となる。式(2)より、汎用の電子顕微鏡法では、入射電子の試料内での吸収や回折による振幅の減衰($A(r)$)は評価できるが、電場や磁場の影響を示す位相情報($\exp(i\phi(x, y))$)は得られないことがわかる。電子線ホログラフィーでは、電場・磁場の影響を受けた電子波(物体波)と真空中を伝播した電子波(参照波)をパイブリズムによって偏向させそれぞれ $-\alpha_h/2$ と $\alpha_h/2$ の角度で干渉させ、位相情報をこの干渉縞(ホログラム)に記録する(図2)。このホログラムの強度分布 I_h は、

$$\begin{aligned} I_h(r) &= \left| A(r) \exp\left(-\pi i \frac{\alpha_h}{\lambda} x + i\phi(r)\right) + \exp\left(\pi i \frac{\alpha_h}{\lambda} x\right) \right|^2 \\ &= 1 + A^2(r) + 2A(r) \cos\left(2\pi \frac{\alpha_h}{\lambda} x - \phi(r)\right) \end{aligned} \quad (3)$$

と与えられる。右辺下段の第3項に位相変化 $\phi(r)$ が含まれており、このホログラムにフーリエ変換演算を施すことにより、電場や磁場による入射電子の位相および振幅の変化が数値データとして再生できることになる⁽³⁾。通常、再生された位相変化(ϕ)を $\cos \phi$ として記述し、電場や磁場の分布を位相再生像として2次元画像として表示する。

ここで、図2右上の試料断面において、試料通過後のC点とD点間で生じる位相差は電位 $\phi(r)$ を用いて

$$\phi(r_C) - \phi(r_D) = \sigma \left[\int_A^C \phi(r) dz - \int_B^D \phi(r) dz \right] \quad (4)$$

と記述できる。式(4)の σ は相互作用定数と呼ばれ、加速電圧 V 、電子の波長 λ で与えられる。一方、磁場による位相変化は磁束密度 B を用いて、

図2 電子線ホログラフィーの原理を示す模式図。

$$\begin{aligned} \phi(r_C) - \phi(r_D) &= \frac{e}{\hbar} \iint_S \mathbf{n} \cdot \mathbf{B}(r) dS \\ \left(\hbar = \frac{h}{2\pi}, h: \text{プランク定数} \right) \end{aligned} \quad (5)$$

と記述できる⁽³⁾。 $\mathbf{n}$ は、電子線に平行な面 S (図2右上の領域ABDC)の法線単位ベクトルに対応する。ここで、もし試料の厚みが一定であれば、電位のみが存在する場合には、式(4)よりC点とD点での電子の位相は同一となり、位相変化は生じない。また、式(4)の電位がスカラー量であるのに対し、式(5)の磁束の方はベクトル量であることに注意したい。つまり、電子が試料を通過する際、電位による位相変化は単調増大となるのに対し、磁束の場合にはその位相変化が磁束の方向に依存し増減することになる。

図3は、対物レンズの磁場を低く抑えて撮影した非晶質磁性体 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ のホログラム(a)と位相再生像(b)の例である⁽⁴⁾。図3(a)のホログラムの干渉縞は、真空中では直線であるが試料内では磁場と電場の影響を受け曲線を描いている。特に、図中のP, Rの付近では、干渉縞が試料内部に向けて大きく偏向しているのに対し、Qでは逆に試料端側に縞が変位しており、これらの場所で位相変化(ϕ)の符号に違いが生じていることがわかる。このことは、図3(b)の位相再生像のP, RとQ領域で、矢印で示す磁束線の方向が反対であることと対応している。この試料の形状がくさび型であることを考慮し、その平均内部電位^{††}と磁束の位相再生

[†] 電子線用のパイブリズムは、径が $1 \mu\text{m}$ 以下の1本のフィラメントと一對のアースからなり、電圧を印加することにより電子波を偏向させる。

^{††} 帯電していない試料外では、原子を構成する陽子と電子の正・負の電荷が相殺し電位はゼロとなるが、試料内の特に原子核の近くでは陽子の正電荷の影響で電位は高くなる。試料内での平均の電位は平均内部電位と呼ばれ、通常物質により異なるが数ボルトから20ボルト程度の値をとり、一般に物質を構成する元素の原子番号や密度の増大とともに大きくなる。

図3 急冷した $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ のホログラム(a)と位相再生像(b)。(b)の白矢印は、磁束線の方を示す。

像に及ぼす影響を示したのが図4のシミュレーションである。(b)の平均内部電位のみが存在する場合には、試料の端から厚い領域にかけてゆっくりと位相が変化するのに対し、(c)の磁場ののみが存在する場合には、厚くなるに次第に等高線の密度が増大している。内部電位と磁場の両方の存在する場合には、これらが重畳されるが、磁場の方向により特に試料端で位相変化に違いが生じることがわかる((d), (e))。図3(b)のP, Rの状況は、図4(d)に対応し、図3(b)のQは図4(e)に対応していると理解できる。したがって、試料厚みが一定の場合や、厚みの変化が緩やかで比較的厚い試料では、近似的に位相再生像には磁束線の情報のみが反映されると解釈できる。しかし、磁性微粒子や磁化が著しく小さい磁性体では、磁場よりも内部電位が電子の位相により大きな変化をもたらすことになる。

3.3 電位分布の評価

図5は、電界電子放出機能を有する物質として注目されている WO_3 ナノワイヤーの電位分布を電子線ホログラフィーによって評価したものである⁽⁵⁾。(a)は通常の透過電子顕微鏡像であり、ナノワイヤーの先端部の形態が観察されている。(b)は、電子線ホログラフィーによって得られた位相再生像であり、ナノワイヤーの試料端近傍で試料厚みが急激に増大するため、内部電位による電子の位相変化に伴う等高線

図4 位相再生像のコンピュータシミュレーション。(a) シミュレーションに用いた試料の形状。(b) 電場(内部電位 17 V)のみを考慮した場合。(c) 磁束(1.2 T)のみを考慮した場合。(d) (a)に示す磁束と内部電位を考慮した場合。(e) (a)と反対向きの磁束と内部電位を考慮した場合。

図5 WO_3 ナノワイヤーの透過電子顕微鏡像(a)と電圧を印加した折の位相再生像(b)-(d)。(b) 0 V。(c) 60 V。(d) 100 V。

が認められる。これに対し、(c)と(d)はこのナノワイヤーに電圧をそれぞれ 60 V と 100 V 印加した際の位相再生像であり、ナノワイヤーの周囲に電圧印加に伴う電位分布が生じ、電圧の増大とともに、等高線の数が増大の様子が捉えられている。なお、これらの電位分布は電子線方向へ投影したものである。また、電場分布を求めるには電位を微分する必要がある。極最近には、透過電子顕微鏡に導入されている熱電界放出型電子銃に用いられている W-Zr₂O ティップの電位分布も観察され、未使用と使用後のティップの形状変化

図6 (a) 電子線ホログラフィーによって得られたナノコンポジット磁石 $\text{Nd}_{4.5}\text{Fe}_{77}\text{B}_{18.5}$ の位相再生像。黒の線は結晶粒界を示す。(b) (a) の P1 と P2 の領域で得られた特性 X 線スペクトル。P2 は Nd を含まない軟磁性相 (Fe_3B) であることがわかる。

とともに、これによる電位分布の微細な変化も詳細に解析されている⁽⁶⁾。

3.4 磁束分布の評価

最近、永久磁石としての磁気特性を向上させることを目的に、高い結晶磁気異方性を有する硬磁性相と高い飽和磁束密度を有する軟磁性相をナノスケールで組み合わせたナノコンポジット磁性体が精力的に開発されてきている．図 6(a) は、ナノコンポジット磁性体 $\text{Nd}_{4.5}\text{Fe}_{74}\text{B}_{18.5}\text{Cr}_3$ の位相再生像の例である⁽⁷⁾．先の講座で解説した透過電子顕微鏡の微細構造観察機能と組成分析機能(図 6(b))を用いることにより、本試料が結晶粒 10~30 nm の硬磁性相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ と軟磁性相 Fe_3B (図中 S で示す)から構成されているのがわかる．また、試料厚みが均一なため、図 6(a) の位相再生像は内部ポテンシャルの影響を受けず磁束の情報のみを示している．矢印方向に磁束線がほぼ平行に揃って硬磁性相と軟磁性相を貫いているが、これは軟磁性相と硬磁性相間での交換相互作用によって生じていることを示している．また、この均一で平行な磁束線の分布は、本試料の高い残留磁束密度($\text{Br} = 1.11 \text{ T}$)とよく対応しているものと理解できる．このように、電子線ホログラフィーではナノスケールでの磁性体間に働く磁氣的相互作用を、その力の源である磁場を可視化することにより明らかにでき、その特性との対応が理解できることがわかる．

3・5 おわりに

自然界には、相互作用を生み出す基本的な力として、重力の他、強い力と弱い力、そして電磁気力の4つが存在する。重力は、天体の運動に及ぶ巨視的なスケールで重要な役割を担い、強い力と弱い力は主に原子殻内での相互作用に関わるものであることを考慮すると、我々の身の回り(身体内の営み・機能も含め)、特にミクロな世界の相互作用を生み出みだす基本となる力の殆どが電磁気力であると理解でき

る。電磁気力の源は電場と磁場であり、電子線ホログラフィーによってこれらの場を定量的に可視化できることの意義は極めて大きいと言える。

近年の透過電子顕微鏡への電界放出型電子銃とパイプリームの導入を踏まえ、電子線ホログラフィーによる電場と磁場の可視化により物質の内部ポテンシャルの測定や磁束分布の解析が実施されてきたとは言え、その応用範囲はまだまだ限られたものとなっているのも事実である。しかし、本講座で紹介した電圧印加、また強い磁場の印加⁽⁸⁾も顕微鏡内で実施することが最近可能となっており、その場実験による先端材料内外の電位分布や磁束の変化の定量的な解析も実現している。今後、電子線ホログラフィー技術に関わるハード・ソフト両面での一層の発展により、極微弱な電場と磁場の検出が可能となり、ナノテクノロジーを支えるナノマテリアルをはじめ広範な物質へ本技法が適用され、これら物質の機能発現機構の解明が飛躍的に進展することを期待したい。

文 献

- (1) D. Gabor: *Nature*, **161**(1948), 777-778.
- (2) E. N. Leith and J. Upatnieks: *J. Opt. Soc. Am.*, **53**(1963), 1377-1381.
- (3) 進藤大輔: 日本応用磁気学会誌, **27**(2003), 1000-1006.
- (4) D. Shindo, Y.-G. Park and Y. Yoshizawa: *J. Magn. Magn. Mater.*, **238**(2002), 101-108.
- (5) D. Shindo, H. S. Park, Y. Murakami, Y.-L. Chueh, M.-T. Chang and L. J. Chou: *Proceedings of IUMRS-ICA 2004 International Conference in Asia*, Taiwan, Hsinchu, 08: 1-12.
- (6) T. Oikawa, T. Tomita, H. S. Park and D. Shindo: *Microsc. Microanal.*, **11**(Suppl. 2), (2005), 568-569.
- (7) D. Shindo, Y.-G. Park, Y. Murakami, Y. Gao, H. Kanekiyo and S. Hirokawa: *Scripta Mater.*, **48**(2003), 851-856.
- (8) D. Shindo, Y.-G. Park, Y. Gao and H. S. Park: *J. Appl. Phys.*, **95**(2004), 6521-6526.

電子線ホログラフィーに関する書籍

- (1) A. Tonomura: Electron Holography, 2nd Edition, Springer-Verlag, (1999).
～ホログラフィーの基本原則と各種材料の解析例が系統的に説明されている。ローレンツ顕微鏡法を用いた超伝導体中の磁束量子の観察についても記されている。
- (2) E. Völkl, L. F. Allard and D. C. Joy: Introduction to Electron Holography, Kluwer Academic/Plenum Publishers (1999).
～電子線用パイブリズムを考案した Möllenstedt (モーレンシュテット) 自身による、電子線ホログラフィー草創期の叙述をはじめ、数多くの研究者による電子線ホログラフィーの解析技術、応用例に関する解説記事が編集されている。
- (3) D. Shindo and T. Oikawa: Analytical Electron Microscopy for Materials Science, Springer-Verlag, (2002), pp. 116-125.
～各種分析法とともに、ローレンツ顕微鏡法そして電子線ホログラフィーの原理と応用例が詳述されている。