

低加速電子線 SEM/STEM を用いた局在場可視化技術

藤田 淳一^{*1}

Visualization of Localized Field using deflection of
Low-Energy Electron Beam with SEM/STEM

Jun-ichi Fujita^{*1}

^{*1}Institute of Applied Physics, Graduate School of Pure and
Applied Science, University of Tsukuba,
1-1-1 Tenodai, Tsukuba 305-8573, Japan

(Received , Accepted)

^{*1} 筑波大学数理物質系電子物理工学専攻
(〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1)

Abstract

High-sensitive visualization of the local electric and magnetic field is possible using a low energy electron beam combining with a simple grid detector configuration. The beam deflection goes along with the clear principle that the larger deflection can be induced by lower energy electron based on the Rutherford scattering scheme. The field distribution around two-dimensional materials allows quantitative analysis of the local field, showing good agreements with FEM simulation. Well defined beam scanning control established in the recent scanning electron microscope (SEM) can project the detector grid image superimposed on the specimen image. And thus the localized field distribution was easily visualized through a simple E-field vector translation based on the deflection configuration. Detailed techniques and the analysis were described from the viewpoint of practical applications.

1. はじめに

今日の材料物性やデバイス応用研究において、電子顕微鏡技術は試料構造を原子レベルで観測評価するための必須技術となっている。透過電子顕微鏡(TEM)は、電子の波動性を利用した顕微鏡である。光学顕微鏡と同様に試料を透過した電子波を電子レンズによって結像し、蛍光スクリーンまたは撮像素子上に原子構造が投影される。一方で走査電子顕微鏡(SEM)では、電子の粒子性を用いている。原子サイズ程度までに細く絞った一次電子線を試料上で走査し、発生した二次電子検出強度を走査に同期してスクリーンに描画すると試料構造が画像化され、原子構造も映し出すことができる。電子顕微鏡は、このような試料の表面や内部原子構造の評価とともに、一次電子線の軌道偏向を検出することで、試料中の電場や磁場の分布も可視化計測することが可能である。

電荷の局在や揺らぎは、結晶や分子構造変化を引き起こし、様々な物理現象や化学反応を引き起こす。例えば、触媒機能とは自発的に進行する化学反応速度を増加させる機能である。原料ガスと触媒表面での電荷移動に伴い、局所的な静電場が形成され、表面電子状態や表面構造が変化して触媒機能が発現すると考えられる。ここで単一電荷 $1.6 \times 10^{-19} \text{ C}$ の局在分極があったとき、その単一電荷から 100 nm の距離における電場は $2 \times 10^3 \text{ V/m}$ 程度となる。局在電荷近傍を通過する電子線は、局在場による散乱(Rutherford散乱)を受ける。つまり、局在場によって散乱された電子顕微鏡の一次電子を何等かの手法で検出できれば、局在場を可視化することができる。微視的スケールにおける担持体および触媒表面での電子状態変化を局在電場の変化として可視化することで、触媒機能の物理的解明が飛躍的に進展し、さらには新しい触媒材料の開発につながると期待できる。同様に、半導体デバイスでの界面電場分布^{1,2)}や有機太陽電池のバルクヘテロ接合界面での電場分布解明は、現状の接合特性解明と共に新たな高機能特性の発現に向けた原動力となることが期待される。

一方で、電子は磁場によってもローレンツ力を受けて散乱する。スピン1個当たりが持つ磁場は非常に微弱なものであり、例えば単一スピンのボーア磁子の大きさは高々 $\mu_B = 9.3 \times 10^{-24} \text{ Am}^2$ 。

であるし，単一スピンのみならずか 1 nm の距離で観察される磁場の強さは 18 G 程度である．更に，スピン双極子からの磁場強度は距離の 3 乗に反比例して減少するので，10 nm も離れると僅か 0.02 G となる．この局在スピンや，スピン流，スピン波の干渉³⁻⁵⁾は今後のスピントロニクスデバイスへの応用に非常に重要な役割を持つこと⁶⁻⁸⁾が予想され，これまで多くの電子ビームを用いた可視化技術が報告されている．

本論文では，筆者らの研究室で開発してきた走査電子顕微鏡 (SEM)/走査透過電子顕微鏡 (STEM) を用いた，局在場の可視化技術を局在電場の可視化と局在磁場の可視化に分けて，最近の進展について紹介する．

2. 従来技術

電子ビームを用いた局在磁場や電場の可視化技術として電子線ホログラフィ法やローレンツ顕微鏡法が研究開発されてきた．特にエネルギー分散の少ない高輝度冷陰極電界放射電子源が実用化されて以降は，コヒーレントな電子波面を利用することが可能となり，電子線ホログラフィ技術は大きく進展した⁹⁻¹⁷⁾．

Fig. 1(a)に電子線ホログラフィ技術の原理を示す．通常は対物レンズポールピース内の試料空間の半分の領域に観察対象となる磁性試料や薄片試料等が設置される．つまり照射電子線の半分は試料を通過し，試料中の局在磁場や局在電場によって生じた位相変調を含んだ物体波となる．また，残り半分は試料の存在しない空間を通過した参照波として用いられる．対物レンズの後段にある拡大投影系では，電位を印加した細い導電ワイヤ（電子線バイプリズム）によって物体波と参照波の軌道を曲げ，投影スクリーン上には重ね合わせによる干渉縞が生じる．この干渉縞を記録し，光学的なホログラムと同様にレーザー光を照射すればホログラム再生像を得ることができるし，コンピュータによる逆フーリエ変換で再生像を作り出すこともできる．

ここで，電子線の照射を z 軸方向とし， xy 面に存在する磁性薄片試料の中を通過した電子波の位相シフト $\Delta\phi$ は，

$$\Delta\phi(x) = -\frac{e}{\eta} \iint B_y(x,z) dx dz$$

と表すことができる．ここで試料中の磁場を B_y ， e は電荷素量， η はプランク定数である．試料が一様に帯磁した一定厚さ l_z の薄片であれば，試料を通過した電子波の位相シフトは

$$\Delta\phi = -eBl_z/\eta$$

となる．一方で，速度 v_0 で試料中を通過する電子線はローレンツ力を受け，この時の位相シフトは電子波のドブロイ波長 λ を用いれば，

$$\Delta\phi = -(2\pi/\lambda) \frac{eBl_z}{m_e v_0}$$

となる．ここで，ローレンツ力を受けて水平方向に偏向された電子線の水平方向速度成分は

$$v_h = -\frac{ev_0 B}{m_e} \left(\frac{l_z}{v_0} \right)$$

であるから，試料を通過した電子線の偏向角度は

$$\tan\theta = \frac{v_h}{v_0} = \frac{eBl}{m_e v_0}$$

と見積もられる．つまり，電子線ホログラフィでは，

$$\Delta\phi = \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \tan\theta$$

程度の位相シフトを観測していることになる．

ホログラムに記録されたフリンジ縞に対して，画像処理を行えば， $\pi/100$ 程度の位相変化を検出することは容易である．実際に，30 nm程度の磁性粒子の内部に形成される保持力 300~450 Oeの磁場が観測されている^{14,15)}．

一方で，Fig. 1(b)に示すローレンツ顕微鏡もまた局在する微弱な電磁場の可視化に有力な手法である¹⁸⁻²⁰⁾．磁性試料中を通過する電子はローレンツ力を受け，その軌道が変化する．ここで，ある磁壁を境に磁化方向が逆転していた場合，通過した電子線の偏向方向は，互いに収束するか，もしくは発散する方向に偏向を受ける．互いに収束する磁壁では，電子ビームの結像をアンダーにデフォーカスさせる（合焦点位置からずらす）と電子線の

重なりによって明るい磁壁として投影され，互いに発散する領域では，暗い磁壁となって投影される．一般的な透過電子顕微鏡の対物レンズは強励磁であり，2～3 Tの磁場が発生している．このような強磁場空間に挿入された磁性試料は多くの場合に飽和してしまい，磁気ドメイン情報を得ることは難しい．ローレンツ顕微鏡では，特殊構造の対物レンズを用いて，ポールピース内磁場を極めて低く抑える工夫がなされて，試料内磁気構造の観測が可能となっている．しかし，デフォーカスによって磁壁コントラストが得られるという原理から，TEM本来の空間分解能と磁気コントラストを両立させることは難しい．さらに，試料内部の磁気構造を観測することは容易であるが，試料周辺の空間分布を観測することはできない．

また，試料からの周期的磁壁構造に伴う **Bragg** 散乱を制限視野絞で抽出して結像することで，同一磁区構造を持つドメインを取り出すことも可能である (**Foucault** 法)．しかしながら，一般に電子線ホログラフィやローレンツ顕微鏡に用いられる電子線の加速度は数 100 keV と非常に高い．電子の偏向量や位相の変化は電子の速度に依存しており，速度が速くなればそれだけ得られる偏向変化量が少なくなり，非常に微弱な磁場・電場の可視化は困難となる．

電子線ホログラフィ法もローレンツ顕微鏡法も，要は局在場を通過した電子の散乱による位相変化もしくは散乱角変化を捉えて可視化しようとするものである．一方で，電子顕微鏡の一次電子の偏向を画像の歪みとして捉えることも可能であり，佐々木らによる TEM 投影画像中の歪みから局在場の可視化と強度推定が報告されている^{21,22)}．この意味で，本論文で解説する低加速電子線の **Rutherford** 散乱による局在場の可視化²³⁻²⁷⁾も基本原理は同一である．しかし，一般的な SEM で利用できる極めて低加速の電子線を用いることで，空間分解能に制限があるものの，大きな散乱角を得ること，すなわち高感度化が容易である．また，顕微鏡本体の試料室周りにゆとりがあるために，様々な付加装置を導入することも容易である．**Fig. 1(c)**に低加速電子線の **Rutherford** 散乱による可視化装置の概略を示す．**Fig. 1(c)**に示

すように，先鋭な金属プローブを電界中に置くと，その先端には周囲の電界による電位勾配を打ち消すように見かけの虚像電荷が現れて，強い局在電場が形成される．プローブ先端近傍を通過する電子線は，プローブ先端の見かけの電荷によるクーロン散乱を受けて軌道が曲がる．無限遠方から飛んできた粒子は中心力場を通過する際にその軌道を曲げ再び無限遠方へ飛び去る．この時に描く軌道が双曲線であり，クーロン力による荷電粒子の散乱を一般に **Rutherford** 散乱と呼んでいる．無限遠での双曲線接線と中心電荷との距離（衝突係数）を b ，中心電荷を q ，電子質量を m ，電子速度を v_0 とすると，散乱角 θ は，

$$\tan \frac{\theta}{2} = \frac{eq}{4\pi\epsilon_0 mbv_0^2} \quad (1)$$

と近似できる．ここで，SEM 電子線の電子光学軸から外れた位置に電子線検出用のグリッドを設置する．すると，プローブ先端で散乱された電子がグリッドに到達した場合，グリッドから新たな二次電子が放出され，SEM 画像中には，散乱された一次電子線による歪んだグリッド像が重畳されて映し出されることになる．散乱偏向された一次電子線の検出は単純にはこのようなグリッドでもよいし，より高感度な固体半導体検出器を用いることもできる．

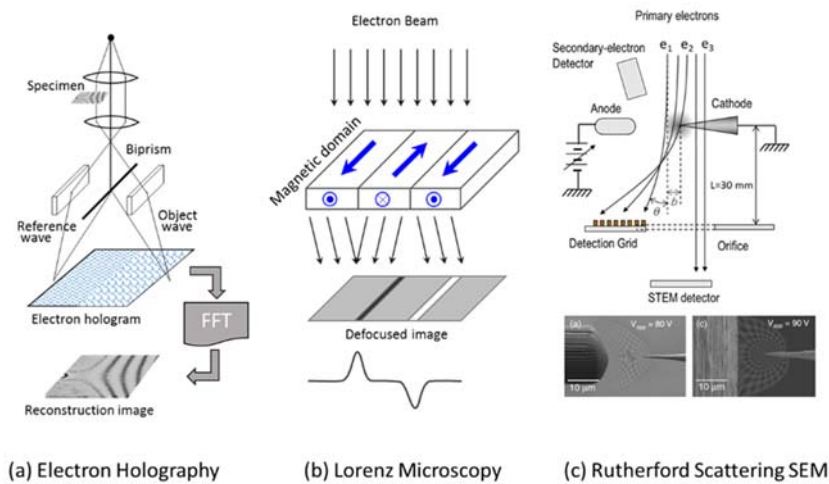


Fig.1 (Color online) Schematics of field visualization methods: (a) Electron holography, (b) Lorenz microscopy, and (c) Beam deflection method described in this article.

3. 局在電場の可視化

ここでは，低加速電子線による局在電場の可視化を考える．プローブ先端の点電荷からの衝突係数 b の位置での電場強度は，

$$E = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q'}{b^2}$$

である．5 kV の電子線の速度は光速の 1% 程であり，非相対論の領域で議論することができる．従って，電子線のエネルギーは簡単に， $eV = mv_0^2/2$ と表わせる．つまり，プローブ先端から b だけ離れた位置の電界強度は，

$$E = \frac{2V}{b} \tan \frac{\theta}{2} \quad (2)$$

であり，さらに散乱角 θ は非常に小さいために，(2) を簡略化して，

$$E = \frac{V\theta}{b} \quad (3)$$

と表すことができる．

したがって，SEM による電界可視化像の電界強度は，実験に用いた電子線の加速電圧 V と，出現したグリッドの影に対応する電子線散乱角 θ ，また SEM 画像上のプローブ先端から影までの距離 b のみを知るだけで求めることができる．

低加速電子ビームを用いた局在場可視化のために，ここでは日立の S-4800 型走査電子顕微鏡装置を用いている．S-4800 の観測モードには低倍率モード (Low-mag mode) と高倍率モード (High-mag mode) がある．High-mag モードはセミ・インレンズ型の電子光学系で設計されており，対物レンズの励磁とともに，レンズ端面からの漏れ磁場も含めた磁場分布が，一次電子ビームの集束を助けるとともに 2 次電子収集効率を向上させ，

500k 倍以上での高倍率観察が可能となっている。一方で、試料周囲は対物レンズからの磁場に晒されることになり、局在場可視化の上で、一次電子ビームの投影系（試料の下流側）での電子ビームの集束や画像回転などを考慮しなくてはならない。この高倍率モードを用いた高分解能局在場可視化については、5章で述べることとする。本章では、直感的に理解しやすい Low-mag モードでの局在場可視化技術から解説する。

Low-Mag モードは試料直上にある対物レンズは励磁せずに、第2コンデンサーレンズと偏向コイルによるビームの集束と走査によって SEM 画像を取得するモードである。電子ビームの集束が弱く高倍率観察には適さないが、広視野低倍率での観察が可能である。また、電子ビームの f 値が大きく、焦点深度が深い。つまりピントの合焦範囲が試料面と、さらには試料面から 20~30 mm 下流に設置された散乱1次電子検出用グリッド面をも同時に映し出すことができる。

走査電子顕微鏡における一次電子の Rutherford 散乱を用いた局在場の可視化の原理は、局在場によって軌道偏向された一次電子が作り出す検出グリッド格子の歪んだ画像を解析し、局在分布を可視化する技術である。

その典型的な局在場可視化の画像を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a) に示すように、プローブに対して、直角に検出用グリッドが約 500 μm の距離を隔てて設置されている。また、電子線の加速度は 5 keV である。この状況で、プローブに電位を与えていくと ((b)~(e)), SEM 画像中のプローブ先端には同心円状のグリッドの影が映し出される。つまり、プローブ近傍に誘起された強い電場によって、一次電子ビームが散乱されて、試料よりさらに 30 mm 下流にあるグリッドに到達し、グリッド上から放出される二次電子によって、プローブ周囲に同心円上の影が形成されたためである。

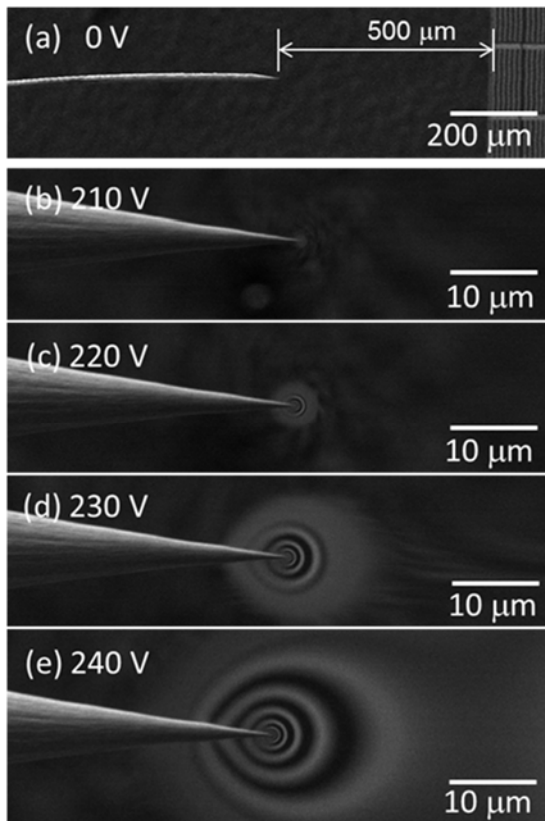


Fig.2 Potential dependence of the concentric rings appeared at the probe apex.

まず，座標系の定義として，電子ビームの落下方向を負の z 軸方向，プローブ先端方向を正の y 軸方向とする．Fig. 3 および Fig. 4 にはプローブ先端に誘起された局在場の典型的な可視化画像例を示す．ここで，SEM の電子線加速は 5 keV ，プローブ電位は 205 V に設定している．プローブとグリッドの距離は 25 mm ，金グリッドは，厚さ 50 nm の金蒸着膜を幅 $1.5 \mu\text{m}$ ，ピッチ $10 \mu\text{m}$ でエッチング加工したものである．

Fig. 3 は検出格子としてプローブの中心軸に直角に周期的な金の格子を配置した場合であり，Fig. 3(a)は電子光学系の配置，Fig. 3(b)は投影されたグリッドの二次電子画像，さらに Fig. 3(c)は有限要素法(FEM)によるプローブ先端での等電場強度シミュレーションである．まず Fig. 3(a)において，プローブ先端近傍を通過した一次電子ビーム I は強く散乱され，遠く離れたグリ

ッド AA'に到達する．一方でプローブから離れた電子ビーム II の散乱量は少なく，グリッド BB'に到達する．

プローブ近傍での局在場画像を取得するためには，一次電子ビームを試料面 (x-y 面) 内で走査する．この時，Fig. 3(c)に示すように，プローブ周囲には強い電場勾配が形成されている．Fig. 3(c)の a"点，b"点，c"点は Fig. 3(b)の a 点，b 点，c 点に対応しており，各点での電場ベクトルの向きと強度を x と y 方向成分のベクトルに分解して示している．

今，プローブ軸上の点 a を通過した電子は左端のグリッドと y 軸との交点である a'点に到達していると仮定する．このプローブ中心軸上の等電場線はプローブ軸と直交し，電子ビームに働くクーロン力は電場勾配方向，つまり y 軸方向のみである．

次に，点 b を通過した一次電子ビームに働くクーロン力の方向は等電場線に直交した方向である．また，b 点での電場勾配は a 点よりも強く，より大きなクーロン力が働いているように見えるが，b"点におけるクーロン力の y 方向成分の大きさは，実は a 点と同じである．同様に，c 点に働くクーロン力はさらに大きくなるが，c"点の電場ベクトルに示すように y 軸方向の電場ベクトル成分の大きさも，a"点，b"点と同一である．つまり，a 点，b 点，c 点ともに y 方向の電場ベクトル成分が等しいために，同一の AA'グリッド上に電子ビームが到達し，同心円状のリング画像が形成されるのである．もちろん，x 軸方向の電場ベクトル成分は異なるので，実際のグリッド上では a'点，b'点，c'点と，それぞれ異なる位置に到達することになる．

すなわち，プローブ先端を中心とする円環領域上は，局在電場の y 成分が等しいために，電子ビームは同一の y 方向への散乱偏向を受けて，同一の直線グリッド上に到達する．つまり本来は直線のグリッド像が，SEM 画像の中では円環状に投影されることになる．言い換えれば，局在電場の分布に対して，グリッド線の鉛直方向に対する電場ベクトルの方向余弦が等しくなるような図形が描画される．

注* 実際に電子の受ける y 方向偏向量は数百マイクロンであり，

同心円直径にくらべてはるかに大きい。

同様にして， Fig. 4(a)にはプローブ軸に対して，グリッド線を平行に配置した場合の電子光学系を示す． Fig. 3の場合と同様に，プローブ軸上に照射された電子ビームは同一軸上に散乱されるはずである．つまり Fig. 4(b)の照射位置である点 a と点 b は，プローブ軸上にあるグリッドライン CC'の上に散乱され，プローブ先端から y 軸方向に伸びたグリッド像を形成する．ここで，点 c, d, e で形成されるグリッド像は中心から 2 本目の放射状曲線を形成している．つまりこの放射状曲線上を通過した電子ビームは，中心グリッド CC'から 2 番目のグリッド DD'上に散乱されたことになる． Fig. 4(b)の点 c, d, e に対応する位置での電場ベクトルは Fig. 4(c)の点 c", d", e"に示すように，x 軸方向のベクトル成分が等しい．つまり，x 方向に同一の散乱角偏向を受けたために，同一のグリッド DD'上に到達したことになる．すなわち y 方向に伸びるグリッド線は，局所電場ベクトルの x 方向余弦成分が等しくなるように歪んで投影される．

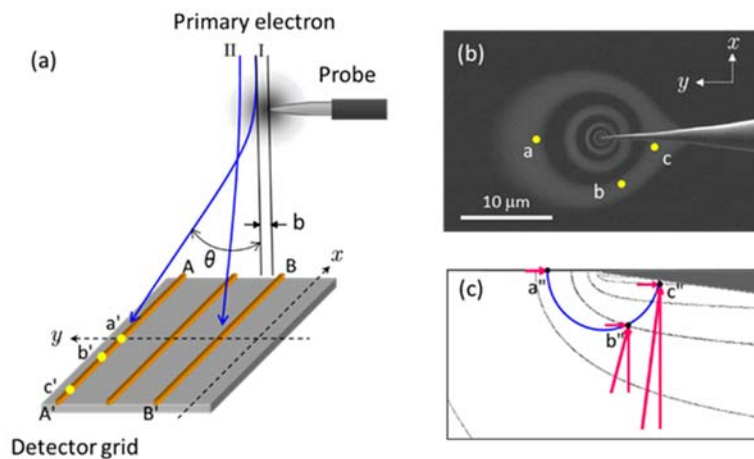


Fig. 3 (Color online) Field visualization methods using orthogonal grid configuration: (a) schematics of the electron beam optics with the orthogonal grids against the probe axis, (b) visualized electric field at the probe apex, (c) FEM

simulation for the E-field contour and the vector components at the point a", b", and c", which occupied the equivalent position of a, b, and c shown in (b).

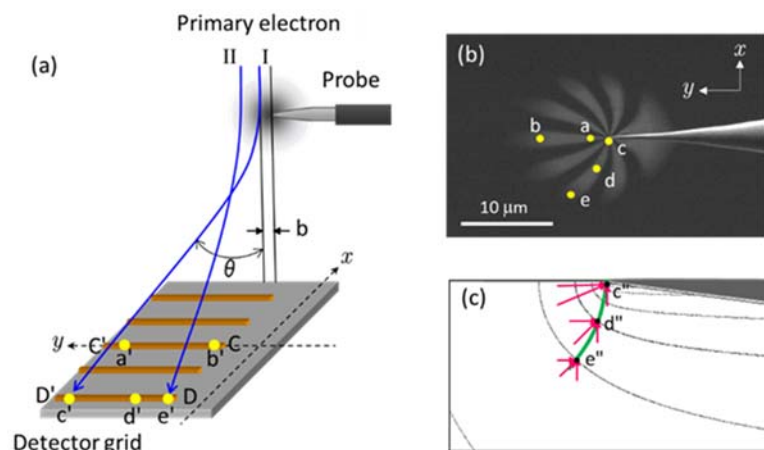


Fig. 4 (Color online) Field visualization methods using parallel grid configuration: (a) schematics of the electron beam optics with the parallel grids with the probe axis, (b) visualized electric field at the probe apex, (c) FEM simulation for the E-field contour and the vector components.

これらの垂直グリッドと水平グリッドを組み合わせた正方格子グリッドを用いて、プローブ近傍の局在場分布を可視化した例を Fig. 5 に、また、想定される空間電場強度分布を FEM シミュレーション、点電荷モデル、実験からの解析結果を比較した結果を Fig. 6 に示す。Fig. 5 に示すように、正方格子グリッドを用いることで、同心円に歪んだグリッド像の上の点 A, B, C, と対応するグリッド格子点 A', B', C' との関連が明確に判別できる。つまり、一次電子ビームの照射位置と正方格子グリッド上の散乱位置の対応から、散乱角を算出することが可能となり、Rutherford 散乱モデルから各点での電場強度を実験的に導くことができる。これを実験結果として Fig. 6 の丸点 (Experiment) として表した。同様に、有限要素法 (FEM) シミュレーションの結果を菱形点 (Simulation) として示した。

さらに，プローブ先端に点電荷が存在すると仮定し，プローブ先端から $4\ \mu\text{m}$ の距離で実験値と整合するように電荷量を調整してプロットしものを四角点(Point charge)として示した．もちろん，点電荷モデルではプローブ先端での電場強度は無限大に発散し，プローブ先端近傍での電場強度分布を再現させることはできない．一方で，実験的に求めた局在電場強度と FEM シミュレーション結果の整合性は比較的良好であることがわかる．

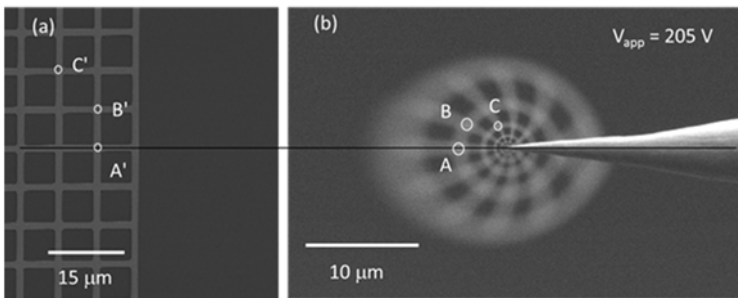


Fig. 5 Field visualization methods using square mesh grid. (a) SEM image of the grid, and (b) visualized electric field at the probe apex.

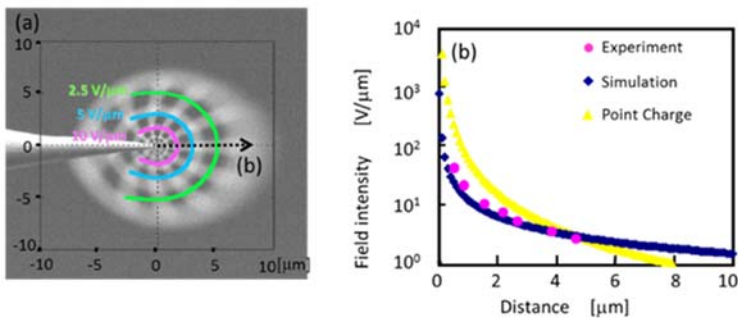


Fig. 6 (Color online) Field visualization methods using square mesh grid. (a) SEM image of the grid, and (b) visualized electric field at the probe apex.

このような Rutherford 散乱を用いた局在場可視化のメリットは，電場や磁場の空間分布を可視化できる点にある．

Fig. 7 には，接地面とプローブ間の空間電場分布を示す．

Fig. 7(a)は接地面として有限サイズの接地面（ワイヤの端面）

と Fig. 7(c)は無有限大の接地面（実際にはプローブとの空間よりも十分に広いグランド面）とプローブ先端の間に形成される電場分布を示した．また，Fig. 7の(b)，(d)は，(a)と(c)に対応するFEMシミュレーションであり，電場強度のx成分およびy成分を個別に抽出し，それらの等高線を描いている．FEMシミュレーションと実際に観測されるグリッド画像の特徴が非常によく一致していることがわかる．ただし，プローブ先端に形成される同心円リング形状の影像是あくまでも電場ベクトルのx成分とy成分を反映したものであることを認識しておく必要がある．

点電荷周囲に形成される同心球に分布する電場やポテンシャル分布の連想から，プローブ先端には球状の電場が形成されているように錯覚し，本手法で視覚化されるプローブ先端の同心円上の影像から，同心円上の電場もしくは電位分布が形成されているように感じるが，導電体の針の先端は，実際には全く異なった電場分布となる．しかし，一方で，触媒担持体上に真に点電荷の局在が形成されれば，それらの分布を反映した影像が得られるはずである．

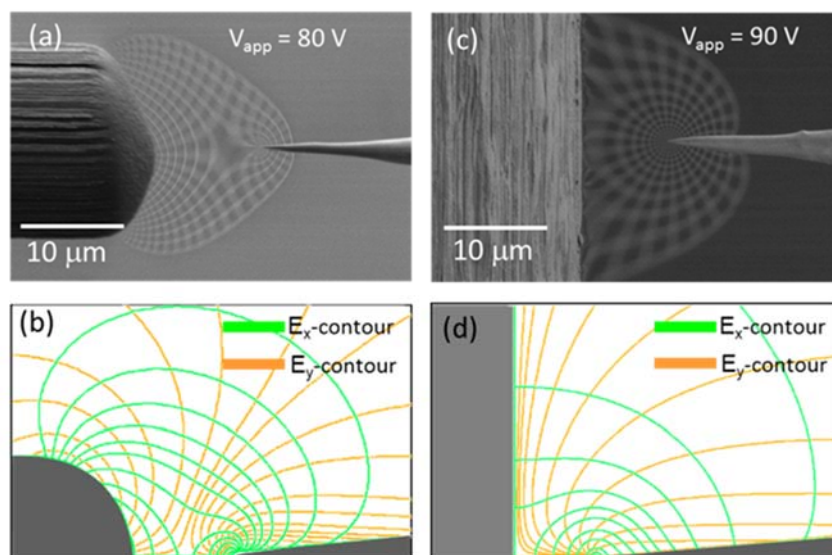


Fig. 7 (Color online) Field visualization at the space facing to (a) the convex grand surface and to (c) flat grand surface. (b) and (d) are the FEM simulation regarding (a) and (c), respectively.

4. 局在磁場の可視化

局在電場と同様に局在磁場も，本 Rutherford 散乱法によって可視化を行うことができる．ローレンツ顕微鏡は，どちらかと言うと磁性薄片試料内部の磁区構造を観測することを得意分野とする．これに対して，本手法では一次電子線エネルギーが低い分だけ，高感度に試料近傍の磁場分布を可視化できるものの，電子線エネルギーが低いために逆に試料内部を透過することはできず，内部磁区構造を可視化することは難しい．

Fig. 8 に局在磁場可視化の電子光学系配置を示す．基本的に，グリッドによる局在電場可視化と同一のものである．違いは，Coulomb 散乱は電場ベクトルと同一方向であるのに対して，磁場による散乱は，すなわちローレンツ力による散乱となり，散乱力 F_e の方向が電子速度（電流）と局在磁場の外積，すなわち

$$F_e^{\rho} = ev_0^{\rho} \times B^{\rho}$$
となる点である．

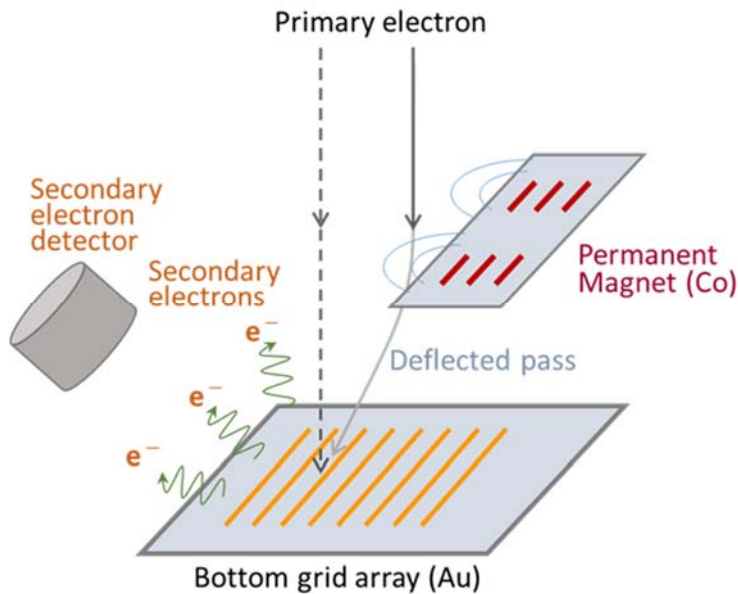


Fig. 8 (Color online) Schematic of the beam optics configuration for the magnetic field visualization.

Fig. 9 に実際の局在磁場可視化の様子を示す．ここで用いている試料は，厚さが 200 nm のコバルトの薄膜ドットアレーである．個々の Co ドットは，長さ 10 μm ，幅 2 μm の形状であり，長軸方向のピッチを 30 μm ，短軸方向のピッチを 15 μm で規則的に配置したドットアレーである．試料位置と Au グリッド検出器との距離は 22 mm，また，SEM の電子線加速度は 1 keV となっている．Fig. 9 の (a) と (b) に示す SEM 像上半分は歪んだグリッドの投影像であり，下半分は Si 基板エッジに配置されている Co ドットである．Co ドットの周囲で，それぞれ水平方向の検出グリッドと，垂直方向の検出グリッドの形状が，局在磁場を反映して大きく歪んでいるのがわかる．

この時，Fig. 9(c) に示すように，Co ドットの上部左端は N 極に，また，上部右端は S 極に帯磁している．つまり磁力線は図に示すような円弧を描いて N 極から S 極に向かって流れている．ここで，N 局近傍の点 A を通過する一次電子ビームは磁力線と直角に左上部方向へのローレンツ力を受けて A' 点に到達する．同様に B 点を通る電子ビームは B' 点に散乱される．本来，A 点，B 点の直下にはグリッドは存在しない．しかし，それぞれの電子ビームが A' 点，B' 点に散乱された結果，この位置に存在するグリッドから放出された二次電子を，あたかも点 A および点 B 位置でグリッドを検出したかの如く SEM 画像中には現れたのである．本来直線のグリッドがドット間を橋渡しするような曲線を描いて描画され，局在電場の可視化と同様に磁場分布を反映した形状に観察されることになる．同様に垂直グリッドを用いた場合も，Fig. 9(d) に示すように，c 点を通る電子ビームは c' 点に散乱され，d 点を通る場合には d' 点に散乱され，Co ドットから発散するような形状に変形したグリッド像が投影されることになる．

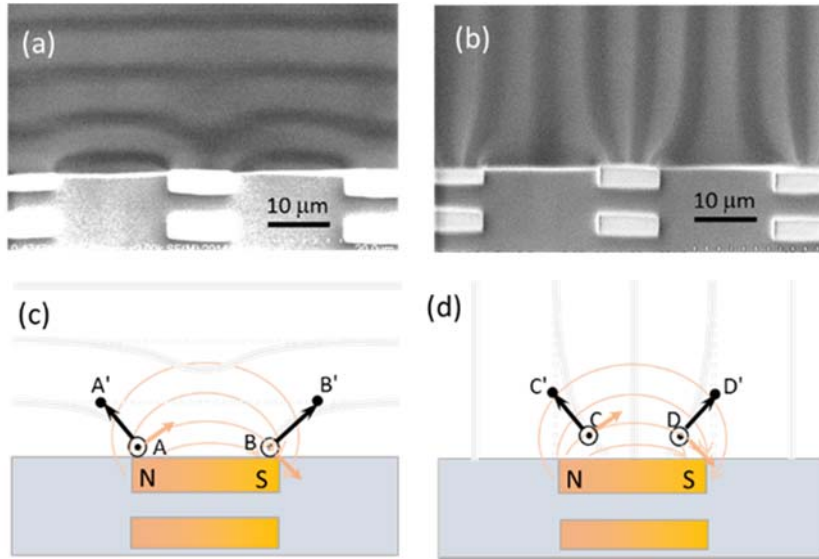


Fig. 9 (Color online) Typical examples of the visualized field images using (a) a horizontal grid and (b) a vertical grid. Illustrations of the corresponding deflection schemes are shown in (c) and (d), respectively.

次に，具体的な局在磁場強度の解析について述べる．点電荷で近似される局在電場による散乱は Rutherford 散乱モデルで良く近似されることはすでに述べた．実は，この近似結果つまり $E = Vd/bL$ で，その散乱角度

$$\tan \theta \cong \theta = \frac{Eb}{V} = \frac{2Eeb}{mv_0^2}$$

は，内部電界 E で長さ $2b$ の平行平板コンデンサーを速度 v_0 の電子が通過したときに受ける偏向角度

$$\tan \theta = \frac{v_h}{v_0} = \frac{1}{v_0} \frac{eE}{m} \left(\frac{2b}{v_0} \right) = \frac{2Eeb}{mv_0^2}$$

と等価である．実際の点電荷による散乱は無限遠から無限遠への双曲線関数となるが，それらの微弱に広がる空間電場からの寄与を，実質的には厚さ $2b$ の平行平板コンデンサーによる電子線偏向に置き換えることができる．本来磁場は磁場双極子が形成されるが，腕が十分に長い双極子であれば，その片方の磁極近傍を

Rutherford 散乱と同様に取り扱うことが可能であると仮定する。つまり、電場の場合と同様にして、Fig. 10 に示すように、Co ドットの磁極から l_z 離れた位置での磁場（磁束密度）は厚さ l_z の空間での磁界による偏向とみなす。厚さ l_z の空間を通過した後の水平方向の電子の持つ速度は、

$$v_h = -\frac{ev_0B}{m_e} \left(\frac{l_z}{v_0} \right)$$

であり、偏向角 θ は、

$$\tan \theta = \frac{v_h}{v_0} = \frac{eBl_z}{m_e v_0}$$

となる。このような磁場散乱を仮定すると、Fig. 10(b) に示すように、グリッドラインの曲がり具合から電子ビームの偏向量、しいては、その該当位置での磁束密度を算出することができる。例えば、点 A では、本来の水平グリッド位置から SEM 画像上で約 $4 \mu\text{m}$ のゆがみを記録している。しかし実際にはグリッドと試料面との距離が 22 mm 離れており、実際のビームの偏向量は $5.3 \mu\text{m}$ であることが電子光学系の補正係数から判明している。つまり、この場合、電子線偏向角度は 0.24 mRad である。さらに A 点位置をドットエッジから、つまり磁極から $4.5 \mu\text{m}$ と見積もると、A 点での磁束密度は 55 G と推定できる。同様にして B 点では $3.3 \mu\text{m}$ グリッドの歪みがあり、約 0.2 m Rad の電子線偏向量があり、約 14 G の局在磁場であると推定される。ここで注意しておかなくてはならないことは、水平グリッドを用いており、その上下方向の歪み量かから磁束密度を算出している事、つまり、ここで算出される磁束密度は水平グリッド方向の磁場成分である。磁場の垂直成分に依存する電子線偏向は水平グリッドを用いている限り、検出されない。

垂直グリッドを用いて局在磁場を可視化した Fig. 10(c) の場合も同様である。この場合も、グリッド影像の歪みはグリッドと同一方向の磁場強度を反映する。まず、Fig. 10(c) の点 C では、グリッド影像の歪みはない。すなわち、この位置でのグリッド方向の磁束密度はゼロである。実際に、ドットの中央であるから、この位置での磁力線はドットと並行であり、垂直成分はゼロであ

る．さらに，点 D のドットの角から $1 \mu\text{m}$ の位置のグリッド歪みから電子線偏向量は 0.17 mRad であり， 116 G の磁束密度となっている事が予測される．これは，Co の保持力を 500 Oe と仮定した場合²⁸⁾の FEM シミュレーションで同程度の磁束密度が算出されている．

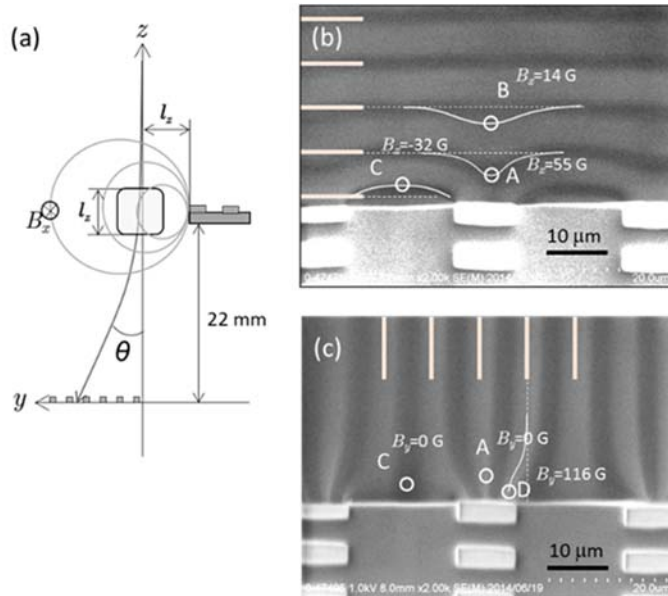


Fig. 10. Analysis of the field strength by assuming (a) cylindrical field distribution in the y - z plane, the (b) x -component, and (c) y -component of the local magnetic field are estimated.

本実験では，試料近傍でネオジウム磁石を非接触に動かして Co ストライプアレーを帯磁させている．この時のわずかな移動方向のずれで，ストライプアレーの着磁方向が変化する．Fig. 11における，Co ストライプアレー近傍で可視化した局在磁場は，Fig. 11(b)では右肩上がりのグリッド歪影像になっており，Fig. 11(c)では左肩上がりのグリッド歪影像となっている．つまり，アレー全体として(b)では斜め右上方向に着磁しており，(c)では斜め左上方向の着磁となっている．ここで，Fig. 11(b)の点 A に着目すると，ストライプエッジから $50 \mu\text{m}$ 離れた位置での

グリッド歪み量は $1 \mu\text{m}$ であり，約 0.5 G の磁場を検出していることになる．

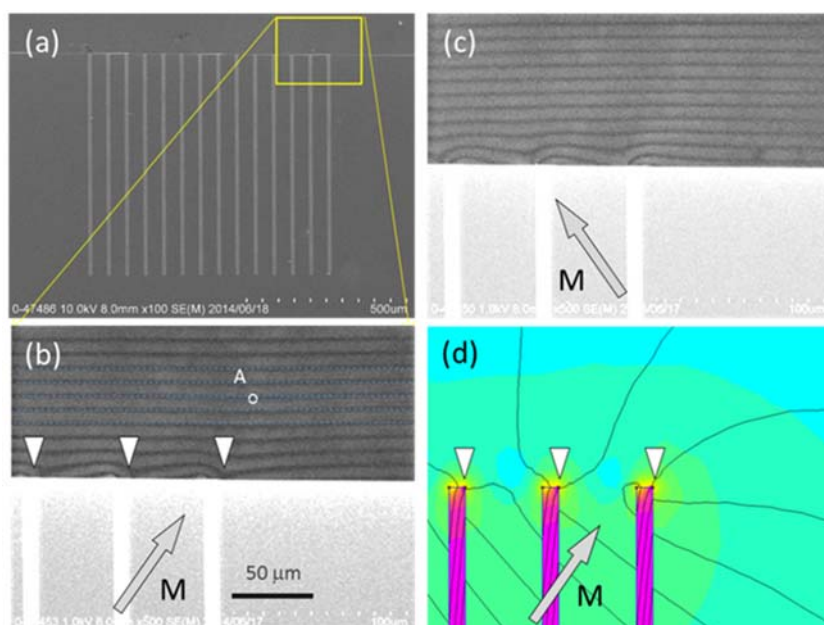


Fig. 11. (Color online) Example of collective magnetization: (a) SEM image of the entire shape of the stripe array, (b) the local magnetic field image with right-hand tilted magnetization, and (c) the local magnetic field image with left-hand tilted magnetization. (d) The local magnetic field in the top right corner (indicated by the white arrow) of each stripe is larger than that in the left corner in the FEM simulation, in good agreement with the field image in (b).

5. さらなる高感度化に向けて

ここまでに紹介した局在場の可視化技術では，本来であればより高倍率の観測が可能なセミ・インレンズ型の電子顕微鏡 S-4800 を用いながら，実は，対物レンズを励磁しない低倍率観測モードを利用している．第 2 コンデンサーレンズと偏向コイルで集束された電子は f 値が大きく，試料面での集束とともに，その下流側約 $20\sim 30 \text{ mm}$ 位置に設置されたグリッド像もある程度画像化できる．この焦点深度の深さを利用したのが，3 章，4 章で

紹介した電場と磁場の可視化技術である。しかし、 f 値が大きい分、ビームの集束が弱く高倍率には適さない。S-4800 が本来有する、高い空間分解能を得る条件で同様の電子ビーム散乱を実施しようとする、図 12(b)に示すように、 f 値が小さい分、検出グリッド面でのビーム発散が大きくなってしまい明瞭なグリッド像を得ることはできない。このグリッドを用いる局在場可視化の本質は、電子ビームの変位量をグリッド形状（線）の歪みとして捉えようとすることに原因がある。

これを回避する方法は、簡単である。グリッドの使用をやめて、面でのビーム受光量変化を捉えればよい。すなわち、S4800 を走査透過電子顕微鏡として機能させ、多分割の面電子検出器を用いた 1 次電子線検出によって画像を取得すればよい²⁹⁻³¹。多分割の高角散乱電子（**high-angle annular dark-field: HAADF**）を用いることも可能である。さらに、検出感度を上げるには、散乱後の拡大電子投影系を設置するか、もしくは簡易には検出器までの距離を増やせばよい。

もちろん、散乱した電子ビームの面電子検出器（高感度の固体 pn ダイオードや、シンチレータ検出器）への入射率を画像化するので、プローブ先端での局在場はグレースケールの濃淡像となる。ただし、一般的な蛍光電子線シンチレータとフォトマルを用いた検出系は、最低でも 5 keV 程度の電子線エネルギーを必要とし、1 keV の電子線を検出することは難しい。この点で、pn 接合ダイオードを用いた一次電子線検出器を用いると 100 eV 程度の極低加速電子線をも検出することが可能である。

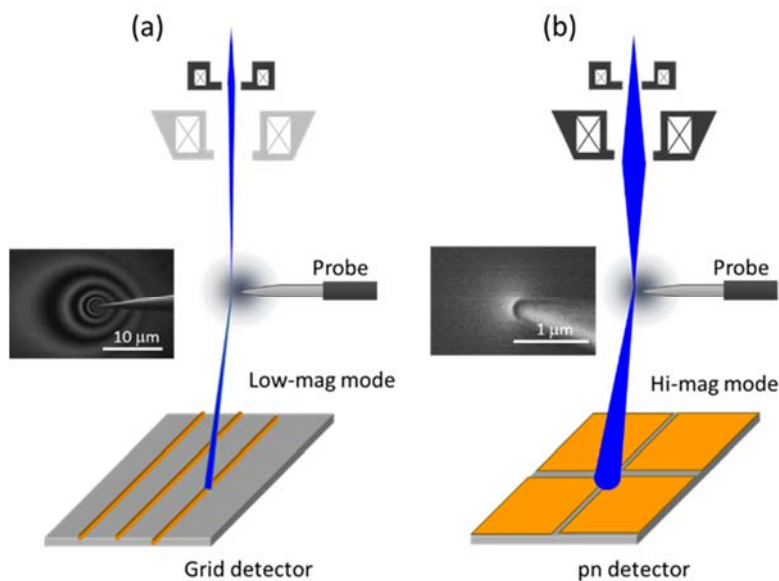


Fig. 12 (Color online) Schematics of the objective lens operation mode for (a) Low-mag. mode, and (b) High-mag. mode.

Fig. 13 に、S-4800 の高倍率モードと pn 型半導体検出器 (Gen5, Deben Co. Ltd. UK) を用い、プローブ先端の局在場を可視化した例を示す。ここでは、タングステンプローブへの印可電位は -50 V, SEM の電子線加速は 10 keV, 倍率は 20000 倍, 検出器までの距離は 140 mm である。プローブ軸と直交したグリッド検出器と同様に、pn 半導体検出器のエッジがプローブ軸と直交している。このために、ここで可視化されている明領域はプローブ軸を基準とした、電場の余弦成分である。画像倍率の上昇とともに、空間分解能が向上し、 100 nm 以下の分解能が得られている。検出器エッジとプローブとの距離（つまり散乱角）を変えながら空間分布画像を取得し、グレースケールの中階調で領域境界を塗り分けることで、その散乱角に対応した電界強度分布画像が得られる。この操作を 3 回繰り返して画像を重ね合わせると、Fig. 13 に示すような 3 階調での電界強度マップが得られる。ここに示した 3 階調の強度マップは、下半分に示す FEM シミュレーション結果とも良く一致することがわかる。

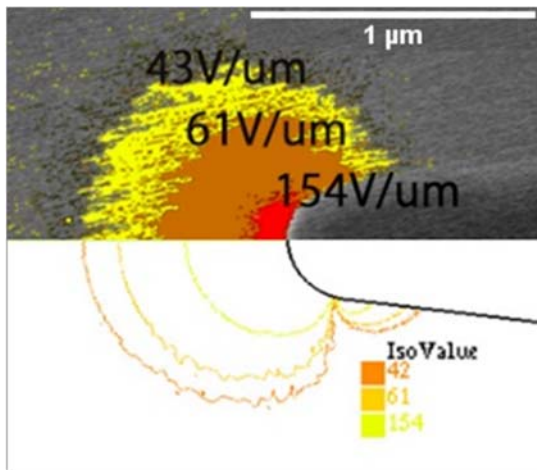


Fig. 13 (Color online) Typical examples of the visualized field images using high mag mode with solid state diode detector.

さらに，カーボンナノチューブ（CNT）のフォレスト試料を用いて，CNT先端部に現れる局在場の可視化を試みた結果を Fig. 14 に示す．この例では，電子加速電圧を 3 keV に下げ 60000 倍での観測を行っている．Fig. 14(a) は試料に対する通常の SEM 像であり，CNT は白いコントラスト，つまり試料表面からの 2 次電子像として描画されている．一方で，Fig. 14(b) は pn 検出器からの出力を投影したものであり，CNT は明視野 STEM 画像に特有の黒いコントラスト（影）として映し出されている．さらに，CNT 先端には白い領域が観測され，この領域を通過した電子線が pn 検出器に到達して，明領域を形成している．ここに見られるように，複数の CNT の先端の帯電状態が同時に観測される．また，(c) に示す CNT 先端での局在場を 60000 倍に拡大して撮影したのが (d) の画像である．明領域の最外周部では約 $6 \text{ V}/\mu\text{m}$ の電界強度となっており，この画像を作り出す局在電荷は電子約 600 個であると推定される．この局在場可視化では，CNT の軸方向と検出器エッジとが直角に向き合っていないために，局在場の分布が CNT に対して左右非対称になっている．つまり，CNT 軸から時計周りに数度回転した軸方向の等電場強度をマッピングしているためである．

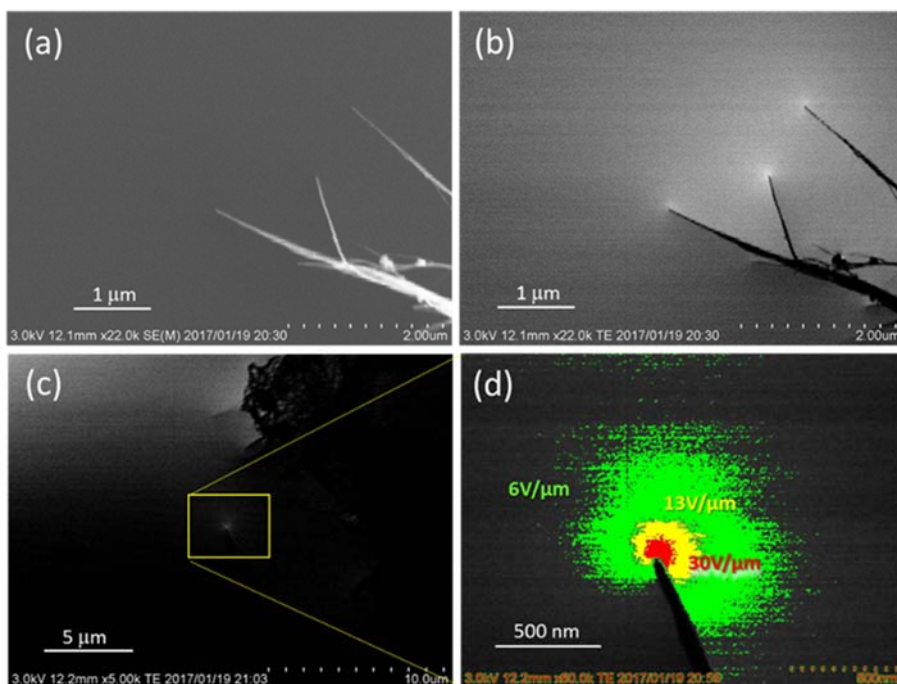


Fig. 14 (Color online) Typical examples of the visualized field images appeared at the tips of the CNT forest.

(a) SEM image of the CNT forest, (b) and (c) showed the dark field detector images where bright spots appeared at the CNT tips, (d) shows the contour map of the electric field distribution.

6. 最後に

本解説で示した，CNT先端に誘起される局在電場や磁性ドット周囲の磁場分布は，本解説で示したような手の込んだ可視化技術を用いなくても，簡単な計算で予測できるし，FEMやFEMMソルバーを用いればより詳細な磁場電場分布が容易に求まる．しかし，実際に科学技術を支えるのはやはり「百聞は一見に如かず」であり，実際にその局在場を見て，可視化してこそ，次の技術展開に向けた有用な情報が得られるのではないだろうか．本研究の目的も，冒頭に記述した通りで，触媒反応の最中にどのような局在場の形成が進行し，変化していくかを実際に可視化して観測しようと企てて研究室を挙げて精力的に研究を継続している最中である．技術の進歩は非常に早く，本研究を継続している間に

も、より高性能な球面波補正低加速 STEM を用い、4 分割さらには 16 分割の HAADF 検出器とを組み合わせた局在磁場分布が発表されている。高価な装置と時間をふんだんに使った研究はもちろん素晴らしいが、本解説で述べたような、比較的簡易な普及型電子顕微鏡を持っても、それなりに高感度な局在場の可視化が可能である。さらに走査電子顕微鏡の試料室は TEM に比べればはるかに容積が大きく、装置配置の高い自由度がある。本解説記事が、局在場可視化に興味を持たれ、新たな発想を生み出す原動力となって、多くの研究・技術開発の現場で役に立てば幸いである。

謝辞

本解説は、多くの方々との共同研究の成果をもとにまとめたもので、参考文献に示す論文の共著者の方々に感謝いたします。また筑波大学ナノプラットフォーム、NIMS ナノプロットフォーム、JST-CREST, JST-PRESTO, 基盤研究 (A), 萌芽研究, NEDO にもお礼申し上げます。

[文献]

- 1) P. G. Merli, G. F. Missiroli and G. Pozzi,
Phys. Status Solidi, 16 (1973) K89.
- 2) P. G. Merli, G. F. Missiroli and G. Pozzi,
Phys. Status Solidi, 30 (1975) 6
- 3) Nitta, F. E. Meijer, and H. Takayanagi,
Appl. Phys. Lett., 75 (1999) 695.
- 4) N. Sato, K. Sekiguchi, and Y. Nozaki,
Appl. Phys. Express, 6 (2013) 063001.
- 5) H. J. Chia, F. Guo, L. M. Belova, and R. D. McMichael,
Phys. Rev. Lett., 108 (2012) 087206.
- 6) K. Tada, J. Haruyama, H. X. Yang, M. Chshiev,
T. Matsui, and H. Fukuyama,

- Phys. Rev. Lett., 107 (2011) 217203.
- 7) T. Shimizu, J. Nakamura, K. Tada, Y. Yagi, and J. Haruyama, Appl. Phys. Lett., 100 (2012) 023104.
 - 8) D. Rugar, R. Budakian, H. J. Mamin, and B. W. Chui, Nature, 430 (2004) 329.
 - 9) D. Gabor, Nature, 4098 (1948) 777.
 - 10) G. Möllenstedt and H. Düker: Naturwissenschaften, 42 (1955) 41.
 - 11) G. Möllenstedt and H. Düker, Zeitschrift für Physik, 145 (1956) 377.
 - 12) A. Tonomura, Rev. Mod. Phys. 59 (1987) 639.
 - 13) M. Lehmann, H. Lichte, Microsc. Microanal., 8 (2002) 447.
 - 14) R. E. Dunin-Borkowski, M. R. McCartney, R. B. Frankel, D. A. Bazylinski, Mi. Pósfai, P. R. Buseck, Science, 282 (1998) 1868.
 - 15) M. R. McCartney and D. J. Smith, Annu. Rev. Mater. Res., 37 (2007) 729.
 - 16) R. E. Dunin-Borkowski et al., Micros. Res. and Tech., 64 (2004) 390.
 - 17) H.-W. Fink, W. Stocker and H. Schmid, Phys. Rev. Lett., 65 (1990) 1204.
 - 18) P.J. Grundy and R. S. Tebble, Adv. in Physics, 17 (1968) 153.
 - 19) D. Wohlleben, J. Appl. Phys., 38 (1967) 3341.
 - 20) A. Tonomura, H. Kasai, O. Kamimura, T. Matsuda, K. Harada, Y. Nakayama, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri, K. Kitazawa, M. Sasase and S. Okayasu: Nature, 412 (2001) 620.
 - 21) 佐々木勝寛,黒田光太郎,坂君恭, 顕微鏡,41 (2006) 54-56.
 - 22) K. Sasaki and H. Saka, Mater. Sci. Forum, 475-479 (2005) 4029.

- 23) J. Fujita, Y. Ikeda, and I. Suzuki,
Jpn. J. Appl. Phys., 48 (2009) 06FG02.
- 24) J. Fujita, Y. Ikeda, and I. Suzuki,
J. Vac. Sci. Technol. B, 26 (2008) 2069.
- 25) J. Fujita, Y. Ikeda, S. Okada, K. Higashi, and
S. Nakasawa, J. Vac. Sci. Technol. B, 25 (2007) 2624.
- 26) J. Fujita, Y. Ikeda, S. Okada, K. Higashi,
S. Nakazawa, M. Ishida, and S. Matsui
Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) 498.
- 27) K. Yoshida, K. Murakami, and J. Fujita,
J. Vac. Sci. Technol. B, 32 (2014) 06FC02.
- 28) N. Deo, M. F. Bain, J. H. Montgomery, H. S. Gamble,
J. Material. Science, 16 (2005) 387.
- 29) S. McVitie, D. McGrouther, S. McFadzean,
D. A. MacLaren, K. J. O' Shea, M. J. Benitez,
Ultramicroscopy 152 (2015) 57.
- 30) M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Wachter,
T. Wunderer, F. Scholz, and J. Zweck,
Ultramicroscopy, 117 (2012) 7.
- 31) 柴田直哉, 顕微鏡, 47 (2015) 157.
- 32) J. Cuming, A. Zettl, M. R. McCartney, and
J. C. H. Spence, Phys. Rev. Lett., 88 (2002) 056804.