

収差補正器のSTEM (HD-2700), TEM (HF-3300S), 1.2 MV FIRSTプログラム向け開発, そして将来への展望

Prof. Dr. Max. Haider

Dr. Heiko Müller

【特集監修者抄録】

電子顕微鏡では、電子レンズが持つ球面収差により、分解能向上が長らく阻まれてきた。1990年代中盤ようやく、この球面収差を補正する装置が開発された。しかし、高加速電圧なSTEM・TEMへの搭載には多くの技術課題があった。日立製作所・日立ハイテクノロジーズでは、球面収差補正器の実用化開発を進めるCEOS社と共同で、球面収差補正器を搭載した200 kV STEM, 300 kV TEMを開発し、分解能の大幅な向上を実現した。さらに1.2 MV原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡への搭載にも

成功し、世界最高分解能の達成に大きく貢献した。これらの開発では、高電圧・超高電圧に対応した球面収差補正器の開発とともに、電子顕微鏡本体も安定性を大幅に高める必要があり、緊密な協力体制により、技術課題を一つ一つ解決していった。

本稿では、CEOS社を創設し、球面収差補正器の開発を率いてきたMax. Haider氏に、CEOS社と日立製作所・日立ハイテクノロジーズとの共同開発を総括していただいた。

1. はじめに

球面収差補正器Csコレクタ^{※訳注1)}の、高分解能200 kV透過電子顕微鏡(TEM:Transmission Electron Microscope)¹⁾、走査透過電子顕微鏡(STEM:Scanning Transmission Electron Microscope)への搭載の成功は、新世代の高分解能TEM/STEM装置の開発を刺激した。Csコレクタの研究試作によって、既存の電子顕微鏡は、ルーチン的に原子分解能像を得るためには、電気的・機械的な安定度をあらかじめ十分に持っていたわけではないことが極めて明白になった。この論文では、画期的な、収差補正された電子顕微鏡を提供するために、株式会社日立製作所・株式会社日立ハイテクノロジーズと共同で行ってきた努力と開発を総括する。カナダのケベック州で開催されたMicroscopy & Microanalysis 2003での最初の議論の後、初めに我々は日立STEM専用機HD-2700用六極子型プローブコレクタ^{※訳注2)}の開発に専念した。それ以降、このタイプのシス

テムはおよそ30台が導入された。その後、冷陰極電界放出型電子銃(C-FEG:Cold Field-emission Gun)を搭載した日立新型300 kV高分解能(S)TEM HF3300Sを用いて、広い視野径と磁界フリー(Lorentz)結像に高い能力を有する三段六極子型のイメージングコレクタ^{※訳注3)}の開発を継続した。最近では、外村氏のFIRSTプログラムの枠組みで、1.2 MV原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡用のイメージングコレクタを提供した。我々の次のステップは、HF3300S装置の300 kV C-FEGの高分解能と分析能力を完全に開拓するために、この装置に、進化した六極子型プローブコレクタを日立製作所・日立ハイテクノロジーズと共同で搭載することである。

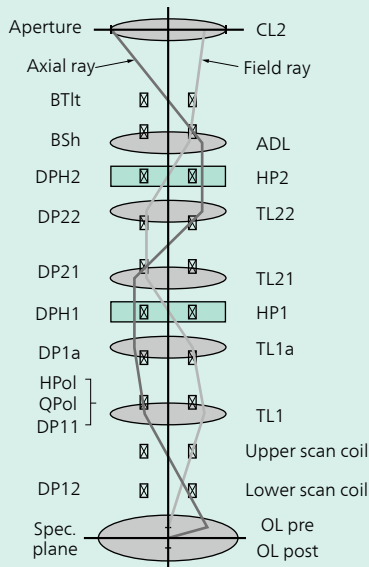
2. 200 kV STEM専用機用プローブコレクタ

最初に理論コンセプト²⁾としてRoseによって提案された六極子型Csコレクタは、200 kV TEMにイメージングコレクタとして搭載されて成功した¹⁾。このコレクタ(図1参照)は、三対称の磁場を生成する2つの強い六極

※訳注1) Csコレクタ:球面収差補正器。電子顕微鏡の電子レンズの収差には、主に球面収差Csと色収差Ccがある。Csコレクタは、球面収差(Cs)を補正(Correct)する。

※訳注2) プローブコレクタ:電子ビーム(プローブ)照射系の収差補正器。電子ビームを「探針」の意味合いで「プローブ」と呼んでいる。STEMでは試料上で電子ビーム(プローブ)を走査するが、このプローブの収差を補正する。

※訳注3) イメージングコレクタ:結像系の収差補正器。TEMの透過像を結像させる電子光学系の収差を補正する。



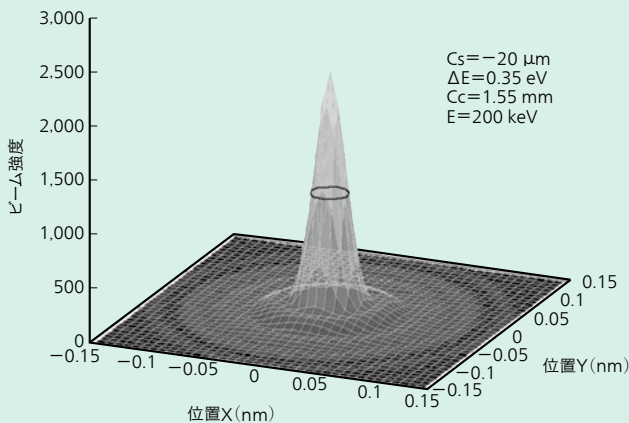
注：略語説明 CL (コンデンサーレンズ), ADL (アダプターレンズ), OL (対物レンズ), TL (トランスファーレンズ), HP (六極子要素), DP, QP : 多極子要素 [DP (双極子要素), QP (四極子要素)]

図1 | STEM用六極子コレクタの概略図

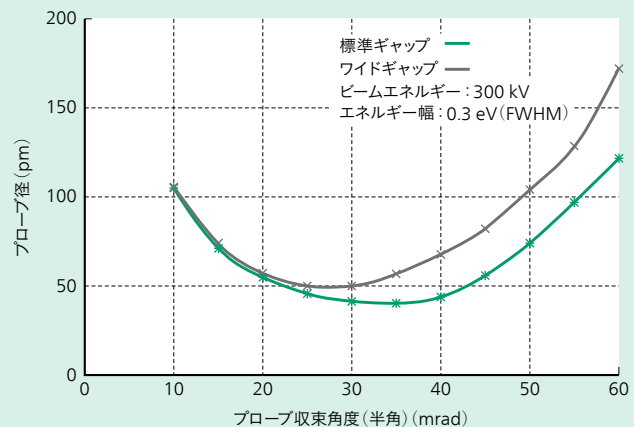
このコレクタは、対物レンズ (OL) と第一の六極子要素 (HP1) の間に2つのトランスファーレンズ (TL1, TL1a) を持ち、2つの六極子要素 (HP1, HP2) の間に第二のトランスファーレンズダブレット (TL21, TL22) を持つ。弱い多極子要素 (DP, QP) を追加することで、光線軌道と焦点面を必要とおりに正確に整列することができる。暗い灰色の光線は軸上軌道 (axial ray), 明るい灰色の光線は軸外軌道 (field ray) を示す。

子要素で構成される。1つ目の六極子場は強い三回対称の非点収差を作るが、この非点収差は2つ目の六極子場で補正されなければならない。これは、2つの六極子要素の間

に2つのラウンドレンズを配置することで達成できる。さらに、収差補正器ユニットは対物レンズと適切な方法で光学的に一致しなければならない。これは、対物レンズと収差補正器ユニットの間に再度ラウンドレンズを追加することで行われる。強い三回対称の非点収差は、光学的に共役な面に配置された2つの長い六極子要素によって生成されて補正され、二次的な効果として、負の三次の球面収差を作る。この効果が、対物レンズの球面収差を補正するのに用いられる。非常に似たデザインがプローブを作る系にも用いられる。図1はSTEM用六極子型Csコレクタの概略図である。このデザインの簡潔さが、最後の数年に渡る成功の基本となっている。TEMにおける球面収差補正の主な利点は、空間的な非局在性による画像の乱れや位相反転が無く、装置の情報限界まで適切な位相コントラストが得られることである。STEMにおいては、最も重要なパラメータは、プローブを作る系で、どこまでの絞り径が使用可能か、トータル電流が得られるかである。Csコレクタは、プローブサイズを保持したまま、またはむしろ小さくした状態で、プローブの半角を大きくできる。この場合、分解能はもはや回折によって制限されず、電子源の輝度によって制限される。達成できるプローブ形状とプローブ径を図2に示す。輝度以外に、電子銃のエネルギー幅も、特に80 kV以下のエネルギーで使用するときには、電子プローブの鋭さのための重要なパラメータである。日立HD-2700は、本質的にエネルギー幅が小さいC-FEGを搭載し



(a) プローブ (電子ビーム) の形状の一例



(b) プローブ径の計算結果 (ゼロ電流限界※)

注：略語説明はか Cs (球面収差), Cc (色収差), ΔE (エネルギー幅), E (ビームエネルギー)
※プローブ電流がゼロとなる極限まで縮小したときのプローブ径のこと。

図2 | プローブ (電子ビーム) の形状の一例とプローブ径の計算結果

(a) 一例として200 kVの電子プローブのプローブ形状を示す。小さい輪はFWHM (半値幅) である。プローブ形状は電子プローブのエネルギー幅 (ΔE) の影響を受ける。(b) プローブ収束角度に対するプローブ径の計算結果を示す。標準ギャップではワイドギャップよりも色収差が小さく、色収差がプローブ径に与える影響が容易に分かる。標準ギャップでは、より大きなプローブ収束角度まで対応できて、高い分解能と大きなプローブ電流が得られる。

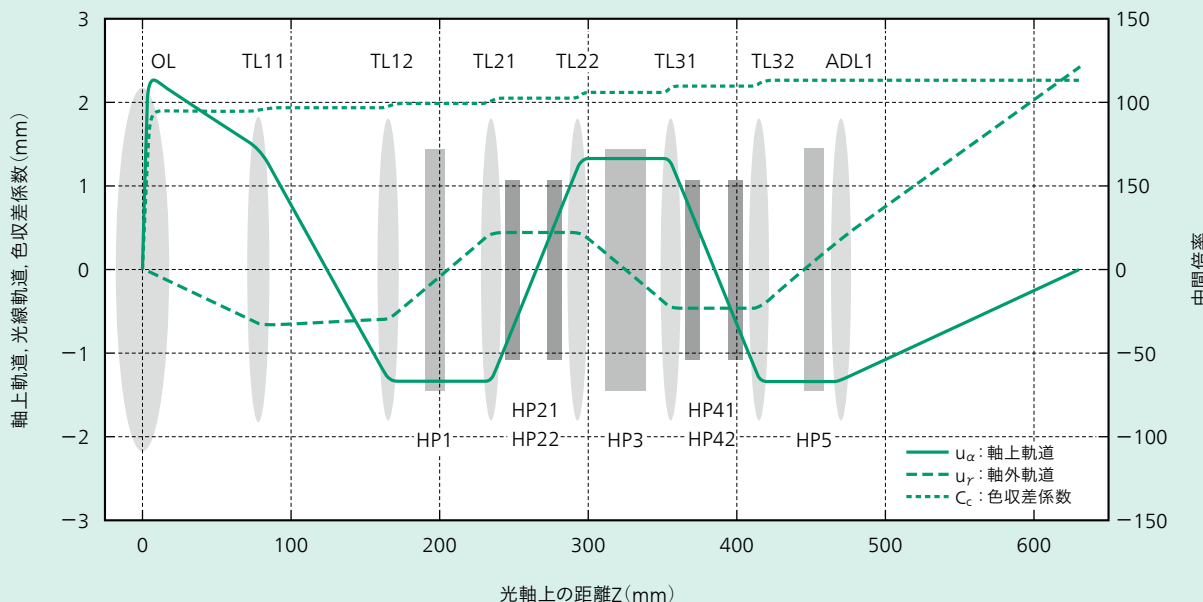


図3 対物レンズ (OL) からコレクタの下に位置する第一中間像までのB-CORデザインの光線軌道

軸上軌道 u_{α} 、軸外軌道 u_{γ} 、色収差係数 C_c がプロットされている。明るい灰色の箱は強い六極子トリプレットHP1/HP3/HP5を示し、暗い灰色の箱は反対称な弱い六極子ダブルットHP21/HP22とHP41/HP42の位置を示している。さらに7つの全てのトランスファーレンズが示されている。右側軸の中間倍率は、収差補正システムにおいて、対物レンズ平面 ($Z=0$) に対して、システム内の中間平面 ($Z=0\sim 620$) で、視野径 (軸外軌道で示される) が広がっていく様子を示す。

ており、したがってサブオングストローム空間分解能と分析能力を備えもつ、優れたプラットフォームを提供する³⁾。二次電子 (SE: Secondary Electron) 信号の検出によって、原子分解能を得ることさえも可能である⁴⁾。

3. 300 kV TEM用の無収差 (aplanatic) イメージングコレクタ

2つの六極子のイメージングコレクタを搭載したTEMは、半無収差 (semi-aplanatic) である。完全に無収差 (aplanatic) なシステムのためには、対物レンズに残った軸外収差^{※訳注4)}も補正されなければならない。軸外の寄生収差^{※訳注5)}も制御されなければならない。これは、分解能が同等の像点の数を数百点から数千点に増大させることになる。最も重要な軸外収差は、軸外コマと、視野を横切るさまざまな二回対称の非点収差である。3つの六極子のデザインは、六回対称の非点収差を含む五次までの全ての軸上収差と、三次までの全ての軸外収差を補正することができる⁵⁾、⁶⁾。そのような無収差 (aplanatic) コレクタの概略図を図3に示す。この新しいデザインは、HF3300S型TEM用のイメージングコレクタとして搭載され、成功を収めた。この無収差 (aplanatic) コレクタでは、30 mrad以上の有効径の結像絞りをを用いて、無収差で結像することができ

※訳注4) 軸外収差: 軸外の点からの電子線が像面上で1点に結像しない収差。コマ収差・非点収差など。

※訳注5) 寄生収差: レンズの材料不均一や機械加工精度・光軸不一致などによる残留収差。

る。加速電圧300 kVにおいて情報限界が70 pmを下回ることが示されている (図4参照)⁷⁾。重要な特徴として、このコレクタは、関連する軸上収差と方位角軸外コマを含む低次の軸外収差を容易に調整できる。図5に軸外寄生収差の補正前後の効果を示す。この改善は、4k x 4kまたは8k x 8kカメラを用いても無収差結像できる広い視野を保証するのに役立つ。この特徴は、特にホログラフィーや広視野のアプリケーションに対して、システムを魅力的にする。HF3300S用のオプションとして、このコレクタは、上部または対物レンズの試料ステージ位置に置かれた試料に対

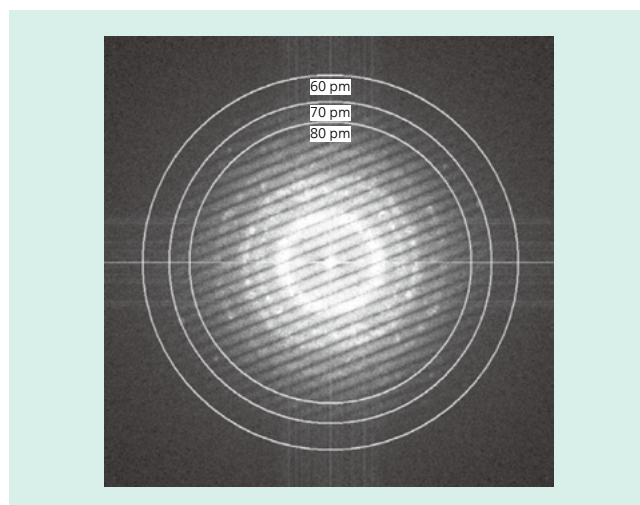


図4 タングステン薄膜試料のヤングフリッジパターンの中央付近

300 kV、露光時間4 sで得られた。オリジナル像のナイキスト周波数は 38.3 nm^{-1} である。フリッジパターンが70 pmよりも外側に広がっている。

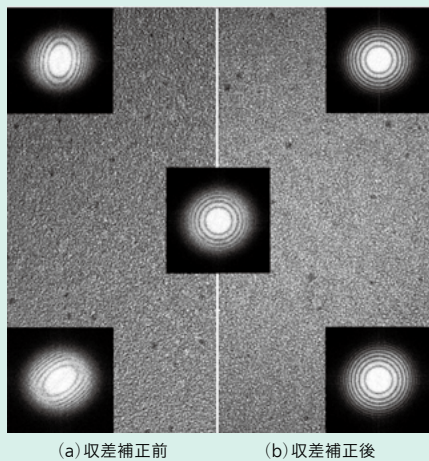


図5 | 軸外二回対称非点収差 A_{1G} 補正の比較

アモルファスタングステン薄膜試料を60 kV、視野70 nmで撮影した。左側(a) (補正前)は、左隣のディフラクトグラムに残っている二回対称軸外非点収差の位相シフトを示す。右側(b) (補正後)は、この軸外非点収差が補正されていることを、同じ位置のディフラクトグラムで示している。この収差による位相シフトは非常に小さく、目ではほとんど確認できない。

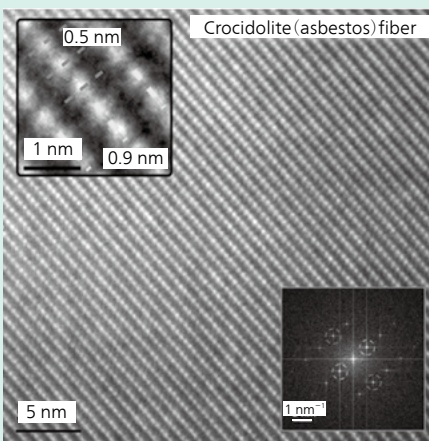


図6 | 磁場フリー位置 (Lorentzモード) で観察したクロシドライト (青石綿)

小さな試料領域の拡大図 (左上隅)、達成した分解能を示すディフラクトグラム (右下隅) を挿入した。回折パターンには、約5Åまでの反射が見られる (C. Gatel & E. Snoeck, CEMES-CNRS, Toulouse Franceの厚意による)。

してCs補正された磁場フリー (Lorentz) 像^{※訳注6)}を得ることに用いられる。例を図6に示す。これはツールズにあるCEMES^{※訳注7)}のE. Snoeckのグループによって提供された。このコレクタは、HF3300Sの全てのホログラフィーオプションもサポートしている。

4. 進化型プローブコレクタDCOR

日立Cold-FEGは高いスペクトル輝度を備えている。このため、STEMでは、プローブ形成システムの色収差が軽

※訳注6) 磁場フリー (Lorentz) 像：電子顕微鏡では、一般に試料位置で電子レンズによる磁場の影響が生じる。この磁場が影響しない (磁場フリー) ように構成されて得られる像がLorentz像である。

※訳注7) フランスの国立科学研究機関であるCenter for Materials Elaboration and Structural Studies (材料精緻化・構造研究センター) の略称。

減される効果により、プローブ半角を大きく取ることができる。六極子コレクタの古典的な (これまでの) デザインの場合、固有の六回対称非点収差と、補正されない四次の寄生収差により、限界が生じると予想される。このことが、進化型の六極子型プローブコレクタをデザインする動機づけとなった。度重なる改良によって、六回対称の非点収差の影響を除去し、全ての四回対称の寄生軸上収差を補正する方法を追加することができた。これは、2つの六極子要素の長さとし磁を最適化することと、六極子磁場とそこにあるトランスファーレンズのコンビネーション収差を利用することによって達成された⁸⁾。最近、このデザインを日立HF3300Sに適用した⁹⁾。目的は、比較的大きなプローブ半角とそれに伴う大きなプローブ電流により、原子分解能での分析を可能とすることである。このシステムは、ワイドギャップ型のポールピース (Pole Piece: 磁極片) を使って、十分にサブオングストローム分解能を達成するように、そして上部ステージの磁場フリー (Lorentz) 位置に設置された試料のCs補正STEM像観察を可能とするように、デザインされている。両者とも、近年のin-situやlab-in-the-gapアプリケーション^{※訳注8)}に非常に魅力的である。このプローブコレクタは、TEMの照射系の質を向上するのも役立つ、また、照射系に追加した電子線バイプリズムを使って行う分離照射ホログラフィーもサポートしている。

5. 1.2 MV原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡用イメージングCsコレクタ

2012年にあまりにも早く亡くなった故 外村彰氏は、日本政府からFIRSTプログラムの助成を得て、プロジェクトを立ち上げた。彼のアイデアは、世界で最先端の技術を融合させて、透過電子顕微鏡で前人未到の分解能を達成し、原子分解能で電磁場を計測することであった。すなわち、最高分解能とは単に原子配列などの構造を最も細部まで分解することではなく、これまで得られなかった精度で原子レベルの微小領域における電子の位相シフトを測定することであった。このゴールのために、すなわち最高のコヒーレンスのために、冷陰極電界放出電子源を搭載した新しい高加速電圧TEMの開発を開始した。そして、対物レンズの球面収差による情報の非局在性を排除するために、Csコレクタを用いることを決断した。非常に高いビームエネルギーと装置サイズのため、Csコレクタの開発はまさにチャレンジであった。

※訳注8) 電子顕微鏡の内部での「その場 (in-situ)」観察や、電子レンズ近傍の狭い空隙 (ギャップ) への実験環境 (ラボ) の組み込み (lab-in-the-gap) が、最近のニーズである。

標準的な2つの六極子デザインを採用したが、必要な強度、消費電力、磁気飽和の影響の可能性を、全ての光学要素に対して注意深く考慮しなければならなかった。理論的なフィジビリティスタディの結果、詳細設計の後について製作を開始することができた。コレクタが正しく機能するか、また、基礎となる理論が正しいかが、装置実装の最終段階でしかテストできないことが、極めて重大な課題であった。日立とCEOS社の素晴らしい協力により、収差補正技術が遅延を引き起こすことなく、このプロジェクトを完了することに成功した。

当初心配されたシステムの分解能は、最終的に、高分解能結像と、磁場フリー結像のためのCs補正 Lorentzモードで示すことができた。ここでは、上部試料ステージと対物レンズの間に専用に追加された Lorentz レンズを用いた新しい技術が使われた。図7に示すように、分解能は少なくとも44 pmまで達成しており^{※訳注9)}、GaN < 114 > の隣接

したガリウムカラムが明瞭に分解されている¹⁰⁾。これは、現時点でのTEM分解能の世界最高記録と考えられている。FIRSTプログラムによる電子顕微鏡は現在稼働中であり、ホログラフィーやその他の詳細な測定に使用されている。

今日、日本の日立製作所・日立ハイテクノロジーズとドイツのCEOS社との間で行って来た、長年にわたり多く成功した協力関係を、感謝を持って回想している。技術的な挑戦に関してだけでなく、会社間の関係も個人レベルに至るまで非常に近いものになってきた。10年以上の間、4つのチャレンジングな開発プロジェクトを成功させることができ、さらに1つのプロジェクトが進行中であり、その他のアイデアが将来現実になると期待される。

※訳注9) その後、44 pmよりも良好な43 pmの格子間隔を再現性よく捉えることができています [品田：原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発—数々の困難を乗り越えて—, 日立評論, 97, 06-07, 408-420 (2015.7)].

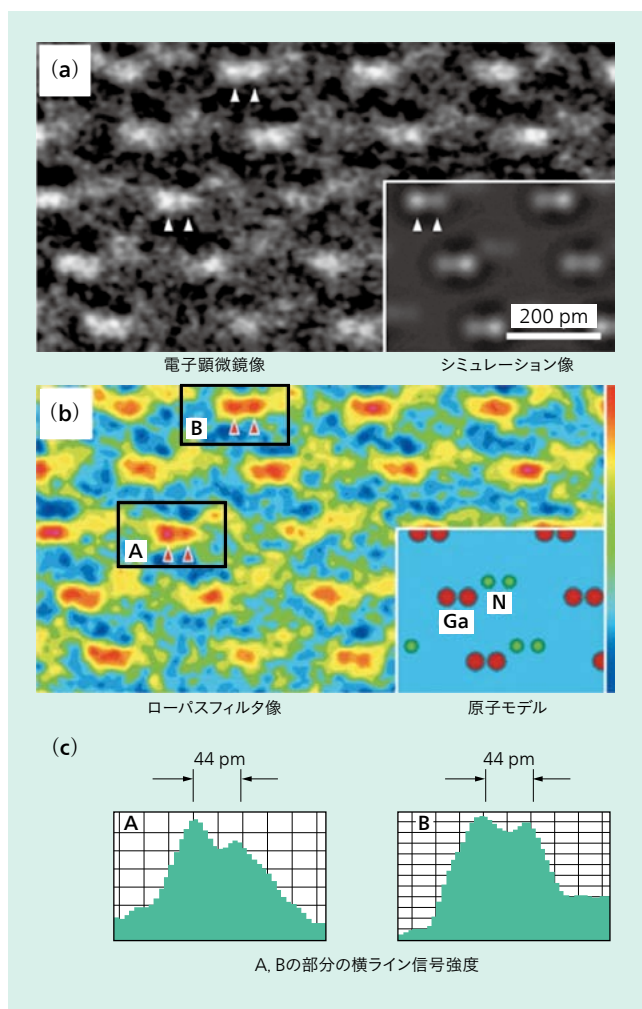


図7 | 窒化ガリウム (GaN) のGa原子間隔を確認

(a) GaN [411] 薄膜の高分解能TEM像を示す。44 pmで分離されている投影Ga原子位置 (白い矢印) が明瞭に観察される。(b) 対応するガウシアンローパスフィルター像である。右側のカラーキーは像強度を示す。(c) (b) の黒い長方形AとBで示されたGa原子ペアのラインプロファイルを示す。Ga原子ペアはこのプロファイルでも明瞭に分解されている [T. Akashi, et al., Appl. Phys. Lett. 106 (7), 074101, 2015 から引用]。

参考文献

- 1) M. Haider, et al.: Electron Microscopy Image Enhanced, Nature, 392, pp. 768-769 (1998)
- 2) H. Rose: Outline of a Spherically Corrected Semiaplanatic Medium-voltage Transmission Electron-microscope, Optik, 85 (1), pp. 19-24 (1990)
- 3) K. Nakamura, et al.: Hitachi's Spherical Aberration Corrected STEM: HD-2700, Hitachi Review 56, pp. 34-38 (Aug. 2007)
- 4) Y. Zhu, et al.: Imaging Single Atoms Using Secondary Electrons with an Aberration-corrected Electron Microscope, Nature Materials, 8 (10), pp. 808-812 (2009), Y. Zhu et al.: Imaging Single Atoms Using Secondary Electrons with an Aberration-corrected Electron Microscope, Nature Materials 8, pp. 808 – 812 (2009)
- 5) M. Haider, et al.: Present and Future Hexapole Aberration Correctors for High-resolution Electron Microscopy, Advances in Imaging and Electron Physics, 153, pp. 43-120 (2008)
- 6) H. Müller, et al.: Aplanatic Imaging Systems for the Transmission Electron Microscope, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 645 (1), pp. 20-27 (2011)
- 7) I. Maßmann, et al.: Realization of the First Aplanatic Transmission Electron Microscope, Microscopy and Microanalysis, 17 (S2), p. 1270 (2011)
- 8) H. Müller, et al.: Advancing the Hexapole Cs-corrector for the Scanning Electron Microscope, Microscopy and Microanalysis, 12 (06), pp. 442-455 (2006)
- 9) T. Sato, et al.: Hitachi's High-end Analytical Electron Microscope: HF-3300, Hitachi Review 57, pp. 132-135 (Jun. 2008)
- 10) T. Akashi, et al.: Aberration Corrected 1.2-MV Cold Field-emission Transmission Electron Microscope with a Sub-50-pm Resolution, Applied Physics Letters, 106 (7), 074101 (2015)

執筆者紹介

Prof. Dr. Max. Haider

CEOS社の共同創設者、前 マネージングディレクター
現在は同社シニアアドバイザー 兼 役員
カールスルーエ工科大学名誉教授

Dr. Heiko Müller

CEOS社 マネージングディレクター
最先端荷電粒子システムの理論研究およびプロジェクトマネジメントに従事