

電子の波で見るミクロの世界

外村 彰

(株) 日立製作所基礎研究所
理化学研究所フロンティア研究システム
科学技術振興機構、OIST プロジェクト

1. はじめに

光学顕微鏡でも見えない小さな物体は、波長の短い電子線を用いると観察できるようになる。かといって、どんな物体でも見える訳ではない。透過型電子顕微鏡では、試料を透過した電子線の強度が観察されるため、透明な位相物体の観察は難しい。しかし、輝度の高い電子線を電子波として用いれば、電子顕微鏡ホログラフィーやローレンツ顕微鏡法によって観察が可能になる。

ごくわずかな位相変化しか生じない微小物体の観察や高精度での位相分布測定には、より輝度の高い電子線が必要になる。そこで、我々は、1967 年以来、輝度の高い電子線を求めて開発を繰り返してきた。実際、輝度が高まるたびに、新しい可能性が開けた。1978 年に 80kV の電界放出電子顕微鏡を開発した際には、電子線ホログラフィーが実用レベルに達しミクロの磁力線が干渉顕微鏡像として直接観察できるようになった[1]。1982 年に開発した 250kV 電子顕微鏡では、AB 効果の実証実験[2]や二重スリットの実験[3]といった量子力学の基礎実験の道が拓かれ、1989 年の 350kV 電子顕微鏡では超伝導体中の個々の磁束量子が観察可能になった[4]。そして今回、10 年がかりで計画した夢の 1MV ホログラフィー電子顕微鏡[5]がやっと実現し、新たな発展を期待しているところである。

2. 電子波で見る量子の世界

電子の波を用いると、通常の電子顕微鏡では観察できなかった位相物体や量子現象が見えてくる。以下に実例を紹介しよう。

ミクロの電磁場分布

ミクロな電磁場に電子の波を通すと、位相 (波面) が変化する。この位相変化の中に、電磁場の情報が含まれている。位相が電磁場によってどのように変化するかは、シュレディンガー方程式を解かねばならないが、簡単な計算から、「電場や磁場を通過してきた電子の波面の等高線は、等位電位や磁力線と一致する」という簡潔な結論が得られる[1]。

実例を示すのが最も分かりやすいだろう。図 1 は、メタル磁気テープに記録した磁力線の観察例である。電子線ホログラフィーの光学再生段階で干渉顕微鏡像として波面の

等高線を観察したものである。等高線は一定の微小磁束 ($h/e=4\times 10^{-15}\text{Wb}$) 毎に現れ、記録された磁力線の詳細が観察できる[6]。局所的な電場を観察した時には、電子顕微鏡像の上に等電位線の分布が描かれる。最近、pn 接合近傍の電場分布が観察されたため注目されている[7]。

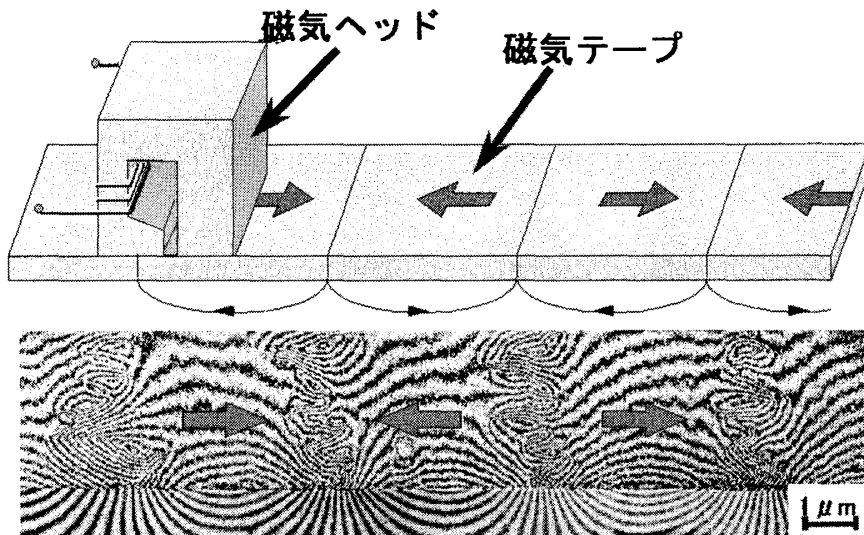


図1 磁気テープに記録した磁力線の観察例（テープに垂直な方向から観察した像）

量子現象－AB 効果－

電子の波面、つまり電子の“波動関数”が観測できるようになったので、まさに量子力学ならではの現象を、目のあたりに直視できる。とはいっても波面そのものが見える訳ではない。二つの波を重ねた時に、干涉縞の形で波の位相情報が観測できる。電子線の干涉で不思議なのは、電子線の強度を極端に弱くして1ヶずつ電子を送った時にも、積算してみると干涉縞が形成されることである。たとえ1ヶの電子であっても2つの波に分かれて、干涉縞を作っているにちがいない。ファインマンは「二重スリットの実験は量子力学の神髄を表す現象だが、思考実験であり、実際に実験を行うことはできない」と語っていたが、現在では先端技術のお陰でそうした実験が実行可能になった[3]。

さらに興味深い量子現象は、アハラノフ・ボーム効果[8] (AB 効果) である。これは、「電子が、電場や磁場に触れていなくても物理的影響を受ける」という大変不思議な現象である。このため、AB 効果の存在をめぐる長い論争が闘わされていた。

図2(a)の干涉縞の写真を見ると、平行な干涉縞がリングの孔の中と外で半本分だけずれている。これは、電子の平面波が、ともに電磁場のない空間を通過しただけなのに、1/2 波長だけずれていることを示している。干涉縞がずれる秘密は、この黒いリングにある。このリングは、N 極と S 極をぐるっと曲げてつなぎ合わせた棒磁石の影である。

磁力線はリング状磁石の内部をぐるぐる回って外部には出てこない。それにも拘わらず干渉縞にずれを生じたのは、“ベクトル・ポテンシャル”、あるいは“ゲージ場”の効果である。一昔前、数学的な量と考えられたベクトル・ポテンシャルは、量子力学では電子の波面をずらす物理量と考えられる。そういえば確かにシュレディンガー方程式には、電場や磁場ではなくて、電位やベクトル・ポテンシャルが含まれている。

我々の実験の直後、IBMのWebbによって「金属中の電子もAB効果を示す」という実験が行われた[9]。極めて細いリング状(図2(b))の回路を低温にして電流を流すと、右のリングを通る電子と左を通る電子が出会った時に、干渉を起すというものである。これまで、100ヶの電子をリングに入れたら、たとえ二股に分かれたとしても、100ヶの電子が出てくるのは、当然のことだった。ところが、1ヶの電子が2つに分かれて波となり、出会った時に、波の山と山が重なると、干渉して110ヶになり、山と谷だと90ヶになって出てくるという訳である。実際、リングの中に磁場を通して、両側を通る電子の位相差をAB効果で変化させると、全体の電流—ここでは抵抗—が大きくなったり小さくなったりすることが実測された。これまで、“抵抗”という概念はリングの中に磁場があろうが無かろうが、変わるはずはなかった。ところが今やリングの中を磁場が通るだけで、両側を流れる電子に位相差が生じ、干渉効果によって抵抗が変化してしまう。抵抗はリード線のトポロジーに依存する。ナノの世界では、もはやオームの法則すら成り立たなくなる。

さらに一昨年、カーボンナノチューブでもAB効果が生じる証拠が得られた[10]。チューブのある点から別の点に流れる電流は、直接まっすぐに行く道他に、チューブを右回りや左回りをして行く道など沢山ある。磁場の存在によってそれら電子の位相が変化するので、干渉を起こして、電流値が変化するのである。

かくして、今やAB効果は、実際、微細な構造の中では大変重要な役割を果たすようになり、“量子力学の神髄”を表す現象として見なされるようになってきた。量子現象は、もはや原子分子の中だけでなく、マクロな物体にまで侵入しつつあるといえる。

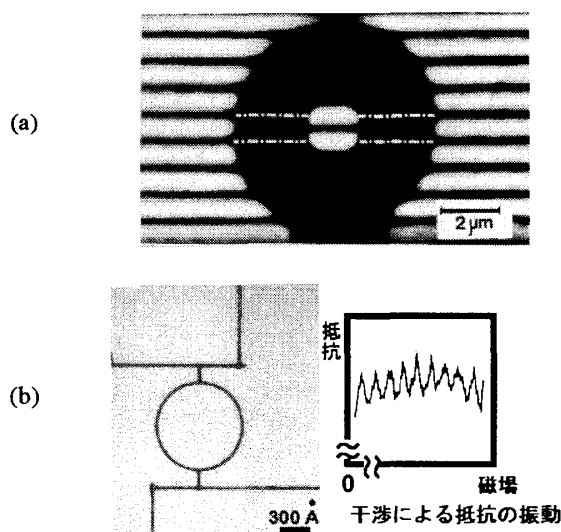


図2 AB効果の検証実験

- (a) 真空中を走る電子線を用いたAB効果の実証実験
- (b) 金属リング中の電子が示すAB効果

超伝導磁束量子

超伝導体中の磁束量子も、透過電子波にとって弱い位相物体である。超伝導中での最小磁束の単位であり、形状も小さいが、超伝導体の実用化の鍵を握っており、学術・実用の両面で重要な役割を担っている。この磁束量子を直接観察することは、電子顕微鏡屋の永年来の夢であったが、現実に磁束量子の動いている様子が観察できるようになった[4]。干渉顕微鏡像として、その磁力線を観察することも可能だが、像のピントをはずすことによって位相変化を強度変化に直すローレンツ顕微鏡法では、薄膜中の磁束量子を粒子の形で観察できるので動的観察が容易である。図3は、ニオブ薄膜を5Kで観察した例だが、磁場を変化させたり、電流を流したりすると、磁束量子がまるで生き物のように動き回る。薄膜に人工的な欠陥を入れると、そこに磁束量子が強くピン止めされるため、さらに複雑で面白い振舞いを見せる。



図3 ニオブ薄膜中の磁束量子のローレンツ顕微鏡像

我々は磁束量子の不思議な振舞いが予測されている高温超伝導体についても、同様の観察を試みたが、磁束量子の太さが1桁も大きいため膜を厚くしなければならず、350 kVの電子線では膜を透過することが出来ず100万ボルトの電子顕微鏡[5]の開発を行った。

3. 100万ボルトホログラフィー電子顕微鏡

100万ボルト電界放出電子顕微鏡は総重量40トンと極めて大きくなるにもかかわらず、極めて精度の高い技術が必要とする。7mもの高さの電子顕微鏡のてっぺんに50Åの電子源を設置するが、電子顕微鏡の下から見た時に、その大きさの何分の1揺れただけで、輝度が減少してしまう。

さまざまな検討の結果、図4に示した模式図のように、極めて大がかりな装置になった。電子顕微鏡が3つ並んでいるように見えるが、これで1つの装置である。100万ボルトの高電圧は電界放出電子線の単色性の良さを生かすためには、 3×10^{-7} という安定度がなければならないため、わずかな電圧リップル（交流成分）がのってもいけない。右側のタンクの中にはコッククロフト・ウォルトン高電圧発生装置が入っており、この中で100万ボルトの高電圧が発生する。この電圧は高電圧ケーブルを通して中央のタンクに伝達される。ここには、電界放出電子銃の制御回路や電子銃室を超高真空に排気するイオンポンプ用の電源が100万ボルトの高電圧上にのっている。これら2つの電源には、どうしても交流成分が伴うが、各々のタンクの中に完全に密封され、磁気的にもシールドされて、高安定化された直流電圧だけが、高電圧ケーブルを通して左の電子顕微鏡本体に伝送される。

この3タンク方式は、機械的振動という観点からも必須であった。電子顕微鏡の上のタンクの中に、高圧電源や電子銃の制御系を置いてしまうと、頭でっかちになって重心が上がり、複雑な振動モードが生じるためである。

この結果、電子線の輝度は $2 \times 10^{10} \text{ A/cm}^2 \cdot \text{ster}$ という、これまでにない高い値が得られるに至った。

この装置を使って電子顕微鏡としての性能も向上した。電子線の単色性がよくなったために、電子レンズの色収差の効果が減少し、 0.05 nm を越える格子分解能の記録が得られた[5]。さらに、ごく最近、高温超伝導体薄膜内部の磁束量子が観察できるようになり、大きく傾いた柱状欠陥に沿って捕捉された磁束量子の姿を識別して観察できるようになった[11]。

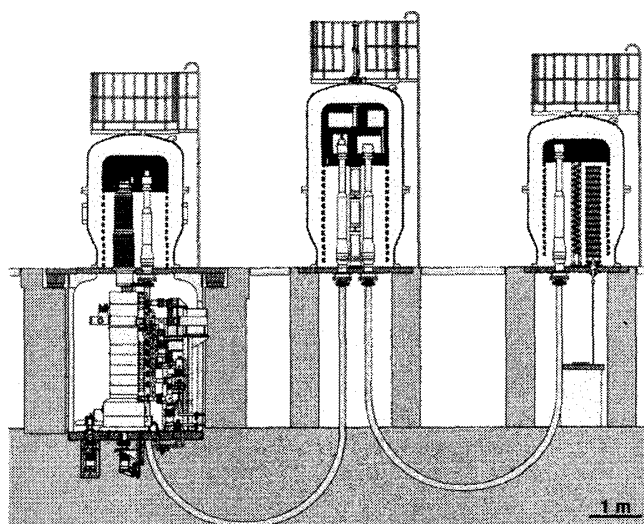


図4 100万ボルト電界放出電子顕微鏡の構成図

4. 高温超伝導体の観察

高温超伝導体は層状構造から成っているため、超伝導状態にしても、超伝導の層が重

なったものになる。このため、磁束量子が層を貫く時には、一本の磁束量子が層毎に分かれてジグザグになったり、高温になると、層毎に独立に動き回ったりするなど、さまざまなことが予測されている。このような曲がりくねったり動きやすい磁束量子を、点欠陥でピン止めするのは至難の技である。

高温超伝導体に高速重イオンを照射すると、イオンが通過した路に沿って結晶が壊れ、円柱状のアモルファスの領域が生じる。この領域は超伝導にならないため、層間をまたぐ円柱状のピン止めセンターとなる。磁束量子の常伝導芯がこの円柱の中に落ち込むと、もはやどの層の磁束量子も動くことができないので、磁束量子は一挙にピン止めされてしまうことになる。このため柱状欠陥は、高温超伝導体に対して最も有効なピン止めセンターと考えられてきた。しかし、何しろミクロの世界のことなので、本当に磁束量子が柱状欠陥に捕捉されているかどうかを確かめるすべはなかったが、1MV ホログラフイー電子顕微鏡を用いたローレンツ顕微鏡法で、高温超電導薄膜内部の磁束量子の様子が観察できるようになり、柱状欠陥に捕捉されているか否かを判断することが可能となった。

柱状欠陥での磁束ピン止め

実験の配置図を図5に示す。厚さ 4000Å の Bi-2212 薄膜に、傾いた方向から高速イオンを照射し柱状欠陥を導入する。内部は非晶質になるので超伝導にはならない。この薄膜を 30° 傾け、上から平行な電子線をあて、ピントのはずれた面を観察すれば、ローレンツ顕微鏡像として磁束量子が観察できる。その一例を図6に示す。円形のスポットが全て、磁束量子の像である。良く見ると二種類の像があることに気づくことと思う。矢印で示した像は、やや楕円形をしており、コントラストも弱い。

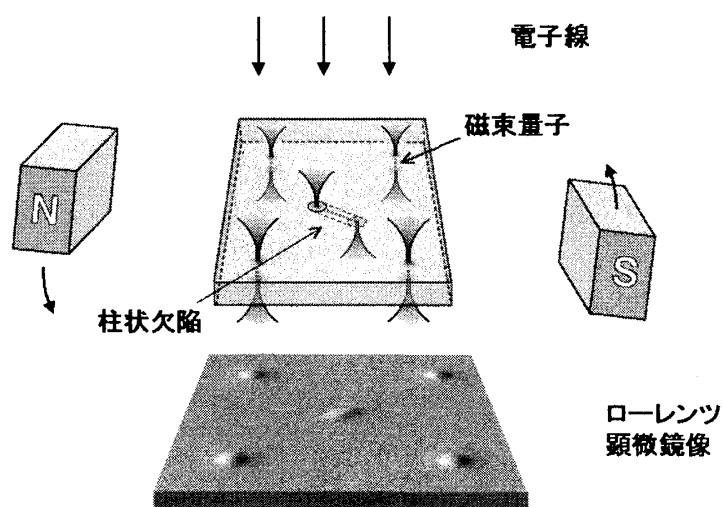


図5 磁束量子観察実験の配置図

二種類の像の違いがどこから来るのかは、同じ場所の電子顕微鏡像とローレンツ顕微鏡像を見比べれば明らかである。ピントの合った電子顕微鏡像図 7(a)では、柱状欠陥が細い線として観察できる。ピントをぼかすと、欠陥は広がって見えなくなるが、さらにピントを大きくはずすと、図 7(b)の磁束量子の像が現われる。ピントをぼかして磁束量子が見えてくるのは、位相物体だからである。楕円形の磁束量子の像（図 7(b)中の矢印で示した像）は、欠陥の位置から生じる。楕円の像は、柱状欠陥にトラップされ斜めに横たわった磁束量子の像である。これに対して、欠陥のないところには、円形の磁束量子が観察できる。この像は、膜を垂直に突き抜ける磁束量子の像である。この結論は、シミュレーションによっても確認された。

柱状欠陥の電子顕微鏡像（図 7(a)）に比べると、磁束量子の像（図 7(b)）がいやに大きいことに気づいた方もいるかもしれないが、これは高温超伝導体の特徴である。高温超伝導体中の磁束量子は渦の大きさ（磁場侵入長）が Bi-2212 の場合 2000\AA と大きいものに対して、常伝導芯が 10\AA と極めて小さいことに由来する。

磁場が円柱と同じ方向に印加された時には、磁束量子が柱状欠陥に沿って捕捉されることが分かった。しかし、かける磁場の方向が異なった場合には、どうなるだろうか？円柱の方向に磁場をかけなければ強いピン止めが生じないというのでは実用的でないので、この問題は実用上極めて重要である。

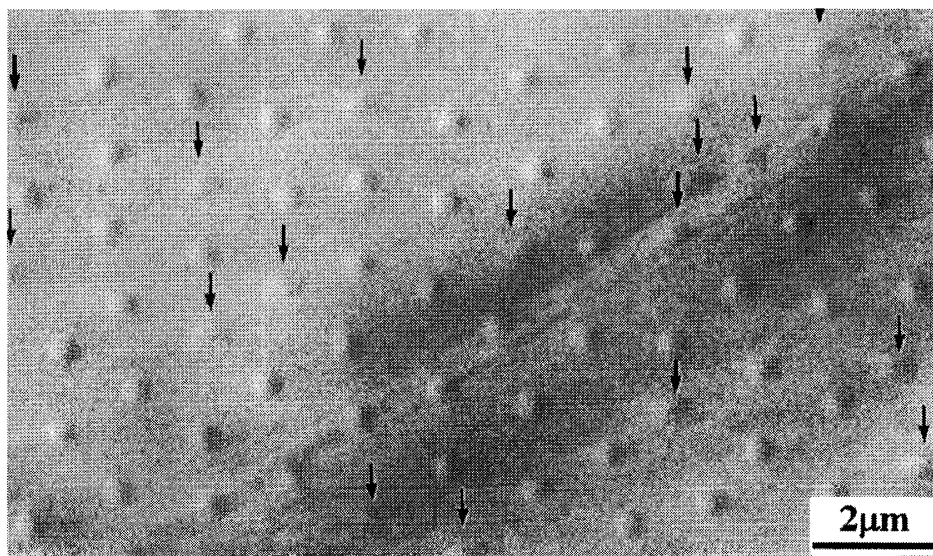


図 6 傾いた柱状欠陥を有する高温超伝導 Bi-2212 薄膜のローレンツ顕微鏡像。柱状欠陥は図中水平方向に傾けてある。白いスポットが磁束量子の像だが、良く見ると円形のものと同楕円形（矢印）のものがある。後者は柱状欠陥にトラップされ斜めに傾いた磁束量子の像である。

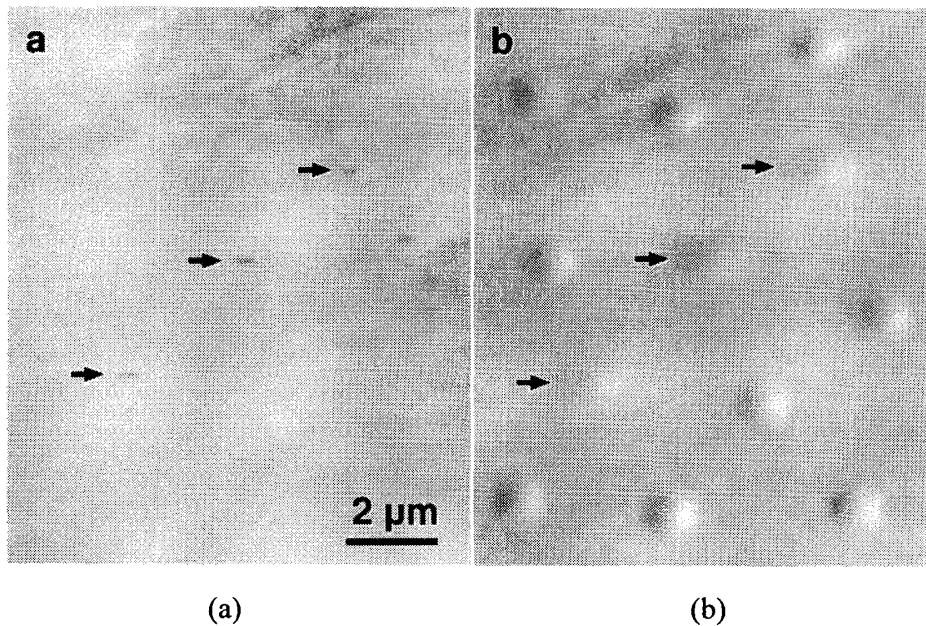


図7 70° 傾いた柱状欠陥を有する Bi-2212 薄膜

(a) 電子顕微鏡像

(b) ローレンツ顕微鏡像

柱状欠陥（図7(a)の細長い像）の場所に楕円形の磁束量子の像（図7(b)）が生じる。

そこでまず、磁場の方向を、いろいろな方向に変えてみた。磁束量子が膜に垂直に立てば、円形の像になるはずだが、実験の結果、像は楕円形のままで、磁束量子は磁場の方向に依らず円柱にトラップされたままであることが判った。

「もっと温度を上げたら、磁束量子が層毎に分離して、状況が変わってくるのではないか？」と思う人もいるかもしれない。そこで、温度を臨界温度の 85K まで上げてみたが、状況は全く変わらなかった。ところが、逆に温度を下げていくと、予期せぬことが起こった。

14K まで下げると、円柱に沿って傾いていた磁束量子が、一つずつ膜に垂直に立ち始め、楕円の像が円形の像に変化したのである。つまり磁力線が膜を最短距離で通り抜けたのである。

何故、磁束量子は柱状欠陥の場所にいるのに、欠陥に沿わずに膜に垂直に立ってしまったのだろうか？ 恰も柱状欠陥のピン止め力が消失してしまったかのようなのである。実は、消えてしまったわけではなく、別種の強いピン止めが低温で現れて、その陰に隠れてしまったものと解釈できる。この磁束量子の不思議な振舞は、高温超伝導体ならではの現象である。すなわち磁束量子の常伝導芯が極めて細いことと、酸素欠陥などの原子サイズの欠陥が高密度で分布していることによる。ニオブのように磁束量子の常伝導芯が太いと、常伝導芯が原子サイズの欠陥のポテンシャルの中に落ち込んで捕捉されることはない。ところが高温超伝導体の磁束量子は、原子サイズの欠陥でも捕捉される。しかも、

この欠陥は密に存在しているので、1本の磁束量子にたくさんの欠陥がしがみついて、集団的にピン止めするため、結果的にピン止め力が非常に強くなる(図8)。こうした状況下には、たとえ柱状欠陥が存在したとしても、一様に分布した強いピン止めの中に埋もれてしまい、柱状欠陥のピン止め効果は実質上消失したのと同じになると考えられる。

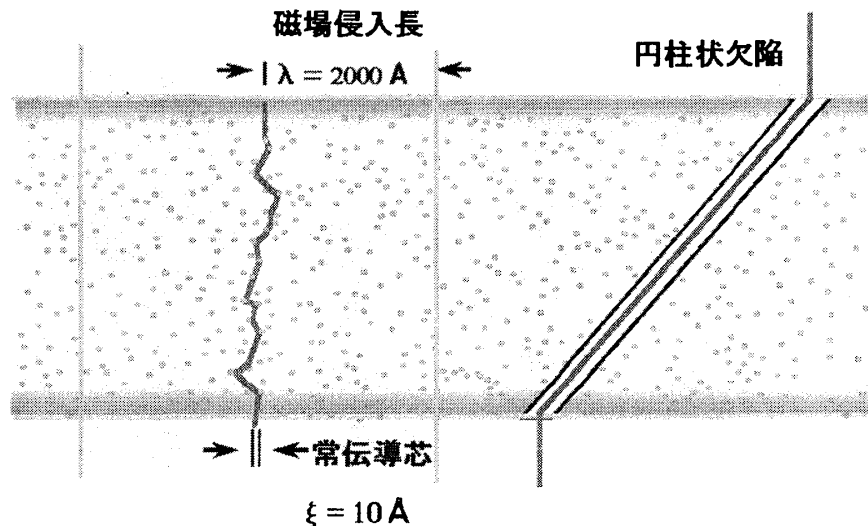


図8 高温超伝導体中の磁束量子

磁束量子は、12K以下で密に存在する原子サイズの欠陥によって強くピン止めされる。しかし高温になると、これらの欠陥から熱的に脱離し始め、25K以上では、ピン止め力は実効的にゼロになり、柱状欠陥のピン止めだけが際立ってくる。

ただし、これはサンプルの温度が低い時の話である。温度が上がると、事情は異なってくる。磁束量子が熱振動を始めると、“原子サイズの狭いポテンシャル井戸”の中にトラップされていた磁束量子は、容易にそこから飛び出しやすくなる。こうして、原子サイズの欠陥のピン止め力は急激に弱まり、25K以上で実質上ゼロになる。勿論、柱状欠陥のピン止め力も、温度上昇と共に小さくなる訳だが、円柱は桁違いに大きいので、そのピン止め力の減少はわずかである。このため、高温では柱状欠陥のピン止めだけが際立ってくることになる。

こうして、1MVホログラフィー電子顕微鏡の利用によって、超伝導体内部の磁束量子ならではの挙動が手にとるように分かってきた[12, 13]。内部の磁束量子の様子が直接見えるようになったので、今後も、高温超伝導体中の磁束量子の面白い振る舞いが、次々と観察できるものと期待できる。

5. まとめ

これまでになく高い輝度を有する電子線を備えた 1MV ホログラフィー電子顕微鏡が完成し、電子の波動性を利用した観察計測手法に新たな一步を踏み出すこととなった。これまでに高温超伝導体内部の様子が観察できるようになり、いろいろと面白い結果が観察され始めた。

この装置の応用は、超伝導の磁束量子の観察に限る訳ではない。今後発展するであろうナノの世界では量子現象が満ち溢れているに違いなく、そうした現象の解明を避けて通る訳にはいかない状況にある。この電子顕微鏡は、ナノの世界における量子現象や電磁氣的構造を観察する手法として、今後広い分野で利用できるものと思われる。

また、超高圧電子顕微鏡による高分解能への道が拓かれたため、原子分子を直接観察する研究が、この技術を用いてさらに進展するものと期待される。

文献

- [1] A. Tonomura *et al.*: Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1430.
- [2] A. Tonomura *et al.*: Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 792.
- [3] A. Tonomura *et al.*: Amer. J. Phys. **57** (1989) 117.
- [4] K. Harada *et al.*: Nature **360** (5 November 1992) 51.
- [5] T. Kawasaki *et al.*: Appl. Phys. Lett. **76** (2000) 1342.
- [6] N. Osakabe *et al.*: Appl. Phys. Lett. **42** (1983) 746.
- [7] W.D. Rau *et al.*: Rev. Lett. **82** (1999) 2614.
- [8] M. Peshkin and A. Tonomura: *The Aharonov-Bohm Effect* (1989, Springer-Verlag).
- [9] R.A. Webb *et al.*: Phys. Rev. Lett. **54** (1985) 2696.
- [10] A. Bachtold *et al.*: Nature **397** (1999) 673.
- [11] A. Tonomura *et al.*: Nature **412** (2001) 620.
- [12] T. Matsuda *et al.*: Science **294** (2001) 2136.
- [13] A. Tonomura *et al.*: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 1-237001