

氏 名	もり ぐち さく み 森 口 作 美
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	論 理 博 第 1421 号
学位授与の日付	平 成 15 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	高分解能透過型電子顕微鏡の分解能向上と結晶化学への応用

論文調査委員	(主 査) 教 授 磯 田 正 二	教 授 西 嶋 光 昭	教 授 中 原 勝
--------	----------------------	-------------	-----------

論 文 内 容 の 要 旨

透過型電子顕微鏡の理論分解能は電子光学理論により、基本的には利用する電子線の波長と対物レンズの球面収差係数で決定される。しかしながら、この理論分解能を実現するには、球面収差以外の各種収差および電氣的、機械的不安定性から引き起こされる像のボケなどの付加的な高次の分解能制限因子を取り除かねばならない。それらの中で最も大きな影響を及ぼすのが加速電圧の不安定性による軸上色収差であることはよく理解されている。これまでの多くの研究において、短波長化のための高圧電子顕微鏡の開発と有限要素法による低球面収差・低色収差レンズの設計が行われ、またその他のいくつかの分解能制限要因について改善が進められて分解能向上が図られているところである。

本論文ではこれまで重要視されていなかった高次の収差の一つである軸外色収差に着目し、分解能に及ぼすその効果の重要性を考察した。電子顕微鏡で利用される磁界型レンズの励磁を変化させても像が移動しない点を電流中心、加速電圧を変化させた場合の不動点を電圧中心と呼ぶが、一般にこの両者は一致せず、どちらか一方のみを光軸に合わせる観察方法が従来採用されていた。この不一致は操作性を損なうと同時に、実は軸外色収差による像のボケを生じるが、これまでの分解能領域においては大きな問題とはならなかった。しかし、本論文では0.1 nm 程度の高分解能領域ではこの軸外色収差が分解能劣化を引き起こすことを明らかにした。電圧中心と電流中心の不一致の原因を追求し、対物レンズの磁場不均一性よりも対物レンズを含む結像多段レンズ系の配列の乱れに主要な原因があると結論した。同時に、結像レンズ系に新規偏向コイルを組み込み、電子線を結像レンズ系の各レンズ主軸にそって進行させることで電圧中心と電流中心を1 μm 以下の高精度で一致させる方法を開発した。さらに、より高精度に両中心を一致させるための多段偏向コイルによる調整方法を提案した。その結果、軸外色収差の影響は無視できるものとなり、併せて操作性も著しく改善された。得られた像中において0.1 nm 近傍の情報が確保され、1000 kV 電子顕微鏡においてはほぼ理論分解能に対応する0.12 nm の分解能を実現し、原子間距離を下回る分解能における電子顕微鏡観察を実証した。

また、上記成果を結晶化学へ応用展開し、原子オーダー分解能での電子顕微鏡観察から分子結晶や微粒子の構造解析を行った。フラーレン結晶の積層欠陥を可視化し、金微粒子の多重双晶での歪み分布を実測し、フタロシアニン結晶表面の格子揺らぎの解析などに成功した。分子結晶は一般に電子線照射に極めて脆弱で、その照射量は厳しい制限を受け、得られた像も多く量子ノイズを含む。本研究ではこのノイズを含む像から、不整構造のひとつである結晶表面における分子結晶格子面間隔の揺らぎの定量測定を試みた。その結果、オクタブロモオクタクロロフタロシアナート銅結晶表面層において分子面間隔の極微小な変位を定量化する方法を提案し、見出された0.03 nm の変位の有意性を統計学的方法により検証した。このことから、電子線照射に対して敏感な分子結晶の像から局所情報の抽出定量化を可能とした。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

透過型電子顕微鏡の分解能は、電子光学理論によれば基本的には電子線の波長と対物レンズの球面収差係数で決定される。しかしながら、球面収差以外の各種収差および光学系の不安定性から引き起こされる像のボケなどの付加的な因子も問題と

なる。本論文ではこれらの諸因子について総合的な検討改善を行った結果が示され、特に、高次の収差の一つである軸外色収差を研究対象として、分解能との関連を理論的実験的に精査し、分解能に及ぼすその効果の重要性を指摘した。分解能制限因子として十分認識されていた軸上色収差に比べ、従来考慮されてこなかった軸外色収差の効果を明らかにし、その低減法を見出した点は大きく評価される。電子顕微鏡の電流中心は電圧中心と一致せず、どちらか一方を光軸に合わせる観察方法をとらざるを得ない状況であった。この不一致により軸外色収差による像のボケを生じるが、これまでの分解能領域においては大きな問題とはならなかった。しかし、0.1 nm 程度の高分解能領域では、従来問題とされていなかった軸外色収差が分解能劣化を引き起こすことを明らかにした。電圧中心と電流中心の不一致の原因を解明し、同時に、結像レンズ系に偏向コイルを組み込むことで、電圧中心と電流中心を一致させることに成功した。その結果、軸外色収差の影響は無視できるものとなり、1000 kV 電子顕微鏡を用いて得られた像中において0.1 nm 近傍のコントラスト情報が確保されることを証明した。このことで、原子間距離を下回る分解能における電子顕微鏡観察を実現した。

また、これらの装置開発と軸外色収差補正法をもととして、高分解能電子顕微鏡法を結晶化学研究へ応用展開し、分子結晶や微粒子の構造解析を行った。とりわけ、オクタプロモオクタクロロフタロシアナート銅結晶表面における分子結晶格子揺らぎの定量測定を行った研究は今後の分子結晶の構造解析の進展に大きな貢献が期待される。分子結晶は一般に電子線照射に極めて脆弱で、その照射量は厳しい制限を受け、得られた像も多くの量子ノイズを含む。本論文ではこのノイズを含む像から、不整構造のひとつである結晶表面における分子結晶格子面間隔の揺らぎの抽出を試み、結晶表面層において分子面間隔の微小な変位を定量化する方法を提案した。結果として見出された0.03 nm の変位を統計学的方法により検証し、その有意性を確認した。分子結晶についてはじめて表面構造の緩和を明らかにした。このことから、電子線照射に弱い分子結晶においても像から直接に局所構造情報の定量化が可能であり、関連する研究分野において電子顕微鏡の応用範囲を拡張した。分子性結晶における不整構造の定量解析研究分野を開拓し、電子顕微鏡の応用範囲を広げた功績が認められる。

以上のように、本論文は電子光学理論に立脚し、独自に着想した収差補正法の開発により電子顕微鏡高分解能化を達成したことで、構造化学分野への学問的貢献が認められ、先駆性と独創性は極めて高く評価できる。これにより、本論文は、博士（理学）の学位論文として価値あるものと認めた。

なお、関連分野の学識確認のための筆答および口頭試問を行い、博士課程修了と同等の学識を有すると判定した。