



Title	実時間波動場再構成TEMシステムの開発および低空間周波数成分の位相回復に関する研究
Author(s)	田村, 孝弘
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/70668">https://doi.org/10.18910/70668</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 論文内容の要旨

氏名 ( 田村孝弘 )

論文題名

実時間波動場再構成TEMシステムの開発および低空間周波数成分の位相回復に関する研究

本論文は透過型電子顕微鏡 (TEM) のフォーカスシリーズを用いてより正確な局所構造情報を取得することを目指して、実時間での波動場再構成と残収差補正が可能なTEMシステムの開発、および低空間周波数成分の位相回復について研究した結果をまとめたものである。

第1章では、本研究の背景と目的について述べた。まず、フォーカスシリーズ再構成法について説明し、実時間性や定量性にすぐれたフォーカスシリーズ再構成法である実時間焦点位置変調法とMaximum Likelihood Method (MAL法) の特徴について述べた。次に、より正確な波動場を再構成するには残収差の補正と低空間周波数成分の位相回復が重要であることを指摘した。そして、実時間焦点位置変調法をベースとした残収差の実時間補正が可能なTEMシステムの開発、およびMAL法を用いた低空間周波数成分の位相回復法を提案し、本研究の位置づけを明らかにした。

第2章では、実時間焦点位置変調法の理論について説明した。まず、TEMの三次元結像理論について述べ、実時間焦点位置変調法ではフォーカスの高速変調を用いることで、ビデオレートでの波動場再構成を実現していることを説明した。そして、再構成波動場と残収差との関係を数学的に導出し、対称収差と非対称収差と呼ばれる収差が再構成波動場に対してどのように作用するのかを明らかにした。

第3章では、再構成波動場に含まれる収差を計測する方法を提案し、原理確認を行った。まず、再構成波動場のコントラストを計測することによってデフォーカスと二回非点収差と呼ばれる収差を計測する方法を新たに提案し、収差の計測が高精度に行えることを確認した。そして、提案したデフォーカスの計測と補正方法では試料の中央面付近にフォーカスを合わせていることを明らかにした。次に、フォーカスの異なる複数枚の画像を用いて電子線の傾斜角と見かけの二回非点収差を計測する方法を提案し、本手法を用いることでコマ収差と三回非点収差を高い精度で計測できることを確認した。以上の結果から、提案手法を用いることで残収差の計測と補正が可能であると結論した。

第4章では、第3章で提案した収差の計測方法を用いて、実時間での波動場再構成と残収差の補正が可能なTEMシステムの開発を行った。まず、開発したシステムの構成について説明し、実時間焦点位置変調法とGraphical Processing Unit (GPU) を用いた高速演算を組み合わせることで、実時間での波動場再構成と残収差の補正を実現したことについて説明した。次に、開発したシステムを用いることでデフォーカス、二回非点収差、コマ収差、三回非点収差をビデオレートで補正できるようになったことを実証した。そして、デフォーカスと二回非点収差の計測精度について検討を行い、 $\pm 0.4 \text{ nm}$ という非常に高い精度で計測と補正が行えていることを明らかにした。以上の結果から、開発したシステムは通常の高分解能実時間観察だけでなく、試料位置変動の激しい環境制御TEM観察にも有効に働くことを結論した。

第5章では、MAL法を用いて低空間周波数成分の位相回復を行うことを提案し、原理確認を行った。まず、テスト画像を用いてMAL法の伝達特性を調べ、MAL法では反復的な処理を繰り返すことによって低空間周波数成分を再構成できることを明らかにした。次に、GPUを用いる処理プログラムを作成し、MAL法の処理速度を80倍程度高速化することに成功した。そして、MAL法と他のフォーカスシリーズ再構成法とを比較し、MAL法は他の手法よりも優れた収束速度と伝達特性を有していることを明らかにした。このことから、MAL法は低空間周波数成分の位相回復に有効に働くことを実証した。

第6章では、実際のTEM像を用いて低空間周波数成分の位相回復を行った。まず、MAL法を用いて磁気バブルの位相回復を行い、これまでの報告例よりも高いSN比で低空間周波数成分の位相回復と磁気構造の可視化を行うことに成功した。次に、シミュレーションを用いてMAL法の定量性を評価し、本手法はoff-axis電子線ホログラフィーと同程度の位相検出感度を有していることを明らかにした。また、MAL法を用いて多層グラフェンと金微粒子の位相回復を行い、低空間周波数成分を再生することで、従来までは困難であった微粒子の形状や試料膜厚の推定を行うことができた。これにより、MAL法が低空間周波数成分の位相回復に有効に働くということを実験的に示すことができた。

最後に総括として、本論文のまとめと今後の課題、将来の展望について述べた。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 田 村 孝 弘 )			
論文審査担当者	(職)	氏 名	
	主 査	教授	高井 義造
	副 査	教授	大政 建史
	副 査	教授	中山 健一
	副 査	教授	菊地 和也
	副 査	教授	伊東 忍
	副 査	教授	兼松 泰男
	副 査	教授	渡部 平司

## 論文審査の結果の要旨

本論文は透過型電子顕微鏡 (TEM) におけるフォーカスシリーズ再構成法を用いて、より正確な局所構造情報を取得することを目的に、ビデオレートでの実時間波動場再構成と残収差補正が可能な TEM システムを開発、および低空間周波数成分の位相回復について研究した成果をまとめたものである。

第 1 章では、実時間性や定量性に優れたフォーカスシリーズ再構成法である実時間焦点位置変調法と Maximum Likelihood Method (MAL 法) の特徴について述べ、より正確な波動場を再構成するには残収差の補正と低空間周波数成分の位相回復が重要であることを指摘している。そして、実時間焦点位置変調法をベースとした残収差の実時間補正が可能な TEM システムの開発、および MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復法を提案し、本研究の位置づけを明らかにしている。

第 2 章では、実時間焦点位置変調法の理論について説明し、再構成波動場と残収差との関係を数学的に導出することで収差が再構成波動場に対してどのように作用するのかを明らかにしている。

第 3 章では、再構成波動場に含まれる収差を計測する方法を提案し、原理確認を行った結果について述べている。まず、再構成波動場のコントラストを計測することでデフォーカスと二回非点収差を計測する方法を新たに提案し、提案したデフォーカスの計測・補正方法では試料の中央面付近にフォーカスを合わせていることを明らかにしている。次に、フォーカスの異なる複数枚の画像を用いて電子線の傾斜角と見かけの二回非点収差を計測する方法を提案し、コマ収差と三回非点収差を高い精度で計測できることを述べている。以上の結果から、提案手法を用いることで残収差の計測と補正が可能であると結論している。

第 4 章では、第 3 章で提案した収差の計測方法を用いて、実時間での波動場再構成と残収差の補正が可能な TEM システムの開発を行っている。まず、開発したシステムでは実時間焦点位置変調法と Graphical Processing Unit (GPU) を用いた高速演算を組み合わせることで、実時間での波動場再構成と残収差の補正を実現したことについて説明している。次に、開発したシステムを用いてデフォーカス、二回非点収差、コマ収差、三回非点収差をビデオレートで補正した結果を示している。そして、デフォーカスと二回非点収差の実時間補正では、 $\pm 0.4 \text{ nm}$  という非常に高い精度で計測と補正が行えていることを明らかにしている。以上の結果から、開発したシステムは通常の高分解能実時間観察だけでなく、試料位置変動の激しい環境制御 TEM 観察にも有効に働くと結論している。

第 5 章では、MAL 法を用いて低空間周波数成分の位相回復を行うことを提案し、原理確認を行っている。まず、テスト画像を用いて MAL 法の伝達特性を調べ、本手法では反復的な処理を繰り返すことによって低空間周波数成分を再構成できることを明らかにしている。次に、GPU を用いる処理プログラムを作成し、MAL 法の処理速度を 80 倍程度高速化したことについて説明している。そして、MAL 法と他のフォーカスシリーズ再構成法とを比較し、MAL 法は他の手法

よりも優れた収束速度と伝達特性を有していることを明らかにしている。

第6章では、実際のTEM像を用いて低空間周波数成分の位相回復を行っている。まず、MAL法を用いて磁気バブルの位相回復を行い、これまでの報告例よりも高いSN比で低空間周波数成分の位相回復と磁気構造の可視化を行うことに成功している。次に、電子線ドーズを考慮したシミュレーションによりMAL法の定量性を評価し、本手法はoff-axis電子線ホログラフィーと同程度の位相検出感度を有していることを明らかにしている。また、MAL法を用いて多層グラフエンと金微粒子の位相回復を行い、従来までは困難であった微粒子の形状や試料膜厚の推定に成功している。このような実験結果から、MAL法が低空間周波数成分の位相回復に有効に働くと結論している。

以上のように、本論文は実時間での波動場再構成と残収差の補正が可能なTEMシステムの開発、および低空間周波数成分の位相回復について記述したものであり、その成果は電子顕微鏡学の今後の発展に寄与するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。