

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	https://doi.org/10.18910/70668
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

博士学位論文

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

Development of Real-Time Wave-Field Reconstruction TEM System and Study on Phase Retrieval of Low-Spatial-Frequency Components

田村 孝弘

Takahiro Tamura

2018年3月

大阪大学大学院工学研究科

生命先端工学専攻

Department of Material and Life Science

Graduate School of Engineering

Osaka University

	目次	
--	----	--

諸論		1
第1章	透過型電子顕微鏡における波動場再構成法	5
1.1.	緒言	5
1.2.	透過型電子顕微鏡の結像特性	5
1.3.	off-axis 電子線ホログラフィー	7
1.4.	フォーカスシリーズ再構成法	8
1.4	1. 実時間焦点位置変調法	9
1.4	2. Maximum Likelihood Method	10
1.5.	フォーカスシリーズ再構成法の問題点	10
1.5	1. 残存収差の影響	11
1.5	2. 低空間周波数成分の低い伝達特性	13
1.6.	本研究の目的	14
1.7.	結言	14
参考了	文献	15
第2章	透過型電子顕微鏡の三次元結像理論と実時間焦点位置変調法	17
2.1.	緒言	17
2.2.	透過型電子顕微鏡の三次元結像理論	17
2.3.	実時間焦点位置変調法	21
2.3	1. 焦点位置変調法	22
2.3	2. 滞在時間方式による重み付け	23
2.4.	結言	25
参考了	文献	26
第3章	再構成波動場を用いた収差係数の計測	27
3.1.	緒言	27
3.2.	計測と補正の対象となる残存収差	27
3.3.	デフォーカスと二回非点収差の計測	28
3.3.	 収差係数の計測方法 	28
3.3.	2. 収差係数の計測結果	29

3.4.]-	マ収差と三回非点収差の計測	31
3.4	.1.	収差係数の計測方法	31
3.4	.2.	傾斜角と見かけの二回非点収差の計測	31
3.4	.3.	収差係数の計測結果	34
3.5.	デ	フォーカスの計測方法に関する考察	35
3.5	5.1.	膜厚と決定されるデフォーカス量との関係	35
3.5	5.2.	線形結像成分と非線形結像成分の分離計算	36
3.5	5.3.	線形結像成分を分離した場合のシミュレーション結果	37
3.6.	結		37
参考	文献		38
第4章	実	時間波動場再構成 TEM システムの開発	39
4.1.	緒		39
4.2.	実	寺間波動場再構成 TEM システムの構成	39
4.3.	カ	メラと関数発生器の制御	40
4.3	8.1.	カメラの取り付け	40
4.3	8.2.	関数発生器とカメラの制御ソフトの作成	41
4.3	3.3.	シンチレータの残光時定数の計測	42
4.4.	空	間分解能の評価	43
4.5.	デ	フォーカスと二回非点収差の実時間での計測と補正	44
4.5	5.1.	デフォーカスと二回非点収差の補正結果	44
4.5	5.2.	デフォーカスと二回点収差の計測精度	51
4.5	5.3.	デフォーカスの計測が行える範囲	52
4.6.	コ-	マ収差と三回非点収差の実時間補正	52
4.7.	結		53
参考	文献		53
第5章	M	AL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復についての検討	54
5.1.	緒		54
5.2.	MA	L法を用いた位相回復	54
5.2	2.1.	MAL 法の処理アルゴリズム	54
5.2	2.2.	MAL 法の伝達特性	57
5.3.	IW	FR 法との比較	58
5.3	8.1.	IWFR 法の処理アルゴリズム	59
5.3	3.2.	収束速度の比較	60
5.4.	TIE	王法との比較	61

5.4.1. TIE 法の処理アルゴリズム	61
5.4.2. 伝達特性の比較	62
5.5. 結言	63
参考文献	63
遊(幸 MAI 社な用いた低広期用油粉は八のは相同省	
用 0 早 MAL 法を用いた低空间同波级成分の位相凹復	04
6.1. 緒言	64
6.2. 磁気バブルの位相回復	64
6.2.1. ローレンツ電子顕微鏡法	64
6.2.2. 磁気バブル	65
6.2.3. MAL 法を用いた磁気バブルの位相回復	66
6.2.4. 位相回復の定量性の評価	69
6.3. 多層グラフェンと金微粒子の位相回復	71
6.4. 結言	73
参考文献	74
総任	75
	15
謝辞	78

⑪元未順

79

諸論

透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)は 1932 年に M. Knoll と E. Ruska[1]によって開発されて以来様々な改良が行われ,現在では物質科学や生命科学におけ る重要な観察手法の一つになっている.例えば通常の TEM では常温,真空下に置かれた試 料を観察するが,1960 年代には TEM 内へのガス導入などを行う環境制御型 TEM (Environmental TEM: ETEM)の開発が始まり[2],実用環境下における材料の構造変化をそ の場で観察できるようになった[3,4].また,1960 年代から 1970 年代には特殊な光学系を搭 載したローレンツ TEM (Lorentz TEM: LTEM)が開発され[5,6],試料中の磁場や磁気構造を TEM で観察できるようになった[7,8].1980 年代には試料を冷却するクライオ TEM が開発 され[9,10],電子線に脆弱な蛋白質などの生体材料を低ダメージで観察することも可能に なった[11,12].このような技術開発を経て,TEM は様々な試料の局所領域を観察できる装 置として広く用いられている.

上述したような TEM 観察では薄い試料を観察するため,試料に入射した電子波は試料構造に対応した位相と振幅の変化を受ける.そのため,試料構造を詳細に観察するには,試料を透過した電子波の振幅分布と位相分布を計測することが重要である.このような技術は波動場再構成法もしくは位相回復法と呼ばれ,位相板を用いる方法[13,14],off-axis 電子線ホログラフィー[15,16],フォーカスシリーズ再構成法[17],回折イメージング法[18]などの手法がこれまでに提案されている.特にフォーカスシリーズ再構成法は様々な TEM 観察に用いることができる実用的な手法であるため,本手法の有用性をより高めることは TEM における重要な技術開発課題であると言える.

フォーカスシリーズ再構成法ではデフォーカスの異なる複数枚の画像(スルーフォーカ スシリーズ)を計算処理することで波動場を再構成する.フォーカスシリーズ再構成法の開 発や改良を行う際の指針としては,実時間性と定量性の二つが考えられる.例えば,上述し たような高分解能その場観察や実時間観察などでは原子構造の時間変化を観察するため, 高空間周波数成分の構造情報を高い時間分解能で再構成することが求められる.一方,低倍 観察や LTEM 観察などでは,時間分解能よりも広い空間周波数帯域にわたって波動場を定 量的に再構成することが求められる場合が多い.波動場再構成法の究極の目的は波動場を 実時間でかつ定量的に再構成することであるが,TEM では理想的な位相板が開発されてい ないため実時間性と定量性を両立させるのは難しい.そのため,実時間性と定量性のそれぞ れに特化したようなフォーカスシリーズ再構成法を開発することが直近の課題である.

まず実時間での波動場再構成に関して言うと、高い実時間性を有したフォーカスシリーズ再構成法として T. Ikuta らによって提案されている実時間焦点位置変調法 (real-time Defocus Image Modulation Processing Method: real-time DIMP 法)が挙げられる[19,20]. 通常のフォーカスシリーズ再構成法ではフォーカスの異なる多数枚の画像 (32 枚~256 枚程度)を

一枚ずつ撮影する必要があるため処理を実時間で行うのは難しい.これに対して,real-time DIMP 法ではフォーカスを変調しながら撮影を行うことでビデオレートでの波動場再構成 を実現しており,実時間で再構成が行える唯一の手法である.しかしながら,real-time DIMP 法には対物レンズに含まれる残存収差によって像コントラストが歪んでしまうという問題 点があるため,より正確な波動場を再構成するにはこれらの収差を実時間で補正すること が求められていた.

次に、フォーカスシリーズ再構成法を用いて波動場を定量的に再構成するには、低空間周 波数成分を正確に再生することが重要になる.これはフォーカスシリーズ再構成法では TEM の伝達特性に起因して、低空間周波数成分の伝達特性が低いためである.低空間周波 数成分を定量的に再構成するには、大きなデフォーカスで撮影を行うことと低空間周波数 成分を画像処理的に強調することが必要である.しかし、低空間周波数成分を画像処理的に 再生する方法はこれまで研究されておらず、検討の余地が残されていた.低空間周波数成分 を画像処理的に再生する方法としては様々な方法が考えられるが、反復的なフォーカスシ リーズ再構成法である Maximum Likelihood Method (MAL 法)[21,22]はより正確な波動場を 再構成できるという特徴を有しているため、低空間周波数成分の位相回復に有効に働くの ではないかと考えられる.

そこで本研究ではフォーカスシリーズ再構成法の実用性をより高めるために,

1. real-time DIMP 法をベースにした残存収差の実時間補正が可能なシステムの開発

2. MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復

を目的に研究を行った.本研究では実時間での残存収差補正と低空間周波数成分の位相回 復という個別のテーマに取り組んでいるが,これらの技術開発はフォーカスシリーズ再構 成法の実用性を高めるには必要不可欠なものである.本論文はこれらの研究成果をまとめ たものであり,以下の6章より構成される.なお,残存収差の実時間補正が可能なシステム 開発については2章から4章で述べ,低空間周波数成分の位相回復については5章と6章 で述べる.以下に各章の要旨を述べる.

第1章 透過型電子顕微鏡における波動場再構成法

第1章では、本研究の背景と目的について説明する.まず TEM の結像特性について説明 し、波動場再構成の重要性について述べる.次に off-axis 電子線ホログラフィーとフォーカ スシリーズ再構成法について説明し、フォーカスシリーズ再構成法の実用的な利点につい て説明する.そして、フォーカスシリーズ再構成法の中でも特に優れた手法である実時間焦 点位置変調法と MAL 法について説明する.最後にフォーカスシリーズ再構成法の問題点を 明らかにし、本研究の位置づけを行う.

第2章 透過型電子顕微鏡の三次元結像理論と実時間焦点位置変調法

第2章では,TEMの三次元結像理論と実時間焦点位置変調法の理論的な背景について説明する.まず実時間焦点位置変調法を理解するためにTEMの三次元結像理論を説明する. 次に実時間焦点位置変調法について説明し,残存収差が再構成波動場にどのような影響を 与えるのかを数式で説明する.

第3章 再構成波動場を用いた収差係数の計測

第3章では、第2章の理論展開に基づいた残存収差の計測方法を提案し、原理確認を行った結果について説明する.まずデフォーカスと二回非点収差という収差の計測方法を提案し、収差の計測と補正を確認した結果について述べる.次に、電子線の傾斜角を計測する手法を提案し、コマ収差と三回非点収差という収差を計測した結果を述べる.最後にデフォーカスの計測に関する考察を述べる.

第4章 実時間波動場再構成 TEM システムの開発

第4章では,第3章で提案した収差の計測方法を利用して,残存収差の実時間補正が可能な TEM システムを開発したことについて説明する.まず実時間波動場再構成 TEM システムの構成について説明する.次にシステムの開発を行い,空間分解能の評価を行った結果について述べる.最後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,三回非点収差の実時間での補正が可能になったことを説明する.

第5章 MAL法を用いた低空間周波数成分の位相回復についての検討

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、本手法の検討を行った結果について説明する.まず MAL 法の処理アルゴリズムを説明し、高速な処理プログラムを作成したことについて述べる.次にテスト画像を用いて処理を行い、MAL 法の伝達特性を明らかにした結果を述べる.最後に MAL 法と他のフォーカスシリーズ再構成法との比較を行った結果を述べる.

第6章 MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復

第6章では、実際のスルーフォーカスシリーズを用いて MAL 法による再構成を行った結 果について説明する.まず、LTEM で撮影したスルーフォーカスシリーズを用いて低空間周 波数成分の位相回復を行った結果について述べる.次にシミュレーションを用いて MAL 法 の定量性について評価を行った結果を述べる.最後に高分解能 TEM (High Resolution TEM: HRTEM) で撮影した像シリーズを用いて、低空間周波数成分の位相回復を行った結果につ いて述べる.

最後に総括として、本論文のまとめと今後の研究課題、将来の展望について述べる.

参考文献

- 1. M. Knoll, and E. Ruska, Zeitschrift für Physik, 78, 318 (1932).
- 2. H. Hashimoto, T. Naiki, T. Eto, and K. Fujiwara, Jpn. J. Appl. Phys., 7, 946 (1968).
- 3. T. Kawasaki, K. Ueda, M. Ichihashi, and T. Tanji, Rev. Sci. Instrum., 80, 113701 (2009).
- 4. S. Takeda, Y. Kuwauchi, and H. Yoshida, Ultramicroscopy, 151, 178 (2015).
- 5. M. E. Hale, H. W. Fuller, and H. Rubinstein, J. Appl. Phys., 30, 789 (1959).
- 6. T. Hirayama, Q. Ru, T. Tanji, and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett., 63, 418 (1993).
- K. Harada, T. Matsuda, J. Bonevich, M. Igarashi, S. Kondo, G. Pozzi, U. Kawabe, and A. Tonomura, *Nature*, 360, 51 (1992).
- H. Nakajima, H. Kawase, K. Kurushima, A. Kotani, T. Kimura, and S. Mori, *Phys. Rev. B.*, 96, 024431 (2017).
- 9. M. Adrian, J. Dubochet, J. Lepault, and A. W. McDowall, *Nature*, 308, 32 (1984).
- 10. R. A. Milligan, A. Brisson, and P. N. T. Unwin, Ultramicroscopy, 13, 1 (1984).
- 11. Y. Takai, T. Nomaguchi, S. Matsushita, and Y. Kimura, Appl. Phys. Lett., 89, 133903 (2006).
- 12. D. Kimanius, B. O. Forsberg, S. H. W. Scheres, and E. Lindahl, *eLife*, 5, e18722 (2016).
- 13. K. Nagayama, and R. Danev, Biophys Rev., 1, 37 (2009).
- M. Malac, M. Beleggia, M. Kawasaki, P. Li, and R. F. Egerton, *Ultramicroscopy*, **118**, 77 (2012).
- 15. G. Möllenstedt, and H. Düker, Naturwiss, 42, 41 (1954).
- 16. H. Lichte, and M. Lehmann, Rep. Prog. Phys., 71, 016102 (2008).
- 17. W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 55, 171 (1994).
- S. Morishita, J. Yamasaki, K. Nakamura, T. Kato, and N. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, 93, 183103 (2008).
- Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, 48, 873 (1999).
- Y. Takai, Y. Kimura, T. Ikuta, R. Shimizu, Y. Sato, S. Isakozawa, and M. Ichihashi, J. Electron Microsc., 48, 879 (1999).
- 21. W. Coene, G. Janssen, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, Phys. Rev. Lett., 69, 3743 (1992).
- 22. W. Coene, A. Thust, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, Ultramicroscopy, 64, 109 (1996).

第1章 透過型電子顕微鏡における波動場再構成法

1.1.緒言

TEM では様々な試料の局所領域を観察できるが, 試料の構造を詳細に解析するには試料 を透過した電子波の振幅分布と位相分布を計測することが重要である.電子波の振幅分布 と位相分布を計測する手法は波動場再構成法または位相回復法と呼ばれ, これまでに様々 な手法が提案されている.特にフォーカスシリーズ再構成法は他の手法よりも実用的な利 点を有しており,本手法の正確性や定量性を高めることは TEM における重要な技術開発項 目である.

本章では初めに TEM の結像特性について説明し,波動場再構成の重要性について述べる. 次に TEM でよく用いられている波動場再構成法として off-axis 電子線ホログラフィーと フォーカスシリーズ再構成法について説明する.そして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として実時間焦点位置変調法と Maximum Likelihood Method について 説明する.最後にフォーカスシリーズ再構成法の問題点を明らかにし,本研究の目的を述べ る.

1.2.透過型電子顕微鏡の結像特性

図 1-1 は TEM の光学系を模式的に表したもので あり、二次元物面から二次元像面への結像を考えて いる.実際の TEM では試料を透過した電子波は対 物レンズ、中間レンズ、投影レンズを介して像面に 拡大結像されるが、ここでは対物レンズのみを考え、 倍率は1で像の倒立はないものとする.

以下では実空間,逆空間における二次元ベクトル を $r_{2D} = (x, y), g_{2D} = (u, v)$ と表す. 試料が電子波に 与える振幅と位相の変化を複素透過関数として以下 のように定義する.



図 1-1 TEM の光学系の模式図.

 $h(\mathbf{r_{2D}}) = h_r(\mathbf{r_{2D}}) + ih_i(\mathbf{r_{2D}})$

(1.1)

ここで $h_r(r_{2D})$, $h_i(r_{2D})$ は複素透過関数の実部成分と虚部成分を表す実関数である.また、 複素透過関数のフーリエ変換を以下のように表す.

$$H(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = H_r(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) + iH_i(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})$$
(1.2)

光軸に対して垂直に入射する電子波の振幅を A とすると、試料を透過した直後の電子波は以下の式で表される.

$$\psi_t(\mathbf{r}_{2D}) = A \cdot h(\mathbf{r}_{2D})$$
$$= A \int H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp(i2\pi \mathbf{g}_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) d\mathbf{g}_{2D}$$
(1.3)

TEM の対物レンズには収差と呼ばれる歪みが残存しており、対物レンズに入射した電子 波は収差によって波面が歪められる. 収差の影響を表す収差関数を対称収差関数 $\gamma_{sym}(g_{2D})$ と非対称収差関数 $\gamma_{anti-sym}(g_{2D})$ に分離して考えると[1,2]、像面における電子波は以下のように表される.

$$\psi_i(\boldsymbol{r_{2D}}) = A \int H(\boldsymbol{g_{2D}}) \cdot exp\{i\gamma_{sym}(\boldsymbol{g_{2D}}) + i\gamma_{anti-sym}(\boldsymbol{g_{2D}})\} \cdot exp(i2\pi\boldsymbol{g_{2D}} \cdot \boldsymbol{r_{2D}})d\boldsymbol{g_{2D}}$$
(1.4)

対称収差関数,非対称収差関数は空間周波数に関して偶関数,奇関数として表される. TEM で観測できるのは電子波の強度分布のみであるので,得られる TEM 像は以下の式で表される.

$$\begin{split} i(\mathbf{r}_{2D}) &\simeq A^{2} |H(0,0)|^{2} \\ +2A^{2} |H(0,0)| \int_{g_{2D}\neq 0} H_{r}(g_{2D}) \cdot \cos \gamma_{sym}(g_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(g_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi g_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) dg_{2D} \\ -2A^{2} |H(0,0)| \int_{g_{2D}\neq 0} H_{i}(g_{2D}) \cdot \sin \gamma_{sym}(g_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(g_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi g_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) dg_{2D} \\ \end{split}$$

$$(1.5)$$

式(1.5)から TEM 像のコントラストは、収差関数によって振幅変調と位相変調を受けた複素透過関数の和で表される. $\cos \gamma_{svm}(g_{2D})$, $\sin \gamma_{svm}(g_{2D})$ は複素透過関数の実部成分と虚部

成分の伝達特性を決める関数であり、それぞれ振幅コントラスト伝達関数(Amplitude Contrast Transfer Function: ACTF),位相コントラスト伝達関数(Phase Contrast Transfer Function: PCTF)と呼ばれる[3].図1-2は球面収差とデフォーカスと呼ばれる対称収差を考慮した時の位相コントラスト伝達関数,振幅コントラスト伝達関数を示している.ここでは加速電圧は200 kV,球面収差係数は0.8 mm,デフォーカス量は Δf =-50 nm, 50 nm, 100 nmとして計算した.図1-2ではコントラスト伝達関数は空間周波数ごとに異なる値をとり、フォーカスが変化すると伝達関数の値も変化することが示されている.複素透過関数はコントラスト伝達関数の絶対値が大きいほど伝達されやすく、伝達関数の値がゼロの場合は

このように通常の TEM 像では複素透過関数の実部成分と虚部成分を分離して得ることが できないうえに、収差によって像コントラストが歪められている.そのため、試料構造を正 しく観察するためには、試料を透過した直後の電子波の波動場を正確に再構成することが 重要である.波動場を再構成する方法としては位相板を用いる方法[4,5]、off-axis 電子線ホ ログラフィー[6,7]、フォーカスシリーズ再構成法[8]、回折イメージング法[9]などがこれま でに提案されているが、TEM では off-axis 電子線ホログラフィーとフォーカスシリーズ再 構成法がよく用いられている.



図 1-2 位相コントラスト伝達関数と振幅コントラスト伝達関数.

1.3. off-axis電子線ホログラフィー

図 1-3 は off-axis 電子線ホログラフィーの光学系と再構成処理の模式図を示している[7]. off-axis 電子線ホログラフィーの光学系は基本的に通常の TEM と同じであるが,電子線バ イプリズム[10]と呼ばれる金属細線が挿入されている点が大きく異なっている.電子線バイ プリズムに電圧を加えると電子線が偏向し重なり合うため,像面では電子線ホログラムと 呼ばれる干渉縞が観察される. off-axis 電子線ホログラフィーでは通常,試料を透過した電 子波と真空領域を通過した電子波を重ね合わせ,得られたホログラムから波動場を再構成 する.図1-3の右下には酸化マグネシウム結晶から得られた電子線ホログラムが示されてい る.電子波の振幅変化はホログラムのコントラストとして,電子波の位相変化は干渉縞のシ フト量として表れている.電子波の振幅分布と位相分布はフーリエ空間でのフィルタリン グ処理によって分離でき,図1-3の右上には再構成された振幅分布と位相分布がそれぞれ示 されている.

off-axis 電子線ホログラフィーは広い空間周波数帯域にわたって波動場を再構成できるた め高い定量性を有しており、原理的に優れた手法であると言える.しかし、本手法では試料 を透過した電子波と真空領域を通過した電子波を干渉させる必要があるため、観察できる 領域が真空領域付近に限られてしまうという問題点がある.そのため、本手法を薄膜状の試 料や膜上に分散された試料などの観察に用いるのは難しい.off-axis 電子線ホログラフィー の観察視野を広げる方法としては複数のバイプリズムを用いる方法などが提案されている が[11]、より高精度な電子線バイプリズムのアライメントが必要とされることもあり問題の 根本的な解決には至っていないのが現状である.



図 1-3 off-axis 電子線ホログラフィーの光学系と処理の模式図[7].

1.4. フォーカスシリーズ再構成法

フォーカスシリーズ再構成法はデフォーカスによってコントラスト伝達関数が変化する ことを利用し、デフォーカス量の異なる複数枚の画像を計算処理することで電子波の振幅 分布と位相分布を求める手法である[8].本手法は観察領域の制限を受けることがないため、 HRTEM 観察,LTEM 観察,生体材料の観察などに用いることができるという利点を有して いる. フォーカスシリーズ再構成法は 1968 年に P. Schiske によって先駆的な研究がなされて以 来[12],様々な手法がこれまでに提案されている. P. Schiske によって提案された方法ではデ フォーカスの異なる各画像を二次元フーリエ空間で処理することで波動場を再構成する. W. O. Saxton らによって指摘されているように[8],本手法の本質はデフォーカスを第三の軸と して取り入れた三次元フーリエ空間における TEM の伝達特性(三次元伝達特性)を考える ことで説明できる. T. Ikuta らは三次元伝達特性を議論するための三次元結像理論を展開し [13],焦点位置変調法(Defocus Image Modulation Processing Method: DIMP 法)[14,15]や三次 元フーリエフィルタリング法(Three Dimensional Fourier Filtering Method: 3DFFM)[16,17]と 呼ばれる手法を提案している.さらに T. Ikuta は DIMP 法をベースにして,ビデオレートで の波動場再構成が可能な実時間焦点位置変調法を提案している[18-20].また,光学の分野で は三次元結像理論とは別に強度輸送方程式(Transport of Intensity Equation: TIE)と呼ばれる 式が展開されており[21],TIE を用いた位相回復法(TIE 法)も提案さている[22,23].上述 したフォーカスシリーズ再構成法は全てフーリエ解析的な手法であるが,統計学的なアイ デアを取り入れた Maximum Likelihood Method と呼ばれる反復的な波動場再構成法も D. V. Dyck らによって提案されている[24,25].

本節ではこれらのフォーカスシリーズ再構成法のうち,実時間性や定量性に優れた手法である実時間焦点位置変調法と Maximum Likelihood Method について説明する.

1.4.1.実時間焦点位置変調法

実時間焦点位置変調法は1994年にT. Ikuta らによって提案された手法である[18]. 図1-4 は実時間焦点位置変調法の処理を模式的に示したものである[20]. 通常のフォーカスシリー ズ再構成法ではフォーカスの異なる画像を一枚ずつ撮影するが,実時間焦点位置変調法で は露光中にフォーカスを高速・高精度に変調し,1フレーム中に多数のデフォーカス画像を 重畳して撮影する.そして撮影された画像間で差分処理をすることで,波動場の実部成分ま たは虚部成分を再構成する. 波動場の実部成分と虚部成分を再構成するには四種類の フォーカス変調関数が必要であるが,図1-4 では二種類のフォーカス変調関数が示されてい る.フォーカスの高速変調は加速電圧を変化させることで実現しており,関数発生器が組み 込まれた特殊な加速電源が用いられている.また高電圧部は寄生容量を低減させるために 二重にシールドされている.

このように実時間焦点位置変調法はフォーカスの高速変調という独自のアイデアに基づいた手法であり、四枚の撮影像から波動場を再構成できる.そのため、フォーカスの高速変調と差分処理を連続的に行うことで、波動場をビデオレートで再構成できる.本手法は実時間性を有する唯一の波動場再構成法であり、他の再構成法とは一線を画した画期的な手法である.近年では TEM を用いた高分解能その場観察が注目されていることもあり、本手法の重要性はより大きくなっていると言える.



図 1-4 実時間焦点位置変調法における処理の模式図[20].

1.4.2. Maximum Likelihood Method

Maximum Likelihood Method は 1992 年に D. V. Dyck らによって提案された手法である[24]. 図 1-5 は MAL 法の処理を模式的に示したもの である[25]. 通常のフォーカスシリーズ再構成 法では多数枚のデフォーカス画像から解析的 に波動場を再構成するが, MAL 法では反復的 な処理によって波動場を再構成する.本手法で は実験的に得られたスルーフォーカスシリー ズと再構成波動場から計算される像シリーズ との誤差が最小になるように波動場を反復的 に再構成する.本手法は他のフォーカスシリー



図 1-5 MAL 法における処理の模式図[25].

ズ再構成法よりも計算量が多いため処理時間が長いという問題があるが,正確な波動場を 再構成するという点において他のフォーカスシリーズ再構成法よりも優れた手法であると 言える.

1.5. フォーカスシリーズ再構成法の問題点

フォーカスシリーズ再構成法は様々な試料の観察に用いることができるため、波動場を 再構成する手法として一般的に用いられている.しかし、フォーカスシリーズ再構成法には TEM の伝達特性に起因して 1. 再構成された波動場は対物レンズの様々な残存収差の影響を受けている

2. 位相分布の低空間周波数成分が伝達されにくい

という問題があることが知られている.そのため,波動場をより正確に再構成するにはこれ らの問題を解決することが必要不可欠である.本節ではこれらの問題点とこれまでの研究 状況について説明する.

1.5.1.残存収差の影響

1.2 節で説明したようにフォーカスシリーズ再構成法で用いる TEM 像のコントラストは 残存収差によって歪んでいるため,再構成される波動場も収差の影響を受ける. 収差の影響 は高い空間周波数成分になるほど大きくなるため,残存収差の影響は HRTEM 観察におい て問題になることが多い.

図 1-6 は TEM の対物レンズに残存する 収差の収差図形を示している[26]. 収差図 形はフーリエ空間において収差がどのよ うな位相変化を引き起こすのかを表した ものであり,それぞれ像シフト(W_{ϵ}),デ フォーカス(C_1),二回非点収差(A_1),コ マ収差(B_2),三回非点収差(A_2),球面収 差(C_3),スター収差(S_2),四回非点収差

(A₃)に対応している. order が偶数の収差は非対称収差に分類され, order が奇数の収



図 1-6 軸上幾何収差の一覧[26].

差は対称収差に分類される.また,multiplicityは収差の回転対称性を表している.

次に対物レンズに含まれる対称収差,非対称収差が再構成波動場に対してどのような影響を与えるのかを,デフォーカス,コマ収差を例に挙げて説明する.図1-7はフォーカスシリーズ再構成法で実現される位相コントラスト伝達関数を示したものである.デフォーカス量が0nmの時は広い空間周波数帯域にわたって平坦な伝達特性が実現されており,波動場の虚部成分が比較的正しいコントラストで伝達される.しかしデフォーカス量が変化すると伝達特性も変化するため,図1-7(c)では高空間周波数成分の伝達特性が反転しコントラストが正しく伝達されなくなっている.



図 1-7 フォーカスシリーズ再構成法で実現される位相コントラスト伝達関数.

図 1-8 はコマ収差が像コントラストに与える影響を示したものであり,カーボンナノ チューブのシミュレーション像とチューブ断面方向のラインプロファイルを示している [27]. 図中ではカーボンナノチューブの壁面が暗いコントラストで表れているが,コマ収差 を考慮した像では壁面の位置が本来の場所からずれて結像されていることが確認できる.



図 1-8 カーボンナノチューブのシミュレーション像とナノチューブ断面方向のラインプロファイル[27]. (a) コマ収差がない場合.(b) コマ収差がある場合.

以上のように残存収差はコントラストの変化や原子位置のシフトを引き起こし、正しい 試料構造の観察を困難にする.これらの収差は波動場の再構成と収差係数の計測ができれ ば、補正関数を乗算することによって補正できる.波動場に含まれる収差を計測する方法と してはオフライン型の処理が報告されているが[28,29]、収差を実時間で補正する研究はこれ まで行われていないのが現状である.

1.5.2.低空間周波数成分の低い伝達特性

1.2 節で示したように TEM の位相コントラスト伝達関数は低空間周波数において小さい 値であるため、フォーカスシリーズ再構成法では低空間周波数成分の伝達特性が低い. 低空 間周波数成分の低い伝達特性は比較的大きな構造を観察する低倍観察などで問題になりや すい.

低空間周波数成分の伝達特性が問題になる例として,TIE 法によって計測された磁気スキ ルミオンの面内磁化分布を図 1-9 に示す[30].磁気スキルミオンとは磁性薄膜中に生成され る円柱状の磁気構造で,渦状の磁場分布を有している[31].面内磁化分布の色相と色の明る さは磁化ベクトルの向きと大きさに対応しており,この論文では磁気スキルミオンは三重 のリング状の磁気構造をもつと主張されている.しかし,面内磁化分布を正確に計測するに は低空間周波数成分を再生する必要があるため,図 1-9 の結果からは磁気スキルミオンが本 当に三重の磁気構造をもっているのかを結論づけることはできない.このように低空間周 波数成分の再生は,大きな構造をもつ試料を観察する際に特に重要となる.



図 1-9 (a) フォーカスシリーズ再構成法によって計測された磁気スキルミオンの面 内磁化分布. (b) (a)の拡大像[30].

低空間周波数成分の伝達特性はデフォーカス量の大きさに依存しているため,低空間周 波数成分を再生する方法としては

1. 大きなデフォーカス量で撮影する

2. 低空間周波数成分を画像処理的に強調する

という二つの方法が考えられる.大きなデフォーカスをかける方法は低空間周波数成分を 再生するのに有効な手法である.しかし,デフォーカス量を大きくするとACTFとPCTFが 変化するだけでなく,像の倍率の変化,像回転,像シフトなどが発生するため,どこまでも デフォーカス量を大きくするのは難しい.一方,低空間周波数成分を画像処理的に強調する 方法は比較的簡便に行えるものの,SN比の低い再構成波動場に適用するとアーティファク トを引き起こしやすいと考えられる.そのため,出来るだけ大きなデフォーカス範囲で フォーカスシリーズを撮影し,十分に伝達されていない空間周波数成分を画像処理的に強 調する方法が現実的であると考えられる.これまでにデフォーカスに伴う像の倍率の変化, 像回転,像シフトなどを抑えるためのシステム開発[32]や,これらのパラメータの変化を計 測し画像処理的に補正する手法の開発[33]は報告されているが,低空間周波数成分を画像処 理的に強調する方法はほとんど研究されていないのが現状である.

1.6.本研究の目的

実時間焦点位置変調法は実時間性を有する優れた再構成法であるが、1.5.1 項で述べたように再構成された波動場は残存収差の影響を受けている.そのため、実時間で収差の計測と補正ができれば、より正確な波動場の実時間観察が可能になると期待される. 収差の計測と補正をオンラインで行うには高速な計算処理が必要であるが、近年注目を集めているGraphical Processing Unit (GPU)を用いた汎用計算を利用することで、これらの処理が可能になるのではないかと考えられる.そこで本論文では研究目的の一つ目を実時間での波動場再構成と残存収差の補正が可能な TEM システムの開発として研究を行った.

また 1.5.2 項で述べたようにフォーカスシリーズ再構成法を定量的に行うためには,低空 間周波数成分の画像処理的な強調方法を検討する必要がある. 1.4.2 項で述べた MAL 法で は反復的に尤もらしい波動場を再構成できるため,本手法は低空間周波数成分を画像処理 的に強調する方法として有効に働くのではないかと考えられる. MAL 法は他のフォーカス シリーズ再構成法よりも計算量が多いためこれまで注目されていなかったが,GPU を用い ることで実用的な処理時間で波動場を再構成できるのではないか考えられる. そこで本論 文では研究目的の二つ目を MAL 法による低空間周波数成分の位相回復として研究を行っ た.

1.7. 結言

本章では TEM の結像特性について説明し,電子波の振幅分布と位相分布を再構成する波 動場再構成法の重要性を示した.次にフォーカスシリーズ再構成法は実用性に優れた手法 であるということを説明し,実時間焦点位置変調法や Maximum Likelihood Method の特徴を 明らかにした.そしてフォーカスシリーズ再構成法を用いてより正確な波動場を再構成す るには,残存収差の補正と低空間周波数成分の位相回復が必要であることを述べた.次にこ れまでの残存収差の補正は全てオフライン型の処理であることを述べ,実時間焦点位置変 調法と GPU を用いた残存収差の実時間補正を提案した.最後に低空間周波数成分を画像処 理的に再生する方法がこれまで検討されていないことを指摘し,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た.

参考文献

- 1. R. R. Meyer, A. I. Kirkland, and W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 92, 89 (2002).
- 2. R. R. Meyer, A. I. Kirkland, and W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 99, 115 (2004).
- 3. 今野豊彦,物質からの回折と結像,共立出版 (2009).
- 4. K. Nagayama, and R. Danev, *Biophys Rev.*, **1**, 37 (2009).
- M. Malac, M. Beleggia, M. Kawasaki, P. Li, and R. F. Egerton, *Ultramicroscopy*, **118**, 77 (2012).
- 6. H. Lichte, and M. Lehmann, Rep. Prog. Phys., 71, 016102 (2008).
- M. Linck, B. Freitag, S. Kujawa, M. Lehmann, and T. Niermann, *Ultramicroscopy*, **116**, 13 (2012).
- 8. W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 55, 171 (1994).
- S. Morishita, J. Yamasaki, K. Nakamura, T. Kato, and N. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, 93, 183103 (2008).
- 10. G. Möllenstedt, and H. Düker, *Naturwiss*, **42**, 41 (1954).
- K. Harada, T. Matsuda, A. Tonomura, T. Akashi, and Y. Togawa, *J. Appl. Phys.*, **99**, 113502 (2006).
- 12. P. Schiske, In Proceedings of 4th European Reg. Conference EM, Rome (1968).
- 13. H. Utsuro, T. Ando, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, Optik, 112, 67 (2001).
- 14. T. Ikuta, J. Electron Microsc., 38, 415 (1989).
- 15. Y. Taniguchi, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, J. Electron Microsc., 41, 21 (1992).
- 16. T. Kawasaki, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, Ultramicroscopy, 90, 47 (2001).
- 17. T. Kawasaki, M. Taya, T. Nomaguchi, and Y. Takai, Ultramicroscopy, 102, 127 (2005).
- T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu, and T. Ikuta, *Ultramicroscopy*, 54, 261 (1994).
- Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, 48, 873 (1999).
- Y. Takai, Y. Kimura, T. Ikuta, R. Shimizu, Y. Sato, S. Isakozawa, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, 48, 879 (1999).
- 21. M. R. Teague, J. Opt. Soc. Am., 73, 1434 (1983).
- 22. D. Paganin, and K. A. Nugent, Phys. Rev. Lett., 80, 2586 (1998).
- 23. K. Ishizuka, and B. Allman, J. Electron Microsc., 54, 191 (2005).

- 24. W. Coene, G. Janssen, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, Phys. Rev. Lett., 69, 3743 (1992).
- 25. W. Coene, A. Thust, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, Ultramicroscopy, 64, 109 (1996).
- 26. F. Kahl, P. Hartel, M. Linck, H. Müller, and M. Haider, In *proceedings of 18th International microscopy Congress*, Prague (2014).
- 27. J. Biskupek, P. Hartel, M. Haider, and U. Kaiser, Ultramicroscopy, 116, 1 (2012).
- 28. A. J. Koster, A. V. Bos, and K. D. Mast, Ultramicroscpy, 21, 209 (1987).
- 29. M. Hayashida, T. Nomaguchi, Y. Kimura, and Y. Takai, Micron, 38, 505 (2007).
- 30. N. Nagaosa, and Y. Tokura, Nature Nanotech., 8, 899 (2013).
- 31. S. Seki, X. Z. Yu, S. Ishiwata, and Y. Tokura, Science, 336, 198 (2012).
- 32. 平林祐太, 大阪大学修士論文 (2017).
- 33. 中根志学, 大阪大学修士論文 (2017).

第2章 透過型電子顕微鏡の三次元結像理論と実時間

焦点位置変調法

2.1.緒言

第1章で述べたように実時間焦点位置変調法はビデオレートで波動場を再構成できる優れた手法である.しかし再構成波動場は残存収差の影響を受けているため,波動場を正確に 再構成するにはこれらの収差を実時間で補正することが重要である.残存収差の補正を行 うには,残存収差と複素透過関数が再構成波動場においてどのような式で関係付けられる のかを明らかにする必要がある.

本章ではまず実時間焦点位置変調法の説明の前段階として,TEM の三次元結像理論について説明する.そして実時間焦点位置変調法の理論を説明し,残存収差を含んだ再構成波動場の導出を行う.球面収差を考慮した実時間焦点位置変調法の理論展開は Y. Taniguchi らによってなされているが[1],本章では球面収差以外の一般的な残存収差を補正するために対称収差と非対称収差を考慮した式展開を行う.

2.2.透過型電子顕微鏡の三次元結像理論

三次元結像理論では図2-1に示したような 二次元試料面から, z 軸を第三の軸として加 えた三次元像空間への伝搬を考える[2]. 三 次元像空間の z 軸はデフォーカスに対応し ている.

以下では、三次元実空間ベクトルを \mathbf{r}_{3D} = (x, y, z)、それに対する三次元逆空間ベクト ルを $g_{3D} = (u, v, w)$ 、電子波の波数ベクトル を $k_{3D} = (k_x, k_y, k_z)$ と表す、光軸に対して垂 直に電子波が入射する場合、 $k_{3D} =$ $(0, 0, 1/\lambda)$ である.また $k_{2D} = (k_x, k_y)$ とし、波 数ベクトルの大きさをkと表す、入射波とし て振幅 A の平面波を考えると、入射電子波の 波動場は次のように表される.



図 2-1 三次元結像理論で扱う光学系の模式図.

$$\psi_0(\mathbf{r_{3D}}) = A \cdot exp\{i2\pi(\mathbf{k_{3D}} \cdot \mathbf{r_{3D}})\}$$
(2.1)

式(1.1)で示した試料の複素透過関数 $h(r_{2D})$ を用いると, 試料を透過した直後の電子波は以下のように表される.

$$\psi_t(\mathbf{r}_{3D}) = \{h(\mathbf{r}_{2D}) \cdot \delta(z)\} \cdot \psi_0(\mathbf{r}_{3D})$$
$$= A \int H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{i2\pi(\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}) \cdot \mathbf{r}_{3D}\} d\mathbf{g}_{3D}$$
(2.2)

ここで $k_{3D} + g_{3D}$ は試料によって回折された電子波の波数ベクトルを表している.電子線は 試料によって弾性散乱すると考えると、入射波と回折波のエネルギーは等しいので以下の 関係式が成り立つ.

$$|k_{3D}| = |k_{3D} + g_{3D}| \tag{2.3}$$

この関係式をデルタ関数として式(2.2)に取り入れると以下のようになる.

$$\psi_t(\mathbf{r}_{3D}) = A \int \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{i2\pi(\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}) \cdot \mathbf{r}_{3D}\} d\mathbf{g}_{3D}$$
(2.4)

試料を透過した電子波は対物レンズを介して三次元像空間に伝搬される.対物レンズの収 差の影響を考慮すると,三次元像空間における波動場は以下のように表される.

$$\psi_{i}(\mathbf{r}_{3D}) = A \int \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D})\}$$
$$\cdot exp\{i2\pi(\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}) \cdot \mathbf{r}_{3D}\}d\mathbf{g}_{3D}$$
(2.5)

ただし $\gamma(g_{2D}) = \gamma_{sym}(g_{2D}) + \gamma_{anti-sym}(g_{2D})$ である.よって三次元空間における像強度分布 は次のように表される.

$$i(\boldsymbol{r_{3D}}) = \psi_i(\boldsymbol{r_{3D}}) \cdot \psi_i^*(\boldsymbol{r_{3D}})$$

$$= i_{gackground}(\mathbf{r}_{3D}) + i_{linear}(\mathbf{r}_{3D}) + i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D})$$
(2.6)

ここで $i_{gackground}(\mathbf{r}_{3D})$, $i_{linear}(\mathbf{r}_{3D})$, $i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D})$ はバックグラウンド成分,線形結像成分,非線形結像成分と呼ばれる成分であり以下のように表される[3].

$$i_{gackground}(\mathbf{r_{3D}}) = A^2 |H(0,0)|^2$$
 (2.7)

$$i_{linear}(\mathbf{r}_{3D}) \cong A^{2}|H(0,0)| \int_{g_{3D}\neq0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + g_{3D}|) \cdot H^{*}(g_{2D})$$

$$\cdot exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + g_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot exp(-i2\pi g_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) dg_{3D}$$

$$+A^{2}|H(0,0)| \int_{g_{3D}\neq0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + g_{3D}|) \cdot H(g_{2D})$$

$$\cdot exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + g_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot exp(i2\pi g_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) dg_{3D} \qquad (2.8)$$

$$i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D}) = A^{2} \int_{g_{3D}\neq0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + g_{3D}|) \cdot H^{*}(g_{2D})$$

$$\cdot exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + g_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot exp(-i2\pi g_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) dg_{3D}$$

$$\cdot \int_{g_{3D}\neq0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + g_{3D}|) \cdot H(g_{2D})$$

$$\cdot exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + g_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot exp(i2\pi g_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) dg_{3D} \qquad (2.9)$$

上式から分かるように,バックグラウンド成分は位置によらない一様な強度分布を示す. 線形結像成分は透過波と回折波との干渉項であり,複素透過関数の線形和で表される.その ため,線形結像成分は試料構造に直接対応したコントラストを示す.一方,非線形結像成分 は回折波同士の干渉項であり,試料構造に直接的には対応しない.

次に線形結像成分と非線形結像成分を三次元フーリエ変換しその伝達特性を考える.線 形結像成分と非線形結像成分の三次元フーリエ変換は次のように表される. $I_{linear}(\boldsymbol{g_{3D}}) = A^2 |H(0,0)|$

$$\cdot \left[\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} - \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^*(-\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} - \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} + \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \right]$$

$$(2.10)$$

 $I_{non-linear}(\boldsymbol{g_{3D}}) =$

$$A^{2}[\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} - \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^{*}(-\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} - \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\}]$$

$$\otimes [\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\}]$$
(2.11)

式(2.10)から分かるように線形結像成分は三次元逆空間において二つのデルタ関数で表さ れる球殻上に分布している.図 2-2 は三次元逆空間における線形結像成分の分布を模式的に 表したものである.図 2-2(a)は軸上照明下,図 2-2(b)は傾斜照明下における分布を表してい る.傾斜照明下では二つの球殻の位置がシフトしており、シフト量はビーム傾斜角に対応し ている.線形結像成分が分布している二つの球殻は X線回折のエバルト球にならってエバ ルト球対と呼ばれる.一方、非線形結像成分は式(2.11)から分かるように三次元フーリエ空 間に広く分布している.図 2-3 は三次元フーリエ空間の uw 断面における非線形結像成分の 分布を示したものである.非線形結像成分は三次元フーリエ空間においてドーナツ状の領 域に分布しており、分布領域はビーム傾斜角に関わらず一定である.



図 2-2 三次元フーリエ空間における線形結像成分の分布. (a) 軸上照明下. (b) 傾斜 照明下.



布. (a) 軸上照明下. (b) 傾斜照明下.

本論文では軸上照明下における実時間焦点位置変調法を取り扱うため,式(2.10)を用いて 軸上照明下における線形結像成分の伝達特性を求める.軸上照明下では波数ベクトル間の 関係式(2.3)は以下のように変形できる.

$$|\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2 - 2k\boldsymbol{w} \approx 0 \tag{2.12}$$

この式を用いると軸上照明下における線形結像成分は以下のように表される.

$$I_{linear}(\boldsymbol{g_{3D}}) = A^2 |H(0,0)| \cdot exp\{i\gamma_{anti-sym}(\boldsymbol{g_{2D}})\}$$

$$\cdot \left[\delta(|\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2 - 2k_z w) \cdot \{H_r(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) - iH_i(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \cdot exp\{-i\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \right]$$

$$+ \delta(|\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2 + 2k_z w) \cdot \{H_r(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) + iH_i(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \cdot exp\{i\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\}\}$$
(2.13)

2.3. 実時間焦点位置変調法

実時間焦点位置変調法は焦点位置変調法と呼ばれるフォーカスシリーズ再構成法をベースにした手法である.そのため,実時間焦点位置変調法の伝達特性は焦点位置変調法と同じである.本節ではまず残存収差を考慮した焦点位置変調法の伝達特性を導出する.次に実時間焦点位置変調法ではどのようにしてビデオレートでの再構成を実現しているかを説明する.

2.3.1.焦点位置変調法

図 2-4 は焦点位置変調法の処理を模式的に示したものである.本手法ではフォーカスの異なる多数枚の像を撮影し,実線と点線で表した重み関数を用いて重み付き積分を行うことで球面収差の補正された波動場の虚部成分と実部成分を再構成できる[4].波動場の実部成分と虚部成分を再構成するための重み関数*W_R(z),W_I(z)*は実現したい伝達関数の形状,加速電圧,球面収差係数が決まれば以下の式から求められる[5].

$$W_R(z) = \int_0^\infty F(\rho(w)) \cdot \cos\{\gamma_{CS}(\rho(w)) + 2\pi wz\} dw$$

$$W_I(z) = -\int_0^\infty F(\rho(w)) \cdot \sin\{\gamma_{CS}(\rho(w)) + 2\pi wz\} dw$$
(2.14)
(2.15)

ただし $F(|g_{2D}|)$ は実現したいコントラスト伝達関数, $\rho(w)$ はwから $|g_{2D}|$ への変換関数, $\gamma_{Cs}(g_{2D})$ は球面収差の収差関数である.球面収差の収差関数は以下の式で表される.

$$\gamma_{CS}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = -\frac{\pi}{2}\lambda^3 C_S |\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^4$$
(2.16)

Through Focus Series of Images



weight function for imaginary part of the wave field
 weight function for real part of the wave field

図 2-4 焦点位置変調法における処理の模式図.

T. Ando らによって示されているように, 焦点位置変調法での処理は三次元フーリエ空間 において図 2-5 で示したような領域を抽出することに相当する[6]. そのため, 残存収差を含 んだ再構成波動場は式(2.13)を変形することで次のように表される.

$$\begin{pmatrix} I_r(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) \\ I_i(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) \end{pmatrix} = A^2 |H(0,0)| \cdot exp\{i\gamma_{anti-sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \cdot \begin{pmatrix} \cos\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} & -\sin\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \\ \sin\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} & \cos\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}})\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_r(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) \\ H_i(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) \end{pmatrix}$$

$$(2.17)$$

ここで、 $I_r(g_{2D})$ 、 $I_i(g_{2D})$ は再構成された波動場の実部成分と虚部成分のフーリエ変換を 表している.式(2.17)では対称収差はコントラスト伝達関数として再構成波動場に影響を与 え、非対称収差は波動場の実部成分と虚部成分の両方に同じように作用することが示され ている.そのため、対称収差は再構成波動場のパワースペクトル上に表れるが、非対称収差 はパワースペクトル上には表れない.これらの収差係数を計測できれば、式(2.17)を変形す ることで試料の複素透過関数 $H_r(g_{2D})$ 、 $H_i(g_{2D})$ を得ることができる.ただし球面収差を考慮 した重み関数を用いた場合は、式(2.17)の対称収差関数 $\gamma_{sym}(g_{2D})$ には球面収差の項は含まれ ないことに注意する必要がある.



図 2-5 焦点位置変調法によって抽出される領域.

2.3.2.滞在時間方式による重み付け

焦点位置変調法ではフォーカスの異なる画像を一枚ずつ撮影する必要があるため実時間 で処理することは難しい.そこで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 て,滞在時間方式による重み付き積分をすることでビデオレートでの波動場再構成を実現 する[7-9].図 2-6 は再構成に用いる重み関数と対応するフォーカス変調関数を示している. 図 2-6 では重み関数を符号が正の部分と負の部分に分離し,それぞれの重み関数を用いた重 み付き積分をフォーカスの高速変調によって実現している.各フォーカス変調関数では,重 みの絶対値が大きいフォーカスではゆっくりとフォーカスを変化させ、重みの絶対値が小 さいフォーカスでは速くフォーカスを変化させることで重み付き積分を実現している.こ のようにして撮影された各画像を正画像, 負画像と呼ぶ. そして正画像から負画像を引くと 重み付き積分の符号付けがなされ, 波動場の実部成分もしくは虚部成分が再構成される.



図 2-6 フォーカス変調を用いた滞在時間方式による重み付き積分と波動場再構成.

前項で述べたように焦点位置変調法では複素波動場を再構成するのに二種類の重み関数 が必要である.フォーカス変調を用いて滞在時間方式による重み付け積分をするにはそれ ぞれの重み関数を符号が正の部分と負の部分に分ける必要があるので,実時間焦点位置変 調法では合計四種類のフォーカス変調関数が必要になる.本手法では図 2-7 に示すように四 種類のフォーカス変調関数を用いながら連続的に撮影と差分処理をすることで,波動場を ビデオレートで再構成できる.



図 2-7 実時間焦点位置変調法における処理の模式図.

最後にフォーカス変調関数の計算方法を説明する.フォーカスを単調に増加させる場合 を考えると、実部正画像、実部負画像、虚部正画像、虚部負画像に対するフォーカス変調関 数 $t_{R+}(z)$ 、 $t_{R-}(z)$ 、 $t_{I+}(z)$ 、 $t_{I-}(z)$ は以下の式で求められる[3].

$$t_{R+}(z) = \tau \int_{z_{min}}^{z} W_{R+}(z') dz' / \int_{z_{min}}^{z_{max}} W_{R+}(z') dz'$$
(2.18)

$$t_{R-}(z) = \tau \int_{z_{min}}^{z} |W_{R-}(z')| dz' / \int_{z_{min}}^{z_{max}} |W_{R-}(z')| dz'$$
(2.19)

$$t_{I+}(z) = \tau \int_{z_{min}}^{z} W_{I+}(z') dz' / \int_{z_{min}}^{z_{max}} W_{I+}(z') dz'$$
(2.20)

$$t_{I-}(z) = \tau \int_{z_{min}}^{z} |W_{I-}(z')| dz' / \int_{z_{min}}^{z_{max}} |W_{I-}(z')| dz'$$
(2.21)

ここでは1フレームあたりの露光時間を τ としており,実部正画像,実部負画像,虚部正画像,虚部負画像に対する重み関数 $W_{R+}(z)$, $W_{R-}(z)$, $W_{I+}(z)$, $W_{I-}(z)$ は以下のように表される.

$$W_{R+}(z) = \begin{cases} W_R(z) \ (z \ge 0) \\ 0 \ (z < 0) \end{cases}, \quad W_{R-}(z) = \begin{cases} 0 \ (z \ge 0) \\ W_R(z) \ (z < 0) \end{cases}$$
(2.22)

$$W_{I+}(z) = \begin{cases} W_{I}(z) \ (z \ge 0) \\ 0 \ (z < 0) \end{cases}, \qquad W_{I-}(z) = \begin{cases} 0 \ (z \ge 0) \\ W_{I}(z) \ (z < 0) \end{cases}$$
(2.23)

2.4. 結言

本章では TEM の三次元結像理論について説明し,線形結像成分が三次元フーリエ空間に おいてエバルト球対上に局在することを示した.次に焦点位置変調法について説明し,残存 収差を含んだ再構成波動場の導出を行った.そして対称収差は再構成波動場のパワースペ クトル上に表れるが,非対称収差はパワースペクトル上には表れないことを述べた.最後に 実時間焦点位置変調法では滞在時間方式によるフォーカスの高速変調を用いることで,波 動場をビデオレートで再構成できることを説明した.

参考文献

- 1. 谷口佳史, *大阪大学博士論文* (1991).
- 2. H. Utsuro, T. Ando, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, Optik, 112, 67 (2001).
- 3. 宇津呂英俊, *大阪大学博士論文* (2000).
- 4. T. Ikuta, J. Electron Microsc., 38, 415 (1989).
- 5. Y. Taniguchi, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, J. Electron Microsc., 41, 21 (1992).
- 6. 安藤俊行,*大阪大学博士論文* (1996).
- T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu, and T. Ikuta, *Ultramicroscopy*, 54, 261 (1994).
- Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, 48, 873 (1999).
- Y. Takai, Y. Kimura, T. Ikuta, R. Shimizu, Y. Sato, S. Isakozawa, and M. Ichihashi, J. Electron Microsc., 48, 879 (1999).

第3章 再構成波動場を用いた収差係数の計測

3.1.緒言

第2章では実時間焦点位置変調法の理論を説明し、残存収差を考慮した再構成波動場の 導出を行ったが、波動場に含まれる残存収差を補正するにはこれらの収差係数を計測する 必要がある.そこで本章では残存収差の計測方法の提案と原理確認を行った結果について 説明する.初めに計測と補正の対象とした残存収差について説明する.次にデフォーカスと 二回非点収差、コマ収差と三回非点収差の計測方法と原理確認の結果について説明する.最 後にデフォーカスの計測について考察したことを述べる.

3.2. 計測と補正の対象となる残存収差

2.3 節で述べたように実時間焦点位置変調法では球面収差を考慮した重み関数を用いることで、球面収差を補正できる.また図 1-6 で示した収差のうちスター収差、四回非点収差は現在の空間分解能ではほとんど問題にならないと考えられる.そこで本研究ではデフォーカス、二回非点収差、コマ収差、三回非点収差を計測と補正の対象とした.デフォーカスと二回非点収差は対称収差であり、コマ収差と三回非点収差は非対称収差である.デフォーカス、二回非点収差、コマ収差、三回非点収差の収差関数 $\gamma_{Af}(g_{2D}), \gamma_{A1}(g_{2D}), \gamma_{B2}(g_{2D}), \gamma_{A2}(g_{2D})$ は以下のように表される[1-3].

$$\gamma_{\Delta f}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = \pi \lambda \Delta f |\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2 \tag{3.1}$$

$$\gamma_{A1}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = \pi \lambda C_a \cos\{2(\theta - \theta_a)\} |\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2$$
(3.2)

$$\gamma_{B2}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = \frac{2\pi\lambda^2}{3} C_{B2} \cos(\theta - \theta_{B2}) |\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^3$$
(3.3)

$$\gamma_{A2}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = \frac{2\pi\lambda^2}{3} C_{A_2} \cos\{3(\theta - \theta_{A_2})\}|\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^3$$
(3.4)

 Δf はデフォーカス量であり、アンダーフォーカス側を正としている. C_a , θ_a , C_{B2} , θ_{B2} , C_{A_2} , θ_{A_2} は二回非点収差, コマ収差, 三回非点収差の大きさと方向を表している. θ は空間周波数 ベクトル g_{2D} の角度成分を表している. これらの収差は収差係数を計測できれば式(2.17)を 用いることで補正できる.

3.3. デフォーカスと二回非点収差の計測

3.3.1.**収差係数の計測方法**

TEM では薄い試料を観察するため試料を透過した電子波の振幅はほとんど変化せず、位相がわずかに変化すると考えられる. 試料に対するこのような近似は弱位相物体近似と呼ばれる[4].弱位相物体近似が成り立つ場合,複素透過関数の実部成分h_r(**r**_{2D})は電子波の吸収、虚部成分h_i(**r**_{2D})は電子波の位相変化に相当し、以下の関係式が成り立つ.

 $|h_r(\boldsymbol{r_{2D}})| \ll |h_i(\boldsymbol{r_{2D}})| \tag{3.5}$

(3.6)

 $|H_r(\boldsymbol{g_{2D}})| \ll |H_i(\boldsymbol{g_{2D}})|$

通常の TEM 像では試料を透過した電子波と回折波との干渉を考えるため, 試料の平均的 な位相変化を検出することはできない. また 1.5 節で述べたように位相変化の低空間周波数 成分はコントラストとして伝達されにくい. そのため厚い試料や重元素から構成される試 料であっても, 電子波の吸収が小さければ試料を弱位相物体として取り扱える場合が多い. しかし, このような試料では動力学的回折効果[5]によって複素透過関数が試料構造に直接 的に対応しない場合があるので注意する必要がある.

2.3 節で述べたようにデフォーカスや二回非点収差のような対称収差はコントラスト伝達 関数として再構成波動場に作用する.実時間焦点位置変調法で実験的に得られた波動場の 実部成分と虚部成分のフーリエ変換を $I_r(g_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a), I_i(g_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$ とすると,任意の デフォーカスと二回非点収差における波動場は式(2.17)を用いることで以下のように表され る.

$$\begin{pmatrix} I_{r}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}},\Delta f - \Delta f'', C_{a} - C_{a}'', \theta_{a} - \theta_{a}'') \\ I_{i}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}},\Delta f - \Delta f'', C_{a} - C_{a}'', \theta_{a} - \theta_{a}'') \end{pmatrix}$$

$$= \begin{pmatrix} \cos\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, -\Delta f'', -C_{a}'', -\theta_{a}'')\} \\ \sin\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, -\Delta f'', -C_{a}'', -\theta_{a}'')\} \\ \sin\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, -\Delta f'', -C_{a}'', -\theta_{a}'')\} \\ cos\{\gamma_{sym}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, -\Delta f'', -C_{a}'', -\theta_{a}'')\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{r}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, \Delta f, C_{a}, \theta_{a}) \\ I_{i}(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}, \Delta f, C_{a}, \theta_{a}) \end{pmatrix}$$

$$(3.7)$$

式(3.7)は再構成波動場 $I_r(g_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$, $I_i(g_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$ から任意の収差条件における波 動場を計算できることを示している.ただし、 Δf , C_a , θ_a は波動場に含まれるデフォーカス と二回非点収差の収差係数で未知の値である. 再構成波動場に収差が含まれていない場合,再構成波動場は試料の複素透過関数と等し くなる.試料が弱位相物体であると仮定すると,波動場の実部成分のコントラストは残存収 差が補正されたときに最小になると考えられる.そのため,式(3.7)を用いて実部成分のコン トラストが最小になる収差条件を探索することで,デフォーカスと二回非点収差の収差係 数を $\Delta f = \Delta f'', C_a = C_a'', \theta_a = \theta_a''$ と決定できる.本研究では波動場の実部成分のコントラ ストをパワースペクトルのピクセル値の総和として以下のように評価した.

$$C(\Delta f'', C_a'', \theta_a'') = \sum_{g_{2D}} |I_r(g_{2D}, \Delta f - \Delta f'', C_a - C_a'', \theta_a - \theta_a'')|^2$$
(3.8)

ここでは実部成分のコントラストをパワースペクトルで評価しているため、波動場に含 まれる非対称収差は計測に影響を与えない.また,提案した対称収差の計測方法では実部成 分のコントラストをフーリエ空間で計算できるという特徴がある.フーリエ変換は比較的 計算量の多い処理であるが、本手法ではフーリエ変換の回数を二回に抑えることができて いる.対称収差の計測方法としては、試料を位相物体であると仮定し振幅成分のコントラス トを評価する方法も考えられる.しかし、この方法では探索点の数だけ逆フーリエ変換をす る必要があるため高速に処理するのは難しい.

3.3.2.**収差係数の計測結果**

次に再構成波動場に含まれるデフォーカスの計測を行い,提案手法の原理確認を行った. 図 3-1(a)-(d)は意図的にデフォーカスして再構成した波動場とそのパワースペクトルを示し ている. 試料はタングステンを蒸着したアモルファスカーボン薄膜であり,画像上部は膜が 破れて真空領域となっている. この再構成波動場ではフォーカスが外れているためパワー スペクトルにリング状のパターンが表れている. また実像ではアモルファスカーボン薄膜 の領域と真空領域との境界がぼけていることが確認できる.

図 3-1(e),(f)は式(3.7)を用いて計算した波動場の実部成分と虚部成分の Thon ダイヤグラム を示している.ここでは 3 nm のフォーカスステップで Thon ダイヤグラムを計算した. Thon ダイヤグラムは様々なデフォーカスにおけるパワースペクトルの動径分布を並べたもので ある[6].明るい部分はコントラストが伝達されていることを表しており,暗い部分はコン トラストが伝達されていないことを表している.計算した Thon ダイヤグラムは矢印で示し たフォーカス位置に対して対称な形状を有しており,矢印の位置がインフォーカス位置で あることを示している.このことから,図 3-1(a)-(d)の波動場のデフォーカス量はおよそ-50 nm であることが分かる.実際の計測では式(3.8)を用いて各フォーカスにおける実部成分 のコントラストを評価し,評価値のボトムを二次関数でフィッティングすることでコント ラストが最小となるフォーカス位置を求めた.
図 3-1(a')-(d')は計測されたデフォーカス量を式(2.17)を用いて補正した後の波動場の実部 成分と虚部成分を示している.補正後のパワースペクトルではリングパターンが表れてお らず,デフォーカスが補正されていることを示している.また補正した後の虚部成分ではア モルファスカーボン薄膜と真空領域との境界を明瞭に観察できている.試料は弱位相物体 であると考えられるので実部成分にはほとんどコントラストが付いていないが,タングス テンが凝集している領域ではタングステン原子が暗いコントラストで表れている.以上か ら,提案手法を用いることで再構成波動場からデフォーカス量の計測と補正ができること を確認した.



図 3-1 デフォーカスの計測と補正の原理確認結果. (a)-(d) 再構成した波動場の虚部 成分と実部成分とそのパワースペクトル. (e), (f) 再構成波動場(a), (b)から計算した虚 部成分と実部成分の Thon ダイヤグラム. (a')-(d') デフォーカス補正後の再構成波動 場とそのパワースペクトル.

3.4. コマ収差と三回非点収差の計測

3.4.1.**収差係数の計測方法**

2.3 節で述べたようにコマ収差や三回非点収差のような非対称収差は、再構成波動場の虚 部成分と実部成分に同じように作用する.一般的に試料の真の複素透過関数は知ることが できないので、再構成波動場から非対称収差の収差係数を計測するのは難しい.そのため、 非対称収差は傾斜照明下で誘起される見かけの二回非点収差から計測されることが多い[7]. 本研究においても複数の傾斜照明下で撮影を行い、見かけの二回非点収差と傾斜角からコ マ収差と三回非点収差を計測することとした.傾斜照明下で誘起される見かけの二回非点 収差の収差関数は以下のように表される[2].

 $\gamma_a'(\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}) = \pi \lambda C_a' \cos\{2(\theta - \theta_a')\} |\boldsymbol{g}_{2\boldsymbol{D}}|^2$

$$= \pi \lambda Re\{\boldsymbol{A}_{1}^{\prime} \boldsymbol{\tilde{g}}_{2D}^{*}^{2}\}$$
(3.9)

ここで C'_a , θ'_a は見かけの二回非点収差の大きさと角度を表している.式(3.9)の二行目では見 かけの二回非点収差の収差係数と空間周波数を複素形式で表しており, $A'_1 = C'_a e^{i2\theta'_a}$, $\tilde{g}_{2D} = u + iv$ である.また $Re\{z\}$ は複素数 z の実部成分を表す.入射電子線の波数ベクトルの面内 成分 k_{2D} を複素形式で \tilde{k}_{2D} と表すと,コマ収差,三回非点収差,球面収差から誘起される見か けの二回非点収差の収差係数は以下のように表される[2].

$$\boldsymbol{A}_{1}^{\prime} = \boldsymbol{A}_{1} + 2\lambda \boldsymbol{A}_{2} \tilde{\boldsymbol{k}}_{2D}^{*} + \frac{2}{3} \lambda \boldsymbol{B}_{2} \tilde{\boldsymbol{k}}_{2D} + \lambda^{2} C_{s} \tilde{\boldsymbol{k}}_{2D}^{2}$$
(3.10)

ここで A_1 , A_2 , B_2 は軸上二回非点収差,三回非点収差,コマ収差の収差係数を複素形式で 表したもので, $A_1 = C_a e^{i2\theta_a}$, $A_2 = C_{A_2} e^{i3\theta_{A_2}}$, $B_2 = C_{B_2} e^{i\theta_{B_2}}$ である.対物レンズの球面収差 係数(C_s)が既知である場合,三方位以上の傾斜照明下で計測した見かけの二回非点収差と 傾斜角を用いて式(3.10)を解くことで,コマ収差と三回非点収差の収差係数が求められる.

3.4.2.傾斜角と見かけの二回非点収差の計測

本研究では三次元フーリエフィルタリング法(3DFFM)というフォーカスシリーズ再構成法を用いて,傾斜角と見かけの二回非点収差を計測した.実時間焦点位置変調法は傾斜照明下においても行うことができるが,

1. 傾斜角をあらかじめ計測しておく必要がある

2. 全空間周波数成分を再構成するのは難しい

などの問題点があるため,傾斜角と見かけの二回非点収差の計測は3DFFMを用いて行った. 三次元フーリエフィルタリング法は T. Ikuta によって 2001 年に提案された手法であり, 実時間焦点位置変調法と同様に TEM の三次元結像理論に基づいた再構成法である[8,9]. 図 3-2 は 3DFFM を用いた傾斜角と見かけの二回非点収差の計測方法を示したものである. 3DFFM ではまず一定フォーカスステップで撮影されたスルーフォーカスシリーズを三次元 フーリエ変換する. 三次元フーリエ空間では試料構造に対応する線形結像成分がエバルト 球対上に局在しており,各エバルト球はビームの傾斜角に応じてシフトしている. そこでエ バルト球のシフト量を計測することで入射電子線の傾斜角を決定する. 次に線形結像成分 のみをフィルタリングし,三次元逆フーリエ変換することで波動場を再構成する. 最後に再 構成波動場に含まれる見かけの二回非点収差を計測する.



図 3-2 3DFFM を用いたビームの傾斜角と二回非点収差量の計測手順.

まず本研究で考案した傾斜角の計測方法について説明する.考案した傾斜角の計測方法 は以下に示す二つのステップからなる.

理論的に求められる軸上照明下におけるエバルト球(片側)と実験的に得られたパワースペクトルとの相互相関をとり、エバルト球のシフト量からおよその傾斜角を見積もる.
 様々な傾斜条件でのエバルト球を計算し、実験的に得られたエバルト球と最も一致するものを探索する. 探索は1で見積もった傾斜角を中心に行い、一致度は計算したエバルト球上に乗った三次元パワースペクトルの総和で評価した.

図 3-3 は傾斜照明下で撮影したスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトルの uw 断面, vw 断面を示している. 断面画像の上部には計測した傾斜角から求めるエバルト球 が示されており,提案手法によって高い精度で傾斜角が計測できることがわかった. 通常, 傾斜角は電子回折パターンの移動量から計測されることが多いが, この方法ではレンズ電 流を大きく切り替えるため,計測時に様々な光学パラメータが変化する恐れがある. 一方, 本研究で提案した傾斜角の計測方法ではレンズ電流を大きく切り替えることがないため, レンズ電流の切り替えによって生じる光軸の変化を最小限に抑えられるという利点がある. 提案手法の欠点としては試料の線形ドリフトの影響を受けやすいことが挙げられる.この 問題を解決する方法としては,高安定度の試料ステージを用いる,撮影時間を短くする, フォーカスシリーズ撮影前後のドリフト量から線形ドリフトを見積もる,などが考えられ る.本研究では線形ドリフトの影響を低減するため,128枚のスルーフォーカスシリーズの 撮影を約2秒で行っている.



図 3-3 三次元パワースペクトルの断面像と計測した傾斜角を用いて計算したエバル ト球. (a) uw 断面. (b) vw 断面.

次に 3DFFM で再構成した波動場に含 まれる軸上二回非点収差と見かけの二回 非点収差を計測した結果について説明す る.式(3.2),式(3.9)に示されているよう に,軸上二回非点収差と見かけの二回非 点収差の収差関数は同じ形式をしてい る.そのため,3.3節で述べた軸上二回非 点収差の計測方法を用いることで,見か けの二回非点収差を計測できる.

図 3-4(a)は軸上照明下で再構成した波 動場のパワースペクトルを示している. この実験では意図的に二回非点収差を導 入したため,再構成波動場のリングパ ターンが楕円状に歪んでいる.図 3-4(b)は 二回非点収差を計測し,補正した後の波 動場のパワースペクトルを示している.



図 3-4 (a), (b) 軸上照明下で二回非点収差を補正す る前後のパワースペクトル. (c), (d) 傾斜照明下で二 回非点収差を補正する前後のパワースペクトル.

補正後のパワースペクトルではリングパターンが同心円状になっており,軸上二回非点収差の計測と補正が行えていることを確認した.なお,図 3-4 では二回非点収差の補正効果を示すために,デフォーカスは補正していない.

図 3-4(c)は軸上二回非点収差を補正した後に傾斜照明下で再構成した波動場のパワース ペクトルを示している.電子線は図中の矢印の方向に約 6.9 mrad 傾斜させた.図 3-4(c)では 誘起された見かけの二回非点収差によってリングパターンが再び楕円状に歪んでいる.図 3-4(d)は見かけの二回非点収差を計測し、補正した後の波動場のパワースペクトルを表して いる.補正後のパワースペクトルではリングパターンが同心円状になっており、見かけの二 回非点収差を正しく計測できていることが確認できた.なお図 3-4(c)、(d)ではビーム傾斜方 向のリングパターンが一部消失しているが、これはこの領域に対応する像コントラストが 三波干渉ではなく二波干渉によって生じたことに起因している.

3.4.3.**収差係数の計測結果**

軸上照明下と複数の傾斜照明下で傾斜角と二回非点収差を計測し,式(3.10)を解くことで コマ収差と三回非点収差の収差係数を求めた.図 3-5(a)は軸上二回非点収差,球面収差,球 面収差によって誘起される見かけの二回非点収差を補正した後のディフラクトグラムタブ ローを示している.ディフラクトグラムタブローとは再構成波動場のパワースペクトルを 傾斜角ごとに並べたものである[7].図 3-5(a)では球面収差によって誘起された見かけの二回 非点収差を補正しているにも関わらず,傾斜照明下のパワースペクトルは楕円状に歪んで いる.これはコマ収差と三回非点収差によって誘起された見かけの二回非点収差の影響で あると考えられる.

図 3-5(b)は計測結果から求められる見かけの二回非点収差を補正した後のディフラクト グラムタブローを示している. 傾斜照明下においてもリングパターンが同心円状になって いることから,コマ収差と三回非点収差が正しく計測できていることが確認できた. ただし 図 3-5(b)では各パワースペクトルに含まれる見かけの二回非点収差を補正したのではなく, 計測されたコマ収差と三回非点収差から式(3.10)によって求められる見かけの二回非点収差 を補正している. そのため,図 3-5(b)はコマ収差と三回非点収差の計測誤差を含んだものに なっている. 計測されたコマ収差と三回非点収差の収差係数は C_{B2} =1809 nm, θ_{B2} =336°, C_{A2} =285 nm, θ_{A2} =42° であった. またコマ収差と三回非点収差の大きさの計測精度はそれ ぞれ±230 nm, ±77 nm と見積もられ,目標とする空間分解能に対して十分高い精度で計測 できていることがわかった.

34



図 3-5 (a) 軸上二回非点収差,球面収差,球面収差によって誘起される見かけの二回 非点収差を補正した後のディフラクトグラムタブロー. (b) (a)に対してコマ収差と三 回非点収差によって誘起される見かけの二回非点収差を補正した後のディフラクト グラムタブロー.

3.5. デフォーカスの計測方法に関する考察

3.3 節では再構成波動場の実部成分のコントラストが最小となる条件を探索することでデフォーカス量を計測した.しかし,実際の試料には厚みがあるため,試料のどの高さ位置で 実部成分のコントラストが最小となるかは自明ではない.そこで本節ではシミュレーションを用いて試料膜厚と決定されるデフォーカス量との関係を考察した.

3.5.1.膜厚と決定されるデフォーカス量との関係

本節で用いたシミュレーション方法について説明する.まず,電子回折の動力学的効果を 考慮できるマルチスライス計算[10]を用いて様々な膜厚における試料の複素透過関数を計 算した.次に得られた複素透過関数を用いてスルーフォーカスシリーズを計算し,重み付け 積分をすることで試料下面(出射面)での波動場を再構成した.そして再構成波動場の実部 成分のコントラストが最小となるフォーカス位置を探索し,デフォーカス量を決定した.こ こではアモルファス状のカーボン膜とタングステン膜を試料として,シミュレーションを 行った.アモルファスカーボン膜とアモルファスタングステン膜の密度はそれぞれ 130 個 /nm³, 60 個/nm³とした.この値は各アモルファス物質の比重から算出されたものである. 図 3-6 は膜厚と実部成分のコントラストが最小となるフォーカス位置との関係を示した ものである.ここではフォーカスの原点を試料下面に設定し,アンダーフォーカス側を正と している.この結果から実部成分のコントラストは試料の中央面付近で最小となることが わかった.また,アモルファスタングステン膜のコントラストが最小となるフォーカス位置 はアモルファスカーボン膜よりもオーバーフォーカス側にシフトしていることが確認でき る.これは原子の散乱ポテンシャルに由来する位相シフトの影響であると考えられる.

さらに、アモルファスカーボン膜と タングステン膜では膜厚に対するイ ンフォーカス位置の変化率が異なっ ていることが確認できる.2.3 節で説 明したように焦点位置変調法では非 線形結像成分を除去できないため、こ のような傾きの違いは非線形結像成 分の影響によるものではないかと考 えられる.そこでこれらの結像成分の 影響を確認するために、線形結像成分 と非線形結像成分を分離計算する方 法を考案した.



図 3-6 膜厚と実部成分のコントラストが最小となる フォーカス位置との関係.

3.5.2.線形結像成分と非線形結像成分の分離計算

2.2 節で述べたように、線形結像成分は透過波と回折波との干渉項であり、非線形結像成 分は回折波と回折波との干渉項である.そのため、線形結像成分を表す式(2.8)には複素透過 関数の透過能を表す項H(0,0)が含まれているが、非線形結像成分を表す式(2.9)には透過能 を表す項H(0,0)が含まれていない.このことから、複素透過関数のDC成分を意図的にゼロ にして像を計算することで、非線形結像成分のみを含む像が計算できる.次に通常の計算像 から非線形結像成分のみを含む像を引くことで、線形結像成分のみからなる像を計算できる.

図3-7(a)は式(2.6)を用いて計算した通常のスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトルを示している.通常のスルーフォーカスシリーズには線形結像成分と非線形結像成分が 存在するドーナツ状の領域が表れている.図3-7(b)は式(2.9)を用いて計算した非線形結像成 分のみを含むスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトルを表している.図3-7(c) は上述の計算方法で求めた線形結像成分のみを含むスルーフォーカスシリーズの三次元パ ワースペクトルを示している.図3-7(b), (c)ではドーナッツ状の領域とエバルト球対とが完 全に分離されており,提案手法を用いることで線形結像成分と非線形結像成分の分離計算 ができることを確認した.



図 3-7 (a) 通常のスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトル.

- (b) 非線形結像成分のみを含むスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトル.
- (c) 線形結像成分のみを含むスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトル.

3.5.3.線形結像成分を分離した場合のシミュレーション結果

図 3-8 は線形結像成分のみを含むス ルーフォーカスシリーズを用いて波 動場を再構成し,実部成分のコントラ ストが最小となるフォーカス位置を 調べた結果を示している.膜厚が 0 nm から約 15 nm の範囲では,アモルファ スカーボン膜とタングステン膜のコ ントラストが最小となる位置が,同じ 傾きで変化している.このことから, 図 3-6 で見られた傾きの違いは,非線 形結像成分の影響であることがわ かった.



図 3-8 膜厚と実部成分のコントラストが最小となる フォーカス位置との関係.

3.6. 結言

本章では実時間での波動場再構成と収差補正を行う前段階として、収差の計測方法の提 案と原理確認を行った.まずデフォーカスと二回非点収差の計測方法を提案し、本手法を用 いることで収差計測が行えることを確認した.次に 3DFFM を用いてスルーフォーカスシ リーズ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、複数の傾斜照明下で計 測を行うことでコマ収差と三回非点収差を高い精度で求めることができた.本章ではデ フォーカス、二回非点収差,コマ収差、三回非点収差を計測の対象としたが、提案手法を拡 張することでより高次の残存収差にも対応できる. 次に試料膜厚と決定されるデフォーカス量との関係について考察し,アモルファス状の 試料では波動場の実部成分のコントラストが膜の中央面付近で最小となることを明らかに した.さらに線形結像成分と非線形結像成分を分離計算する方法を考案し,非線形結像成分 が再構成波動場に及ぼす影響について考察した.

参考文献

- 1. R. R. Meyer, A. I. Kirkland, and W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 92, 89 (2002).
- 2. R. R. Meyer, A. I. Kirkland, and W. O. Saxton, Ultramicroscopy, 99, 115 (2004).
- 3. T. Kawasaki, and Y. Takai, Surf. Interface Anal., 35, 51 (2003).
- 4. T. Ikuta, J. Electron Microsc., 38, 415 (1989).
- 5. 今野豊彦,物質からの回折と結像,共立出版 (2009).
- 6. F. Thon, Z. Naturforsch., 219, 179 (1966).
- F. Zemlin, K. Weiss, P. Schiske, W. Kunath, and K. H. Herrmann, *Ultramicroscopy*, 3, 49 (1978).
- 8. T. Kawasaki, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, Ultramicroscopy, 90, 47 (2001).
- 9. T. Nomaguchi, Y. Kimura, and Y. Takai, Ultramicroscopy, 108, 1520 (2008).
- 10. I. Lobato, and D.V. Dyck, Ultramicroscopy, 156, 9 (2015).

第4章 実時間波動場再構成TEMシステムの開発

4.1.緒言

第3章では残存収差の計測方法を提案し,計測が正しく行えることを確認した.本章では 第3章で提案した手法を用いて,実時間での波動場再構成と残存収差の補正が可能な TEM システムを開発したことについて説明する.開発したシステムは再構成波動場を積極的に 利用したシステムであるため,実時間波動場再構成 TEM システムと呼ぶこととした.

本章では、まず開発したシステムの構成について述べる.次にカメラと関数発生器の制御 ソフトを作成し、空間分解能を評価した結果について述べる.次に開発したシステムを用い て、デフォーカスと二回非点収差を実時間で補正した結果について説明する.最後にコマ収 差と三回非点収差を実時間で補正した結果について述べる.

4.2. 実時間波動場再構成TEMシステムの構成

図4-1は開発した実時間波動場再構成TEMシステムにおける処理の模式図を示している. このシステムでは実時間焦点位置変調法を用いて波動場を再構成し,計算機を用いて残存 収差を実時間で補正する.3.3節で説明したようにデフォーカスと二回非点収差は再構成波 動場から計測できるため,実時間での計測と補正を行う.コマ収差と三回非点収差は波動場 から計測するのは難しいため,あらかじめ計測した収差係数を用いて実時間で補正する.



図 4-1 実時間波動場再構成 TEM システムにおける処理の模式図.

図 4-2(a)は開発した実時間波動場再構成 TEM システムの模式図を表している. 図中では 本研究で新たに開発した部分を灰色で示している. フォーカスの高速変調は従来の実時間 焦点位置変調法と同様に, TEM の加速電圧を変化させることで行っている. 関数発生器か ら出力されたフォーカス変調信号はアンプで約十倍に増幅された後, TEM の浮遊型加速電 源[1]に重畳される. フォーカス変調と同期して像を撮影し, 制御用コンピュータにて波動 場の再構成と収差補正を行う. 制御用 PC には GPU (NVIDIA Geforce GTX 970) が搭載され ており, デフォーカスと二回非点収差の実時間での計測は GPU を用いて行う.

図 4-2(b)は開発したシステムの外観を示している. 本研究で使用した TEM は HF-2000(日 立ハイテクノロジー)をベースにしたものであり,加速電圧は 200 kV,球面収差係数は 0.8 mm である.



図 4-2 (a) 実時間波動場再構成 TEM システム模式図. (b) システムの外観.

4.3.カメラと関数発生器の制御

4.3.1.カメラの取り付け

開発したシステムでは撮像素子として高感度の EMCCD カメラ(浜松ホトニクス C9100-13)を用いた.図 4-3(a)は使用した EMCCD カメラの概観を示している.このカメラでは 256×256 ピクセルの画像を 60 fps で撮影できる.図 4-3(b)-(d)はカメラを TEM に取り付ける ためのフランジとカメラを TEM に取り付けた様子を示している.使用した TEM では 200 kV で電子を加速するため鏡体内で放射線が発生する.そのため,放射線が直接外部へ漏れ 出ることがないようにフランジを設計した.



図 4-3 (a) 使用した EMCCD カメラ. (b) カメラ取り付けフランジの設計図. (b) 作成したフランジ. (d) カメラを TEM に取り付けた様子.

4.3.2. 関数発生器とカメラの制御ソフトの作成

図4-4は関数発生器とカメラを制御するた めに作成したソフトウェアの GUI を表して いる. GUI 部分はグラフィカルプログラミン グ言語である LabVIEW を用いて作成し,収 差の計測と補正を行うプログラムは C++を 用いて作成した.また GPU を用いたプログ ラミングは NVIDIA が提供している CUDA というプラットフォームを用いて行った. GPU を用いることで約4000点の探索がビデ オレートで行えるようになり,デフォーカス だけでなく二回非点収差の実時間計測も可 能になった.



図 4-4 関数発生器とカメラ制御ソフトの GUI.

次に動画を撮影した際のコマ落ちの有無を確認するため、収束させた電子ビームを TEM の偏向コイルを用いて回転させながら撮影を行った.図4-5(a)は撮影した収束電子線の像を 示しており、撮影画像から電子ビームの重心位置を求め x 軸からの角度を計測した.図4-5(b),(c)は計測した角度の正弦成分の時間変化を示している.図4-5(b)では計測したプロッ トが不連続になっており、コマ落ちが発生していることが分かる.一方、図4-5(c)ではプロッ トが連続的に変化しているため、コマ落ちが発生していないことが確認できる.このような 計測を繰り返し行い、コマ落ちすることなく撮影が行えることを確認した.



図 4-5 (a) 収束電子線の撮影像. (b) コマ落ちがあるときのプロット. (c) コマ落ちが ない時のプロット.

4.3.3.シンチレータの残光時定数の計測

開発したシステムでは電子を光に変換するためにシンチレータを用いている.シンチレータによる発光の減衰時間が長い場合,次の撮影フレームに像が混入するため波動場再構成処理を正しく行えない恐れがある.そこで CCD カメラを用いてシンチレータの残光時 定数を計測した.

図 4-6(a)は残光時定数の計測方法を模式的に示したものである. ここでは TEM の偏向コ イルを用いて,収束した電子ビームを横方向に走査しながら撮影を行った.撮影に用いた CCD カメラの電荷転送方式はフレームトランスファー方式であるため,転送期間中に電荷 が受光部から蓄積部へと転送される. そのため,ビーム走査中に電荷が転送されるとシンチ レータの残光特性が電荷転送方向に記録される.

図 4-6(b)は電子ビームを走査しながら撮影した像を示している. 図 4-6(c),(d)は図 4-6(b) 中で A と B で示した点線部分の強度プロファイルを示している. 図 4-6(c)のプロファイル は収束電子線の強度分布を表している.一方,図 4-6(d)のプロファイルは電子線の強度分布 とシンチレータの残光特性が畳み込まれたものに対応している.そこで,シンチレータの残 光時定数をτ,残光特性を*exp(-t/τ)*と仮定し,デコンボリューションすることでシンチレー タの残光時定数を計測した.その結果,残光時定数は 0.56 msec であることがわかった.こ の値は CCD カメラの露光時間 16 msec よりも十分小さいため,現在のシステムではシンチ レータの残光の影響は無視できると判断した.



図 4-6 (a) CCD カメラを用いたシンチレータの残光時定数の計測方法の模式図. (b) 撮影像. (c), (d) 点線 A, B における強度プロファイル.

4.4.空間分解能の評価

次に Thon ダイヤグラム[2]を用いてシステムの空間分解能を評価した. ここでは 3.3 節と は異なり, TEM の加速電圧を変化させることでスルーフォーカスシリーズを撮影した. 図 4-7(a)は通常のスルーフォーカスシリーズから作成した Thon ダイヤグラムを示している. 図 4-7(a)では球面収差の影響で Thon ダイヤグラムがインフォーカス位置に対して非対称に なっている. この Thon ダイヤグラムから通常の TEM 像の空間分解能は約 5.5 nm⁻¹ である ことがわかった.

図 4-7(b), (c)は再構成波動場の虚部成分と実部成分のスルーフォーカスシリーズから作成 した Thon ダイヤグラムを示している.2.3節で述べたように実時間焦点位置変調法では TEM の球面収差係数を考慮した変調波形を用いることで,球面収差を補正した波動場を再構成 できる.図 4-7(b), (c)の Thon ダイヤグラムはインフォーカス位置に対して対称になってお り,球面収差が補正されていることを示している.再構成波動場の Thon ダイヤグラムにお いても約 5.5 nm⁻¹までの情報が伝達されている.このことから,開発したシステムでは通常 の TEM 像と同程度の空間分解能が達成できていることを確認した.



図 4-7 (a) 通常のスルーフォーカスシリーズから作成した Thon ダイヤグラム. (b), (c) 波動場の虚部成分と実部成分のスルーフォーカスシリーズから作成した Thon ダイヤグラム.

4.5. デフォーカスと二回非点収差の実時間での計測と補正

4.5.1.デフォーカスと二回非点収差の補正結果

まず、デフォーカスの実時間での計測と補正が行えているかを確認した.図4-8(a)-(l)はデ フォーカスを実時間で補正する前の再構成波動場とそのパワースペクトルを示している. 試料はタングステンを蒸着したアモルファスカーボン膜である.観察開始時はマニュアル 操作でデフォーカスを補正したため、再構成波動場の虚部成分においてアモルファスカー ボンやタングステンクラスタのコントラストを確認できる.しかし100秒後、200秒後では 試料の高さ位置変化 (z軸ドリフト)によってデフォーカスが変化したため、パワースペク トルにはデフォーカス量に対応したリングパターンが表れている.

図 4-9(a)-(l)はデフォーカスを実時間で計測し補正した後の再構成波動場とそのパワース ペクトルを表している. 100 秒後, 200 秒後の波動場においてもパワースペクトルにリング パターンが表れておらず,フォーカスがあっていることが確認できる.また再構成波動場の 虚部成分では,試料構造が正しいコントラストで表れている.以上のことからデフォーカス の実時間での計測と補正が正しく行えていることが確認できた.

次に二回非点収差の実時間での計測と補正の確認を行った.図4-10(a)-(l)はデフォーカス と二回非点収差を補正する前のアモルファスカーボン膜の再構成波動場とそのパワースペ クトルを表している.ここでは二回非点収差補正コイルの電流値を変化させることで,意図 的に二回非点収差を導入した.再構成波動場のパワースペクトルには二回非点収差に対応 した楕円状のパターンが表れている.

図 4-11(a)-(l)はデフォーカスと二回非点収差を実時間で補正した後の波動場とそのパワー スペクトルを示している.補正後のパワースペクトルにはディスク状のパターンが表れて おり,再構成波動場の虚部成分ではアモルファスカーボン膜とタングステンクラスタの構 造を明瞭に観察できる.以上のことから,二回非点収差の実時間での計測と補正が行えてい ることを確認した.各時間におけるデフォーカス量と二回非点収差の収差係数は Δf = 19.5 nm, C_a = 16.1 nm, θ_a = 62.0° (t = 0 s), Δf = 18.7 nm, C_a = 17.6 nm, θ_a = 13.8° (t = 5 s), Δf = 18.0 nm, C_a = 31.9 nm, θ_a = 113.0° (t = 35 s) であった.



図 4-8 デフォーカスを実時間で補正する前の再構成波動場とそのパワースペクトル.



図 4-9 デフォーカスを実時間で補正した後の再構成波動場とそのパワースペクトル.



図 4-10 デフォーカスと二回非点収差を実時間で補正する前の再構成波動場とその パワースペクトル.



図 4-11 デフォーカスと二回非点収差を実時間で補正した後の再構成波動場とその パワースペクトル.

ここまでは非晶質の試料を用いてデフォーカスと二回非点収差の実時間補正の動作確認 を行った.しかし、実際の実時間観察では結晶性の試料を観察することが多い.そこでデ フォーカスの実時間での計測と補正が結晶性の試料にも適用可能であるかを確認した.図 4-12(a)-(f)はデフォーカスの実時間での補正を行う前の金[110]薄膜の再構成波動場を示して いる.撮影領域の上部と下部は真空領域となっている.t=0.0sでは対物レンズ電流値を用 いてフォーカスを合わせたため、虚部成分に金薄膜のコントラストが表れている.しかし、 t=5.9s、t=7.0sではデフォーカスの時間変化によって像がぼけてしまい結晶構造を明瞭に 観察することが困難になっている.

図 4-12(a')-(f')はデフォーカスの実時間での計測と補正を行った後の再構成波動場を示している.デフォーカスを実時間で補正することで常に同じフォーカスで観察が行えており, 金薄膜の形状の変化を明瞭に観察できている.以上のことから,デフォーカスの実時間での 計測と補正は結晶性試料にも適用可能であることが確認できた.



図 4-12 (a)-(f) デフォーカスの実時間での計測と補正を行う前の再構成波動場. (a')-(f') デフォーカスの実時間での計測と補正を行った後の再構成波動場.

4.5.2.デフォーカスと二回点収差の計測精度

次にデフォーカスと二回非点収差の計測精度に ついて検討を行った.図 4-13 は計測されたデ フォーカスと二回非点収差の収差係数の時間変化 を示している.計測された収差係数に最小二乗法 を用いて直線をフィッティングし,残差の標準偏 差から計測精度を見積もった.その結果,デフォー カスと二回非点収差の大きさの計測精度は±0.4 nmであることが分かった.また,二回非点収差の 角度の計測精度は±2°であった.ただし,二回点 収差の角度の計測精度は二回非点収差の大きさに 依存することに注意する必要がある.以上のこと から,開発したシステムでは非常に高い精度でデ フォーカスと二回非点収差の計測と補正が行える ことが明らかになった.

また図 4-13(b)では計測された二回非点収差の 大きさが時間的に変化してことが確認でき,約10 秒間で 0.14 nm 変化している.もし二回非点収差 の時間変化がビーム傾斜角のドリフトによって生 じたと仮定すると,これは 10 秒間に傾斜角が約 0.4 mrad 変化したことに相当する.このような光 学パラメータの変化を見積もることができるのも 開発したシステムの特徴であると言える.



図 4-13 (a) 計測されたデフォーカス量の 時間変化. (b), (c) 計測された二回非点収差 の大きさと角度の時間変化.

4.5.3.デフォーカスの計測が行える範囲

次に対物レンズ電流を用いて意図的 にフォーカスを変化させ、デフォーカス の計測が行える範囲を見積もった.図4-14 は対物レンズ電流によって設定した デフォーカス量と計測されたデフォー カス量との関係を示している.図中では デフォーカス量が約±150 nm よりも大 きくなると計測ミスが生じ始めている. この結果からデフォーカスの計測が行 える範囲は-150 nm から 150 nm までの 範囲であることがわかった.この範囲は 通常の実時間観察では十分広い範囲で ある.この範囲は視野の大きさ、フォー



図 4-14 対物レンズ電流値で設定したデフォーカ ス量と計測されたデフォーカス量の関係.

カス変調範囲,部分的コヒーレンスなどで制限されていると思われる.また,この範囲を超 えるようなデフォーカスにはフォーカス変調波形のオフセット電圧や対物レンズ電流を変 化させることで対応できる.

4.6. コマ収差と三回非点収差の実時間補正

最後にあらかじめ計測した収差係数を用いてコマ収差と三回非点収差の実時間補正を 行った結果について述べる.図 4-15(a)はコマ収差と三回非点収差を補正する前の再構成波 動場を表している.試料はアモルファスカーボン膜上の多重双晶金微粒子である.この観察 ではデフォーカスと二回非点収差を実時間で補正しながら撮影を行っている.再構成波動 場の虚部成分では金微粒子を構成する金原子カラムが観察できるが,四角で囲んで領域で は原子カラムが三角形状に歪んでいることが確認できる.このような状況では原子カラム が暗いコントラストで表れているのか,明るいコントラストで表れているのかが分からな いため,正確な原子位置を計測するのが困難である.

図 4-15(b)はコマ収差と三回非点収差を補正した後の再構成波動場を示している. コマ収 差と三回非点収差を補正することで各原子カラムが同心円状のコントラストで表れており, 原子位置を明瞭に観察することが可能になっている. なお, コマ収差と三回非点収差の実時 間補正を行った動画ファイルは web 上 (http://doi.org/10.1093/jmicro/dfx127) で公開されてい る. 以上のように開発したシステムを用いて, コマ収差と三回非点収差の実時間補正ができ ることを確認した.



図 4-15 (a), (b) コマ収差と三回非点収差を実時間補正する前の再構成波動場.

(c), (d) コマ収差と三回非点収差を補正した後の再構成波動場.

4.7.結言

本章ではデフォーカスと二回非点収差の実時間での計測と補正,コマ収差と三回非点収 差の実時間での補正が可能な実時間波動場再構成 TEM システムを開発し,実間での収差補 正が正しく行えていることを確認した.またデフォーカスと二回非点収差は±0.4 nm とい う非常に高い精度で補正できていることがわかった.開発したシステムは残存収差を実時 間で補正することができるため,デフォーカス量や収差係数が時間的に変化しやすい環境 TEM 観察には必須のシステムであると考えられる.

参考文献

- Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, 48, 873 (1999).
- 2. F. Thon, Z. Naturforsch, 219, 179 (1966).

第5章 MAL法を用いた低空間周波数成分の位相回復

についての検討

5.1.緒言

第1章で述べたように,TEM 像の位相コントラスト伝達関数は低空間周波数において小 さい値であるため,フォーカスシリーズ再構成法では再構成波動場に低空間周波数成分が 伝達されにくい.低空間周波数成分を再生するには

1. 大きなデフォーカス量で撮影を行う

2. 低空間周波数成分を画像処理的に強調する

という二つの方法を用いる必要があるが、低空間周波数成分を画像処理的に強調する方法 についてこれまで研究がなされていなかった.

本研究では低空間周波数成分を再構成する方法として,MAL 法と呼ばれる反復的な フォーカスシリーズ再構成法に着目した.MAL 法は反復処理によってより正確な波動場を 再構成できるため,本手法は低空間周波数成分の再構成法にも有効に働くのではないかと 考えられる.MAL 法は 1992 年に提案された手法であるが[1],本手法が低空間周波数成分 の再生に有効であるのかはこれまで明らかにされていなかった.また MAL 法には他の フォーカスシリーズ再構成法よりも処理時間が長いという問題があるため,本手法を低空 間周波数成分の位相回復に用いるには処理速度を向上させることも求められる.

本章ではまず MAL 法の反復的な処理アルゴリズムについて説明し, GPU を用いる処理 プログラムを作成したことを述べる.次にテスト画像を用いて MAL 法による再構成を行い, 本手法の伝達特性を明らかにした結果を述べる. 最後に収束速度や伝達特性を他のフォー カスシリーズ再構成法と比較した結果について述べる.

5.2. MAL法を用いた位相回復

5.2.1.MAL 法の処理アルゴリズム

図 5-1 は MAL 法の処理を模式的に示したものである.本手法ではまず 3DFFM[2]やパラ ボロイド法[3,4]などのフーリエ解析的な波動場再構成法を用いて初期波動場を求める.ス ルーフォーカスシリーズのデフォーカス量が既知であれば,再構成波動場を用いてスルー フォーカスシリーズを計算できる.もし再構成波動場が真の波動場であれば,計算によって 求めた像シリーズと実験的に得られた像シリーズとの誤差はゼロになると考えられる.そ こで MAL 法では現在の誤差が最小になるように最急降下法(Steepest Descent Method)や共 役勾配法(Conjugate Gradient Method)などの凸最適化手法を用いて波動場を更新する.そ して誤差が十分に収束するまで,誤差の評価と再構成波動場の更新を繰り返す.ここでは最 急降下法を用いた MAL 法を SD-MAL 法,共役勾配法を用いた MAL 法を CG-MAL 法と表 す[5,6].



図 5-1 MAL 法における処理の模式図.

次に数式を用いて SD-MAL 法と CG-MAL 法の処理を説明する. 反復計算を *j* 回行った後の再構成波動場を $\phi_{x,y}^{(j)}$ (*j* = 0,1,2…)と表す. 初期波動場 $\phi_{x,y}^{(0)}$ にはフーリエ解析的な再構成法で得られたものを用いる. 実験的に取得したスルーフォーカスシリーズの各デフォーカス量 *z* を用いると,計算像シリーズ $I_{x,y,z}^{'(j)}$ は以下の式から求められる.

$$I_{x,y,z}^{\prime(j)}(\phi_{x,y}^{(j)}) = \left|\phi_{x,y}^{(j)} \otimes t_{x,y,z}\right|^2$$
(5.1)

*t_{x,y,z}*は各フォーカスにおける点広がり関数,⊗は畳み込み演算子である.通常,畳み込み演 算はフーリエ変換を用いて計算する.ここで実験的に得られた像シリーズと計算で得られ た像シリーズとの誤差を以下の式で定義する.

$$E^{(j)}(\phi_{x,y}^{(j)}) = \frac{1}{N_z} \sum_{z} \left(\sum_{x,y} \left| I_{x,y,z} - I_{x,y,z}^{\prime(j)}(\phi_{x,y}^{(j)}) \right|^2 / \sum_{x,y} I_{x,y,z} \right)$$
(5.2)

 $I_{x,y,z}$ は実験的に得られた像シリーズ、 N_z は像シリーズの枚数、 Σ は総和演算子である. 波動場の更新は以下の式に従って行う.

$$\phi_{x,y}^{(j+1)} = \phi_{x,y}^{(j)} - \alpha \cdot d_{x,y}^{(j)}$$
(5.3)

ここで $d_{x,y}^{(j)}$ は探索方向, α はフィードバックパラメータで $\alpha > 0$ である. SD-MAL 法の場合, 探索方向は誤差の勾配方向 $g_{x,y}^{(j)}$ によって与えられる. 誤差の勾配方向は以下の式で与えられる.

$$g_{x,y}^{(j)} = \frac{\partial E^{(j)}(\phi_{x,y}^{(j)})}{\partial \phi_{x,y}^*}$$
$$= -\frac{1}{N_z} \sum_{z} \left[\left\{ \left(I_{x,y,z} - I_{x,y,z}^{\prime(j)}(\phi_{x,y}^{(j)}) \right) \cdot \left(\phi_{x,y}^{(j)} \otimes t_{x,y,z} \right) \right\} \otimes t_{x,y,z}^* / \sum_{x,y} I_{x,y,z} \right]$$
(5.4)

CG-MAL 法の場合, 探索方向は誤差の勾配方向 $g_{x,y}^{(j)}$ と前回の探索方向 $d_{x,y}^{(j-1)}$ から求められる. 非線形共役勾配法では探索方向を求める方法はいくつか提案されているが,ここでは以下 のように Polak-Ribiére 法を用いて探索方向を決定する[5].

$$d_{x,y}^{(j)} = g_{x,y}^{(j)} + \beta d_{x,y}^{(j-1)}$$
(5.5)

上式においてβは以下のように定義する.

$$\beta = Re\left\{ \sum_{x,y} \left(g_{x,y}^{(j)} - g_{x,y}^{(j-1)} \right)^* \cdot g_{x,y}^{(j)} \right\} / \sum_{x,y} \left| g_{x,y}^{(j-1)} \right|^2$$
(5.6)

探索方向 $d_{x,y}^{(j)}$ を決定することができればフィードバックパラメータ α は以下の方程式を解くことで求められる.

$$\frac{\partial E^{(j)}(\phi_{x,y}^{(j)} - \alpha \cdot d_{x,y}^{(j)})}{\partial \alpha} = 0$$
(5.7)

以上のような反復的な処理によって MAL 法は他のフーリエ解析的なフォーカスシリーズ再構成法よりも正確に波動場を再構成できると考えられる. MAL 法では一回の反復計算で 2×N₂回のフーリエ変換をする必要があるため処理に時間がかかる.本研究では GPU を用いて計算を行うプログラムを作成し, CPU を用いた場合よりも約 70 倍高速に処理することが可能になった.

5.2.2.MAL 法の伝達特性

次にテスト画像を用いて再構成を行い,MAL法の伝達特性 を調べた.図 5-2 はテスト画像とそのパワースペクトルを示 している.この画像は光学の分野でテスト画像としてよく用 いられており,様々な空間周波数成分の情報を含むため再構 成法の伝達特性を直感的に理解することができる.まず図 5-2(a)を複素透過関数の位相分布と仮定し,スルーフォーカスシ リーズを計算した.ここでは画像の濃淡を位相変化の大小に 対応させ,位相変化の最小値を 0°,最大値を 90°とした. 複素透過関数の振幅分布は 1 とし,周期的な境界条件を用い て計算を行った.スルーフォーカスシリーズの画像枚数は 32 枚,フォーカステップは210 μm,デフォーカスレンジは-3.36 mm から 3.15 mm,加速電圧は 200 kV とした.

図 5-3 は計算した 32 枚のデフォーカス像のうちの 5 枚を示 している. 試料を位相物体であると仮定して像を計算したた め,インフォーカス像に対応する図 5-3(a)ではコントラストが 消失している. また図 5-3(b)-(e)ではデフォーカスをかけるこ



図 5-2 (a) 仮定した位相分布. (b) 位相分布のパワースペクトル.

とによって試料構造に由来するコントラストが表れているが,図 5-3(b),(d)ではデフォーカ ス量が小さいためわずかなコントラストしか表れていない.一方,図 5-3(c),(e)ではデフォー カス量を大きくすることで比較的強いコントラストが表れている.



図 5-3 計算したスルーフォーカスシリーズの一部.

計算した 32 枚のスルーフォーカスシリーズを用いて CG-MAL 法による波動場再構成を 行った.ここでは 3DFFM を用いて初期波動場を求めた.図 5-4 は初期波動場の位相分布と 10 回反復後,100 回反復後の位相分布を示している.初期波動場の位相分布はテスト画像の エッジを強調したような画像になっており,高空間周波数成分はよく伝達されているもの の低空間周波数成分は十分に伝達されていないことが確認できる.一方,CG-MAL 法では 反復計算を行うことで低空間周波数成分が徐々に再構成され,図 5-4(c)では仮定した位相分 布と同等のものが再構成できている.ここでは CG-MAL 法による再構成結果を示したが, SD-MAL 法を用いても仮定した位相分布を再構成できることを確認した.このように MAL 法を用いることで低空間周波数成分を再構成できることがわかった.



図 5-4 CG-MAL 法によって再構成された位相分布.(a) 初期波動場.(b) 10 回反復後. (c) 100 回反復後.

図 5-5 は CG-MAL 法によって再構成された波動 場の位相コントラスト伝達関数を反復回数ごとに プロットしたものである.上述したように初期波 動場では低空間周波数成分の伝達特性が悪いが, 反復を繰り返すことで低空間周波数成分の伝達特 性が向上していることが示されている.このよう に MAL 法では反復を繰り返すことで,低空間周 波数成分を適切に強調できることが明らかになっ た.



5.3.IWFR法との比較

HRTEM の分野では MAL 法の他にも Iterative Wave Function Reconstruction Method (IWFR 法) という反復的な再構成法が提案されおり[7], IWFR 法を用いても低空間周波数成分を再 生できることを確認した. そこで本項では IWFR 法と MAL 法の収束速度の比較を行った.

5.3.1.IWFR 法の処理アルゴリズム

IWFR 法では回折イメージングなどで用いられている Gerchberg-Saxton 型のアルゴリズム [8]を用いて、二次元フーリエ変換と逆フーリエ変換を繰り返すことで波動場を再構成する. 図 5-6 は IWFR 法の処理を模式的に示したものであり、図中では実験的に得た N_{z} 枚のスルー フォーカスシリーズを $I_{n}(r_{2D})$ ($n=1,2, \cdot \cdot N_{z}$)、反復回数をj、二次元フーリエ変換と逆変換 を FT、FT⁻¹と表している.以下に IWFR 法のアルゴリズムを簡単に説明する.

1. スルーフォーカスシリーズ*I_n(r_{2D})*を用いて各フォーカスの複素波動場を

$$\psi_n^j(\mathbf{r_{2D}}) = \sqrt{I_n(\mathbf{r_{2D}})} \cdot exp\{i\phi_n^j(\mathbf{r_{2D}})\}$$
と表す. ただし, $j = 0$ のとき, $\phi_n^0(\mathbf{r_{2D}}) = 0$ とする.

- 2. $\psi_n^j(\mathbf{r}_{2D})$ をフーリエ変換し、収差補正関数 $exp\{-i\gamma_n(\mathbf{g}_{2D})\}$ を乗算する.
- 3.2の結果を積算平均する.
- 3の結果に収差関数*exp*{*i*γ_n(*g*_{2D})}を乗算し、逆フーリエ変換することで各フォーカスでの波動場を計算する。その結果を*r*-θ表示する。
- 5.4 で得られた電子波の強度分布と実験で得られたスルーフォーカスシリーズの像強度を 比較し、誤差が閾値よりも小さければ3の結果を再構成波動場として出力する.誤差が 閾値よりも大きければ4の振幅分布をスルーフォーカスシリーズの像強度で置き換えて、 1に戻る.

以上のように IWFR 法では各フォーカスにおける波動場の振幅成分を拘束条件として, 各像面から試料下面までの伝搬と逆伝搬を繰り返すことで波動場を再構成している.また 一回目の反復計算は Schiske の方法[4]の変化形であるため,本アルゴリズムの一部を変更す ることによって 3DFFM などで得られた波動場を初期波動場とすることもできる.本手法は 一回の反復計算に N₂回のフーリエ変換をする必要がある.そこで処理を高速化するために, GPU を用いるプログラムを作成した.



図 5-6 IWFR 法における処理の模式図.

5.3.2.**収束速度の比較**

図 5-7(a)は5.2節で計算したスルーフォーカスシリーズを用いて再構成した時の, SD-MAL, CG-MAL, IWFR 法の誤差の推移を表したものである.それぞれの再構成法に対して同一の 初期波動場を用いているため初期の誤差は同じ値になっている.反復を繰り返すごとに誤 差がゼロに収束しているが, CG-MAL 法は他の手法よりも早く収束していることがわかっ た.

図 5-7(b)は SD-MAL, CG-MAL, IWFR 法の誤差の時間変化を表している. SD-MAL, CG-MAL 法の反復一回あたりの計算時間は約 77 msec, IWFR 法の反復一回あたりの計算時間は約 35 msec であった. 32 枚の画像サイズは 1024×1024 ピクセルである. また反復計算はGPU (NVIDIA Geforce GTX 1070)を用いて行った. 図 5-7(b)から CG-MAL 法は IWFR 法よりも反復一回当たりの計算時間は長いものの,他の反復的波動場再構成法よりも短時間で収束したデータを得られることが明らかになった. 開発した処理プログラムでは約 5 秒程度で十分に収束したデータが得られており、実用的な処理速度が達成されている. またIWFR 法と SD-MAL 法は比較的同じ収束特性を示しているが、これは J. R. Fineup によって示されているように、IWFR 法のような Gerchberg-Saxton 型のアルゴリズムは数学的に最急降下法と同等であるためである[9].



図 5-7 (a) IWFR, SD-MAL, CG-MAL 法の誤差の推移. (b) IWFR, SD-MAL, CG-MAL 法の誤差の時間変化.

5.4. TIE法との比較

低倍 TEM 観察では低空間周波数成分の位相回復を行う方法として TIE 法と呼ばれる フォーカスシリーズ再構成法がよく用いられている. そこで本節では TIE 法と MAL 法の伝 達特性の比較を行った.

5.4.1.TIE 法の処理アルゴリズム

TIE 法ではデフォーカスをわずかにずらした三枚の画像を用いて強度輸送方程式を解く ことで位相分布を再構成する.強度輸送方程式は像強度と位相の関係を微分方程式で表現 したものであり,以下の式で表される[10].

$$\frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{\partial}{\partial z} I(x, y, z) = -\nabla_{xy} \cdot \left(I(x, y, z) \nabla_{xy} \phi(x, y, z) \right)$$
(5.8)

 $I(x,y,z), \phi(x,y,z)$ は位置(x,y,z)における像強度と位相分布を表している. ∇_{xy} はxy平面でのベクトル微分演算子を表す.強度輸送方程式の解法としては様々なものが提案されているが、フーリエ変換を用いて二段階で計算する手法が一般的である[11].この手法ではまず式(5.8)の右辺を置き換えて以下のように書き換える.

$$\frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{\partial}{\partial z} I(x, y, z) = -\overline{v}_{xy}^2 \Phi(x, y, z)$$
(5.9)

ただしここでは $\nabla_{xy} \Phi(x, y, z)$ を以下のように定義している.

 $\nabla_{xy}\Phi(x,y,z) \equiv I(x,y,z)\nabla_{xy}\phi(x,y,z)$ (5.10)

式(5.9)はポアソン方程式であるのでフーリエ変換を用いることで解ける. $\partial I(x, y, z)/\partial z$ は オーバーフォーカス側,アンダーフォーカス側にデフォーカスした画像を用いて中央差分 で近似する[12].式(5.9)を解いて $\phi(x, y, z)$ が得られれば,式(5.10)を変形した以下のポアソン 方程式を解くことで位相分布 $\phi(x, y, z)$ を得ることができる.

$$\nabla_{xy}^2 \phi(x, y, z) = \nabla_{xy} \cdot (\nabla_{xy} \phi(x, y, z) / I(x, y, z))$$
(5.11)

5.4.2.伝達特性の比較

5.2 節で計算したスルーフォーカス シリーズを用いて TIE 法による位相回 復を行った.図 5-8(a), (b)は図 5-3(a), (b), (d)の三枚の画像から再構成された 位相分布とそのパワースペクトルを示 している. 三枚の画像のフォーカスス テップは 210 µm である. 図 5-2 と比 較すると図 5-8(a).(b)では仮定した位 相分布とほぼ同等のものが再構成でき ている. 一方, 図 5-8(c), (d)は図 5-3(a), (c), (e)から再構成された位相分布とそ のパワースペクトルを示している.三 枚の画像のフォーカスステップは 3.2 mm である. 図 5-8(c), (d)では再構成さ れた位相分布がぼけていることが確認 できる.



図 5-8 TIE 法を用いて再構成した位相分布とそのパ ワースペクトル. (a), (b) フォーカスステップ 210 μm. (c), (d) フォーカスステップ 3.2 mm.

式(5.9),(5.11)から分かるように,TIE 法では z 軸方向の像強度変化にローパスフィルタを 乗算することで位相分布が再構成される.これはデフォーカスが小さい場合はコントラス ト伝達関数が空間周波数に対して二次関数的に変化することに対応している.フォーカス ステップが小さい場合には z 軸方向の像強度変化を差分で十分に近似できるため,図 5-8(a), (b)では比較的正しい位相分布を再構成できている.しかしながら,伝達されている低空間 周波数成分はごくわずかであるため,実験ではノイズの増強やアーティファクトが生じや すいことに注意する必要がある.実際に TIE 法で再構成された位相分布はノイズやアーティ ファクトの影響を大きく受けるため,定量的な位相回復には問題があることが報告されて いる[13].

一方,フォーカスステップが大きな場合はコントラスト伝達関数が二次関数で近似でき ないため,高周波成分が相対的にダンピングされ位相分布がぼけることになる.また伝達関 数の振動も補正されないため,再構成結果にそのまま表れる.そのため,図 5-8(c),(d)では ぼけた位相分布が再構成されている.

以上のように TIE 法は三枚のデフォーカス画像から比較的簡便に位相分布を再構成でき るものの,大きなデフォーカスステップで撮影された画像を適切に取り扱うことができな いため,定量的な位相回復には適さないことがわかった.これに対して MAL 法には扱える デフォーカス量に制限はないため,TIE 法よりもより信頼性の高い位相回復が行えると期待 できる.

5.5.結言

本章では 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、テスト画像 を用いて検討を行った.その結果、本手法では反復を繰り返すことで低空間周波数成分を再 生できることが分かった.次に IWFR 法との収束速度の比較を行い、CG-MAL 法は他の手 法よりも良い収束特性を示すことが分かった.また作成した処理プログラムでは GPU を使 用することで数秒程度での処理が可能であり、これは十分実用的な処理速度である.最後に MAL 法の伝達特性を TIE 法と比較し、MAL 法は TIE 法よりも優れた伝達特性を有してい ることがわかった.

参考文献

- 1. W. Coene, G. Janssen, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, *Phys. Rev. Lett.*, 69, 3743 (1992).
- 2. T. Kawasaki, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu, Ultramicroscopy, 90, 47 (2001).
- 3. M. O. Beeck, D. V. Dyck, and W. Coene, Ultramicroscopy, 64, 167 (1996).
- 4. P. Schiske, J. Microsc., 207, 154 (2002).
- 5. W. M. J. Coene, A. Thust, M. O. Beeck, and D. V. Dyck, Ultramicroscopy, 64, 109 (1996).
- 6. F. Lin, F. R. Chen, Q. Chen, D. Tang, and L. M. Peng, J. Electron Microsc., 55, 191 (2006).
- 7. L. J. Allen, W. McBride, N. L. O'Leary, and M. P. Oxley, Ultramicroscopy, 100, 91 (2004).
- 8. R. W. Gerchberg, and W. O. Saxton, *Optik*, **35**, 237 (1972).
- 9. J. R. Fienup, Applied Optics, 21, 2758 (1982).
- 10. M. R. Teague, J. Opt. Soc. Am., 73, 1434 (1983).
- 11. D. Paganin, and K. A. Nugent, Phys. Rev. Lett., 80, 2586 (1998).
- 12. K. Ishizuka, and B. Allman, J. Electron Microsc., 54, 191 (2005).
- 13. M. Mitome, K. Ishizuka, and Y. Bando, J. Electron Microsc., 59, 33 (2010).

第6章 MAL法を用いた低空間周波数成分の位相回復

6.1.緒言

第5章ではテスト画像を用いて MAL 法による再構成を行い,低空間周波数成分の位相回 復が行えることを明らかにした.本章では実際に撮影したスルーフォーカスシリーズを用 いて,CG-MAL 法による再構成を行った結果について述べる.まず磁気バブルと呼ばれる 磁気構造のスルーフォーカスシリーズを撮影し,波動場再構成と磁気構造の可視化を行っ た結果について説明する.次にシミュレーションを用いて MAL 法の定量性について考察し た結果を説明する.最後に金微粒子と多層グラフェンの波動場再構成を行った結果につい て説明する.

6.2.磁気バブルの位相回復

6.2.1.ローレンツ電子顕微鏡法

ローレンツ電子顕微鏡法(LTEM)とは磁場や磁性材料中の磁気構造を観察するための顕 微鏡法であり,電子線が磁場から受けるローレンツ力を利用してコントラストを得る[1]. 図 6-1 は LTEM においてフレネルモードと呼ばれる観察方法を模式的に示したものである. 図 6-1 では試料は紙面に垂直な方向に磁化しており,偏向された電子線の軌跡を点線で表し ている.インフォーカス条件では磁場によって偏向された電子線が重なり合わないため,磁 場由来のコントラストを得ることはできない.デフォーカスをかけると電子線が重なり

合った領域では明るいコントラストが 表れ,電子線が疎になった領域では暗 いコントラストが表れる.この時,コン トラストは磁区と磁区の境界部分に表 れていることに注意する必要がある. 試料中の磁場による電子線の偏向は電 子波の位相分布が変化することに対応 するため,フレネルモードで撮影した スルーフォーカスシリーズから波動場 の位相分布を再構成することで試料の 磁場分布を計測できる.



図 6-1 LTEM におけるフレネルモードの模式図.

通常の TEM では試料は対物レンズの強磁場中に置かれるため, 試料が本来もっている磁 場を観察することができない. LTEM では特殊な光学系[2]や磁場フリーレンズ[3]を用いる ことで試料中の磁場の観察を可能にしている.本研究では大阪府立大学森研究室のグルー プによって開発されている LTEM を用いて実験を行った[4].この LTEM は JEM-2100F(日 本電子)をベースにしたものであり,光学系を切り替えることによって小角電子線回折パ ターンの観察と実像の観察ができる.図 6-2(a)は小角電子線回折パターンを観察するための 光学系,図 6-2(b)は実像を観察するための光学系を示している.これらの光学系では対物レ ンズは試料にわずかな磁場を印加するために弱励磁条件で使用されている.実験に用いた 図 6-2(b)の光学系では,対物レンズの下にある対物ミニレンズの電流値を変化させることで デフォーカス量を変化させている.



図 6-2 (a) 小角電子線回折パターンを観察するための光学系. (b) 実像を観察するための光学系[4].

6.2.2.磁気バブル

本節では観察対象として円柱状の磁気構造を有する磁気バブルを選択した.磁気バブル はその磁気構造に起因して特異な物性を示すことが予想されており,次世代のスピントロ ニクス材料として注目されている[5-7].近年では磁気バブルの磁気構造解析を目的とした LTEM 観察が多数報告されているが,これらの LTEM 観察は 5.4 節で説明した TIE 法を用い ているため,磁気構造を詳細に解析することが難しい.そのため,多数枚のデフォーカス画 像を用いてより定量的な観察を行うことが求められていた.
磁気バブルは大きく分けて type-I 磁気バブルと type-II 磁気バブルの二種類に分類される [8,9]. 図 6-3 は type-I 磁気バブルと type-II 磁気バブルの磁気構造とフレネルモードによって 得られるコントラストの模式図を示している[10]. type-I 磁気バブルは時計回りまたは反時 計回りに連続的に磁化した磁壁を有しており,バブルの中央と外側は膜面に対して垂直な 磁化ベクトルを有している.一方, type-II 磁気バブルは二対の平行な磁壁を有しており, type-I 磁気バブルとは異なるコントラストを示す.



図 6-3 type-I 磁気バブルと type-II 磁気バブルの磁気構造とフレネルモードによって 得られるコントラストの模式図[10].

6.2.3.MAL 法を用いた磁気バブルの位相回復

図 6-4 は試料として用いた M 型六方晶フェラ イト BaFe_{12-x}-0.05Sc_xMg_{0.05}O₁₉(x =1.6)の結晶構造 を示している[10]. R と R'で示されたブロック はフェリ磁性を有しており,トータルとしては c 軸方向に磁化している. 試料は Floating Zone 法で作製された単結晶の M 型へキサフェライ トを c 軸に垂直な面で切り出し, Ar⁺イオンミリ ングによって薄片化することで作製された. 磁 気バブルは対物レンズを用いて 200 mT 程度の 垂直磁場を薄膜に印加することで生成した.

32 枚の磁気バブルのスルーフォーカスシ リーズはフォーカスステップ約 210 µm で, R' R R' c a b (Sc, Mg)

図 6-4 M型六方晶フェライトの結晶構造[10].

-3.36 mm から 3.15 mm のデフォーカス範囲で

撮影した.また画像一枚当たりの電子線ドーズ量は約50 e/nm²であった.撮影した像シリーズには大きなデフォーカ量に起因する像回転,像シフト,倍率の変化が含まれていたため, テンプレートマッチングを用いてこれらの変化を補正した[11]. 図 6-5 は撮影した 32 枚のスルーフォーカスシリーズのうちの 5 枚を示している. 図 6-5(a) ではインフォーカス位置において磁気バブルのコントラストが消失しており,磁気バブル は位相物体であると考えられる.また画像右側には等傾角干渉縞[12]が暗いコントラストで 表れている.図 6-5(b)-(d)ではデフォーカスをかけることによって磁気バブルのコントラスト か表れている.図 6-5(b)において A と C で示した磁気バブルは典型的な type-I 磁気バブ ルのコントラストを示しており,それぞれ反時計周りと時計回りの磁壁を有している.また B と D で示した磁気バブルは典型的な type-II 磁気バブルのコントラストを示している.図 6-5(c), (e)ではデフォーカス量を大きくすることで,磁気バブルのコントラストをより鮮明 に得ることができている.



図 6-5 磁気バブルのスルーフォーカスシリーズの一部.

撮影したスルーフォーカスシリーズから再構成した位相分布と対応する面内磁化分布を 図 6-6 に示す.面内磁化分布は再構成された位相分布を微分することによって求められ[13], カラーホイールで示しているように磁化ベクトルの向きと大きさは色相と明るさに対応し ている.波動場再構成法では通常,試料の静電ポテンシャルによって引き起こされる位相変 化と磁場によって引き起こされる位相変化を分離することはできない.現在の観察倍率は 低いため,原子スケールで発生している静電ポテンシャルの影響はあらわに表れていない と仮定して磁場分布を求めている.

図 6-6(a), (b)は TIE 法によって再構成された位相分布とそれに対応する面内磁化分布を示している. TIE 法では処理に用いる三枚の画像によって異なる結果が得られるが,ここでは 過去の研究例[14]を参考にして図 6-5(a), (b), (d)を用いて位相分布を再構成した.またノイズ の増強を防ぐため元画像の 2.5 µm⁻¹以下の空間周波数成分を除去してから処理を行った. TIE 法で得られた磁化分布ではアーティファクトが存在しているものの, 比較的正しい磁場 分布が得られている.

図 6-6(c), (d)は CG-MAL 法を用いて 100 回反復計算を行った後の位相分布と面内磁化分 布を示している. CG-MAL 法の初期波動場には 3DFFM で得られた波動場を用いた. CG-MAL 法では TIE 法より十数倍大きいデフォーカス範囲で撮影されたスルーフォーカスシ リーズを用いているため、ノイズやアーティファクトが低減されたより信頼性の高い結果 を得ることができた. 今回の実験では撮影に用いた総電子線量が異なるため TIE 法と CG-MAL 法との単純な比較はできないが、 CG-MAL 法は位相の定量性という点において TIE 法よりも優れた手法であるといえる.

また CG-MAL 法によって得られた面内磁化分布からは各磁気バブルの磁気構造を詳細に 観察できる.図 6-6(e)は CG-MAL 法によって得られた磁化分布の大きさをグレースケール で示したものである.この図から A で示した type-I 磁気バブルの磁壁の幅は約 109 nm であ ることがわかった.また B と D で示された type-II 磁気バブルは異なる内部磁気構造を持っ ていることが明瞭に示されている.例えば B で示された磁気バブルは二対の平行な磁壁の 先がずれているが,D で示された磁気バブルでは磁壁の先がぶつかり合っている.またバブ ル中央の磁場強度もそれぞれ異なっている.これらの面内磁化分布の違いは磁気構造の三 次元的な違いによるものであると考えられる.将来的には得られた磁化分布とマイクロ磁 気シミュレーション[15,16]を用いることで,それぞれの磁気バブルの三次元構造について議 論が可能になると思われる.



図 6-6 (a), (b) TIE 法で再構成された位相分布と面内磁化分布. (c), (d) CG-MAL 法で 再構成された位相分布と面内磁化分布. (e) CG-MAL 法で得られた面内磁化分布の大 きさ.

6.2.4.位相回復の定量性の評価

フォーカスシリーズ再構成法で は位相の検出限界や定量性は、ス ルーフォーカスシリーズの枚数,像 シリーズが撮影されたデフォーカ ス範囲,試料の大きさ,照射電子線 量などに依存する.本項では照射電 子線量を変化させてシミュレー ションを行い,現在の実験条件にお ける位相の定量性を評価した結果 について述べる.

図 6-7(a), (b)はシミュレーション に用いた type-I 磁気バブルの位相分 布と動径方向のラインプロファイ ルを示している. type-I 磁気バブル の位相分布は回転対称であると仮



図 6-7 (a), (b) 仮定した type-I 磁気バブルの位相分布と 動径方向のラインプロファイル. (c) 仮定した磁気バブ ルの面内磁化分布.

定した.また位相分布の最大値は θ_{max} であり, 磁気バブルのエッジ付近では位相がコサイン 関数的にゼロに減衰すると仮定した.図 6-7(c)は対応する面内磁化分布を示している.磁壁 はリング状の領域に局在し,リングの中央部分では上向きの磁場,リングの外側では下向き の磁場を有していると仮定した.

電子線照射量を考慮した像シミュレーションは得られた像コントラストを確率分布とみなし、電子線照射量に相当する電子を各ピクセルに分配することで行った. 各ピクセルへの 電子の分配は Neumann の棄却法を用いておこなった[17].

図 6-8 は現在の実験条件と同じ総電子線照射量 1600 e/nm² で計算した像シリーズから再 構成した位相分布を示している. 位相分布の最大値 θ_{max}が大きい図 6-8(a), (b)などでは仮定 した位相分布図 6-7(a)とほぼ同等の位相分布が再構成できている. 一方, 位相分布の最大値 θ_{max}が小さな図 6-8(e)-(g)などでは像コントラストが弱いためノイズの影響を受けているが, 定性的には仮定した位相分布と同等のものが再構成されている.

ここでは位相回復の定量性を再構成された位相分布の誤差率を用いて評価することとした. 誤差率は仮定した真の位相分布と再構成された位相分布との標準偏差を位相分布の最大値 θ_{max} で割ったものと定義した. 図 6-9 は位相分布の最大値 θ_{max} と電子線照射量を変化 させたときの誤差率を示している. 誤差率 50%における位相分布の最大値を検出限界と定 義すると,現在の実験条件では総電子線照射量が 1600 e^{-/nm²} であるので位相の検出限界は 約 3[°] 程度であることがわかった. これは通常の off-axis 電子線ホログラフィーと同じオー ダーであり, CG-MAL 法は off-axis 電子線ホログラフィーと同程度の高い検出感度を有する ことを示している. また図 6-9 では露光時間を 10 倍程度長くすることで検出限界を約 1[°] 程度にまで向上できることも確認できる. 露光時間を長くする以外にも, スルーフォーカス シリーズを撮影するデフォーカス範囲を広げることでも定量性や検出限界を向上させるこ とが可能である.



図 6-8 電子線照射量を考慮した計算像から再構成した type-I 磁気バブルの位相分布. 位相分布の最大値 θ_{max} は(a) 90°, (b) 45°, (c) 20°, (d) 10°, (e) 5°, (f) 2°, (g) 1°. 位相 分布を再構成するのに用いた総電子線照射量は 1600 e⁻/nm².



図 6-9 総電子線照射量と位相分布の最大値 θmax を変化させた時の誤差率の変化.

6.3. 多層グラフェンと金微粒子の位相回復

高分解能観察では試料の原子構造を観察することが多いため、低空間周波数成分の位相 回復はこれまで重要視されていなかった.しかし、低空間周波数成分の再生は試料厚さの計 測や構成元素の識別などを行うには不可欠であり、構造解析をより高いレベルで実施する には高分解能観察においても低空間周波数成分を回復することが重要である.本節では HRTEM で撮影したスルーフォーカスシリーズを用いて CG-MAL 法による再構成を行った 結果について説明する.

図 6-10 は 3DFFM と CG-MAL 法を用いて再構成した位相分布を示している. 試料は金微 粒子を蒸着した多層グラフェン膜であり,フォーカスステップ 3 nm で撮影した 256 枚のス ルーフォーカスシリーズから再構成した.図 6-10(a)は 3DFFM によって再構成された位相 分布を示している.像中央付近には金多重双晶粒子が存在しており,金微粒子を支持してい る多層グラフェン膜にはアモルファスカーボンがコンタミネーションとして付着している. 3DFFM で再構成された位相分布では高空間周波数成分は正しく伝達されているものの,低 空間周波数成分はほとんど伝達されていない.そのため,金微粒子は多層グラフェンと同じ ようなコントラストで表れている.しかし,金原子による位相変化は炭素原子によるものよ りもはるかに大きいため,金微粒子による真の位相変化もより大きいと考えられる.

図 6-10(b)は CG-MAL 法によって再構成された位相分布を示している. ここでは 3DFFM によって得られた波動場を初期波動場として反復計算を行った. 3DFFM によって再構成された位相分布と比較すると, CG-MAL 法では低空間周波数成分が再生できている. また金 微粒子が明るいコントラストで再生されており,より真の位相分布に近いものが再構成できていると思われる. また位相分布をカラー表示した図 6-10(c)では金微粒子がドーム型の形状をしていることが明瞭に示されており,位相は最大で約 65°変化していることがわかった.



図 6-10 (a) 3DFFM によって再構成された位相分布. (b), (c) CG-MAL 法によって再構成された位相分布.

図 6-11 は同じ試料の別視野から再構成した位相分布と AB 間のラインプロファイルを示 している. 観察領域の中央付近は膜が破れており,真空領域となっている. 図 6-11(a)は 3DFFM によって再構成された位相分布であるが,低空間周波数成分が正しく再生されてい ないため,真空領域と多層グラフェン膜とがほぼ同じコントラストで表れている.

一方, CG-MAL 法によって再構成された図 6-11(b)では低空間周波数成分が再生できているため,金微粒子が明るいコントラストで,真空領域が暗いコントラストで表れている. CG-MAL 法で再構成された位相分布のラインプロファイルからは多層グラフェン膜の位相変化量が約7°であることがわかった.



図 6-11 (a) 3DFFM, (b) CG-MAL 法によって再構成された位相分布. (c) AB 間のライ ンプロファイル.

次にシミュレーションとの比較から多層グ ラフェン膜の膜厚を見積もった.図 6-12 はマ ルチスライスシミュレーションによって求め たアモルファスカーボン膜の膜厚と平均的な 位相回転角との関係を示したものである.アモ ルファスカーボン膜の密度は 130 個/nm³とし た.このシミュレーション結果から約 7°の位 相変化は膜厚約 1 nm アモルファスカーボン膜 に相当することがわかった.図 6-11 ではアモ ルファスカーボンの付着した多層グラフェン 膜を観察しているため,得られた実験結果とシ ミュレーション結果を単純に比較することは できないが,オーダーとしては比較的正しい結 果が得られていると思われる.



図 6-12 アモルファスカーボン膜の膜厚と 平均的な位相回転角との関係.

以上のように CG-MAL 法を用いることで HRTEM においても低空間周波数成分の位相回 復を行うことができた.また再構成した位相分布からは微粒子の形状推定や膜厚の見積も りを行うことができた.特に図 6-11 で示したように本手法はわずかな真空領域を参照領域 にできる, off-axis 電子線ホログラフィーよりも高い汎用性を有していると言える.

6.4. 結言

本章ではまず磁気バブルのスルーフォーカスシリーズを撮影し、磁気バブルの位相回復 と磁気構造の可視化を行った.その結果、従来まで用いられていた TIE 法よりも SN 比の高 い位相分布と面内磁化分布を得ることに成功した.また得られた面内磁化分布では磁気バ ブルの磁気構造を明瞭に観察でき、これまでに報告されているものとは異なる構造をもつ 磁気バブルを見出すことができた.次に磁気バブルの構造モデルを用いてシミュレーショ ンを行い、現在の実験条件での位相の検出限界は約3°であることわかった.これは off-axis 電子線ホログラフィーと同程度の検出感度であり、CG-MAL 法は高い検出感度を有してい ることが明らかになった.

次に CG-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った. 再構成された 位相分布は低空間周波数成分が回復されており,金微粒子の形状を推定することができた. また視野内のわずかな真空領域を参照領域とすることで,多層グラフェンの膜厚推定も行 うことができた. 以上の実験結果は,本手法が off-axis 電子線ホログラフィーに代わる位相 計測法になり得ることを示す重要な結果である.

参考文献

- 1. S.McVitie, and M. Cushley, *Ultramicroscopy*, **106**, 423 (2006).
- T. Matsuda, S. Hasegawa, M. Igarashi, T. Kobayashi, M. Naito, H. Kajiyama, J. Endo, N. Osakabe, A. Tonomura, and R. Aoki, *Phys. Rev. Lett.*, 62, 2519 (1989).
- 3. T. Hirayama, Q. Ru, T. Tanji, and A. Tonomura, Appl. Phys. Lett., 63, 418 (1993).
- 4. H. Nakajima, A. Kotani, K. Harada, Y. Ishii, and S. Mori, *Microscopy*, 65, 473 (2016).
- W. Jiang, X. Zhang, G. Yu, W. Zhang, X. Wang, M. B. Jungfleisch, J. E. Pearson, X. Cheng, O. Heinonen, K. L. Wang, Y. Zhou, A. Hoffmann, and S. G. E. Velthuis, *Nat. Phys.*, 13, 162 (2017).
- 6. X. Zhang, M. Ezawa, and Y. Zhou, Sci. Rep., 5, 9400 (2015).
- X. Zhang, G. P. Zhao, H. Fangohr, J. P. Liu, W. X. Xia, J. Xia, and F. J. Morvan, *Sci. Rep.*, 5, 7643 (2015).
- 8. T. Suzuki, J. Magn. Magn. Mater., 31-34, 1009 (1983).
- H. Nakajima, H. Kawase, K. Kurushima, A. Kotani, T. Kimura, and S. Mori, *Phys. Rev. B.*, 96, 024431 (2017).
- 10. H. Nakajima, A. Kotani, K. Harada, Y. Ishii, and S. Mori, Phys. Rev. B., 94, 224427 (2016).
- 11. 中根志学, 大阪大学修士論文 (2017).
- 12. 今野豊彦,物質からの回折と結像,共立出版 (2009).
- 13. H. Lichte, and M. Lehmann, Rep. Prog. Phys., 71, 016102 (2008).
- 14. A. Kotani, H. Nakajima, K. Harada, Y. Ishii, and S. Mori, Phys. Rev. B., 94, 024407 (2016).
- 15. C. Phatak, O. Heinonen, M. D. Graef, and A. Petford-Long, Nano Lett., 16, 4141 (2016).
- L. Lopez-Diaz, D. Aurelio, L. Torres, E. Martinez, M. A. Hernandez-Lopez, J. Gomez, O. Alejos, M. Carpentieri, G. Finocchio, and G. Consolo, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 45, 323001 (2012).
- 17. 野間口恒典, *大阪大学博士論文* (2007).

総括

本論文はフォーカスシリーズ再構成法に必要不可欠な要素技術である実時間での残存収 差補正と低空間周波数成分の位相回復に取り組んだ成果をまとめたものである.以下に各 章ごとの要旨をまとめ,今後の課題と将来への展望について述べる.

第1章では、本研究の背景と目的について述べた.まず、TEM の結像理論について説明 し、波動場再構成技術の重要性を示した.次に実時間焦点位置変調法の特徴を説明し、本手 法は実時間性を有する唯一の手法であることを述べた.次に MAL 法について説明し、本手 法では反復的な処理によって尤もらしい波動場を再構成できることを説明した.そして フォーカスシリーズ再構成法の問題点を指摘し、より正確な波動場再構成を行うためには 残存収差の補正や低空間周波数成分の位相回復が重要であることを述べた.最後に、残存収 差の実時間補正が可能な TEM システムの開発と MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相 回復を提案し、本研究の目的を述べた.

第2章では、実時間焦点位置変調法の理論的背景について説明し、再構成される波動場と 残存収差との関係について述べた.まず、TEMの三次元結像理論について述べ、焦点位置 変調法という波動場再構成法の理論を説明した.次に再構成波動場と残存収差との関係式 を導出した.そして、対称収差と呼ばれる収差はコントラスト伝達関数として波動場に影響 を与え、非対称収差と呼ばれる収差は波動場の実部成分と虚部成分に同じように作用する ことを説明した.最後に実時間波動場再構成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ということを説明した.

第3章では、再構成波動場に含まれる収差を補正するための残存収差の計測方法を提案 し、原理確認を行った.まず、デフォーカスと二回非点収差の計測方法を提案し、提案手法 を用いることで収差の計測が行えることを確認した.次にコマ収差と三回非点収差を求め るために、ビーム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た.提案手法を 用いることでコマ収差と三回非点収差を高い精度で求めることができた.最後にデフォー カスの計測方法について考察を行い、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が合うということを明らかにした.

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 存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,GPUを用いることで実時間での収差の計測と補正を実現したことを述べた.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 差の実時間補正が可能になったということを示し,本システムは結晶性の試料にも適用可 能であることを述べた.最後に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,±0.4 nm という非常に高い精度で補正ができていることを明らかにした.

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、テスト 画像を用いて検討を行った.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、数秒程度で MAL 法を行えるようになっ た.最後に 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.

第6章では、実際のフォーカスシリーズを用いて MAL 法による再構成を行った.まず LTEM を用いて磁気バブルのスルーフォーカスシリーズを撮影し、磁気バブルの位相回復と 面内磁化分布の計測を行った.その結果、これまでの報告例よりも非常に高い SN 比で低空 間周波数成分の位相回復を行うことができた.次にシミュレーションを用いて定量性を評 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.最後に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が可能になった.

開発した実時間波動場再構成 TEM システムでは,実時間での波動場再構成と残存収差の 補正が可能になった.本システムはデフォーカスの実時間での計測と補正が行えるため,試 料の z 軸ドリフトが発生しやすい ETEM 観察において特に有効に働くと思われる.そのた め,本システムを用いて ETEM 観察を行うことで,従来の TEM では観察することのできな かった新たな知見が得られるようになるのではないかと期待される.また今後は,再構成さ れた波動場をさらに活用することで,試料の厚みや歪みなどを原子レベルで実時間計測で きるようになるのではないかと考えられる.

MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復では、本手法の伝達特性を明らかにし、従 来よりも信頼性の高い結果を得ることができた.現在の実験条件では、MAL 法の位相定量 性はスルーフォーカスシリーズのデフォーカスレンジによって主に制限されていると思わ れる.そのため、今後はデフォーカスに伴う像の倍率の変化、像回転、像シフトが補正可能 な TEM システムを開発することで、本手法の定量性をさらに高めることができると考えら れる.さらに、単層グラフェンや二層グラフェンなどの構造が既知の材料を用いて本手法の 定量性を実験的に示すことができれば、本手法は off-axis 電子線ホログラフィーに代わる位 相計測手法として広く用いられるようになると期待される.

波動場再構成法の究極の目的は,電子波の波動場を実時間でかつ全ての空間周波数帯域 にわたって視野制限を受けずに再構成することである.しかし,TEM では理想的な位相板 を作製することが困難であるため,この目的は未だ達成されていない.将来的には,本研究 で開発したフォーカスシリーズ再構成法とこれまでに開発されている位相板技術などを組 み合わせることにより, TEM における波動場再構成技術がより進展することが望まれる.

謝辞

本研究は、高井義造教授の御指導のもと、大阪大学大学院 工学研究科 生命先端工学専 攻 物質生命工学コースにおいて行われたものであります.本研究を行うにあたり、終始懇 切な御指導、御援助を賜りました高井義造先生に、心より厚く御礼申し上げます.大阪大学 大学院工学研究科 生命先端工学専攻 教授 兼松泰男先生、教授 渡部平司先生には本 論文作成にあたり詳しくご検討頂き、有益な御指示を賜りました.ここに厚く御礼申し上げ ます.

研究室配属以来,終始暖かい激励の言葉を頂き,ご指導を賜りました高井研究室 准教授 木村吉秀先生,助教授 永富隆清先生(現,旭化成)に深く御礼申し上げます.

大阪府立大学大学院 教授 森茂生先生,中島宏博士,小谷厚博氏,理化学研究所 原田 研博士には第6章で述べた磁気バブルの試料作製,構造解析にご協力いただき,有益なご助 言を頂きました.心より御礼申し上げます.

高井研究室の諸先輩,諸兄には一方ならずお世話になりました.中根志学氏(現,ワーク スアプリケーションズ)には磁気バブルの波動場再構成に関して共に解析,議論をして頂き ました.佐川隆亮博士氏(現,日本電子),森潔史氏(現,三菱化学),松永良平氏(現,リ コー),稲盛真幸氏,渡邊由加里氏(現,新明和工業),平林祐太氏(現,古野電気)には常 日頃から研究に関するご助言を頂きました.ここに厚く御礼申し上げます.

終始暖かく激励するとともに有益な議論をして頂きました,大阪大学大学院博士前期課程 永島爽氏,櫻庭千夏氏,大阪大学学部生 梶玲哉氏,徳岡健人氏に深く御礼申し上げま す.

同研究室事務 須磨まゆみ様には事務面でお世話になりました.心より感謝致します.こ の他,高井研究グループの皆さま方の暖かい激励,ご協力に心より感謝致します.

最後に、物心両面から自分を支えてくれた両親に心から感謝の意を示し、結びとさせて頂 きます.本当に有難うございました.

平成 30 年 3 月

研究業績

発表原著論文

- [1] "Development of a real-time wave field reconstruction TEM system (I): incorporation of an autofocus tracking system"
 <u>T. Tamura</u>, Y. Kimura, Y. Takai
 Microscopy 66, 172-181 (2017).
- [2] "Development of a real-time wave field reconstruction TEM system (II): correction of coma aberration and three-fold astigmatism, and real-time correction of two-fold astigmatism"
 <u>T. Tamura</u>, Y. Kimura, Y. Takai
 Microscopy 67, 37-45 (2018).
- [3] "Phase retrieval using through-focus images in Lorentz transmission electron microscopy" <u>T. Tamura</u>, Y. Nakane, H. Nakajima, S. Mori, K. Harada, Y. Takai *Microscopy* (in press), doi: 10.1093/jmicro/dfy014.

国際会議報告

- [1] "In-situ HRTEM observation of graphene growth catalyzed by cobalt nanoparticles"
 <u>OT. Tamura</u>, Y.Takai
 9th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '13 (Hawaii, USA, 2-6 December, 2013)
- [2] "Development of a Defocus Modulation Transmission Electron Microscope System for In-situ High Resolution Observation"
 <u>T. Tamura</u>, Y.Takai
 10th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '15 (Shimane, Japan, 25-30 October, 2015)
- [3] "Development of a Real-Time Wave Field Reconstruction TEM System with Auto Focus Tracking Function"
 OY. Takai, T. Tamura, Y. Kimura
 - Electron Holography Workshop 2017 (Saitama, Japan, 15-17 February, 2017)

[4] "Development of a Real-Time Wave Field Reconstruction System for Environmental TEM Observation"

T. Tamura, Y. Kimura, OY. Takai

11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (Hawaii, USA, 3-8 December, 2017)

受賞

- [1] 第 39 回(2015 年秋季)応用物理学会 講演奨励賞
 "焦点位置追尾機能を有する変調電子顕微鏡システムの開発"
 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会
- [2] 2016年日本顕微鏡学会 優秀ポスター賞 "無収差観察が可能な実時間波動場再構成電子顕微鏡システムの開発" 日本顕微鏡学会第72回学術講演会