



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 電子線ホログラフイー	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収差	27
3.3. デフォーカスと二回非点収差の計測	28
3.3.1. 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.	コ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
3.5.1.	膜厚と決定されるデフォーカス量との関係	35
3.5.2.	線形結像成分と非線形結像成分の分離計算	36
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	37
3.6.	結言	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.	緒言	39
4.2.	実時間波動場再構成 TEM システムの構成	39
4.3.	カメラと関数発生器の制御	40
4.3.1.	カメラの取り付け	40
4.3.2.	関数発生器とカメラの制御ソフトの作成	41
4.3.3.	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
4.5.1.	デフォーカスと二回非点収差の補正結果	44
4.5.2.	デフォーカスと二回点収差の計測精度	51
4.5.3.	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.	結言	53
	参考文献	53
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	54
5.1.	緒言	54
5.2.	MAL 法を用いた位相回復	54
5.2.1.	MAL 法の処理アルゴリズム	54
5.2.2.	MAL 法の伝達特性	57
5.3.	IWFR 法との比較	58
5.3.1.	IWFR 法の処理アルゴリズム	59
5.3.2.	収束速度の比較	60
5.4.	TIE 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
第 6 章	MAL 法を用いた低空間周波数成分の位相回復	64
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
	総括	75
	謝辞	78
	研究業績	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处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处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处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).
7. K. Harada, T. Matsuda, J. Bonevich, M. Igarashi, S. Kondo, G. Pozzi, U. Kawabe, and A. Tonomura, *Nature*, **360**, 51 (1992).
8. 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. McDowell, *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).
14. 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).
18. S. Morishita, J. Yamasaki, K. Nakamura, T. Kato, and N. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 183103 (2008).
19. Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, **48**, 873 (1999).
20. 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 $\mathbf{r}_{2D} = (x, y)$, $\mathbf{g}_{2D} = (u, v)$ 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。

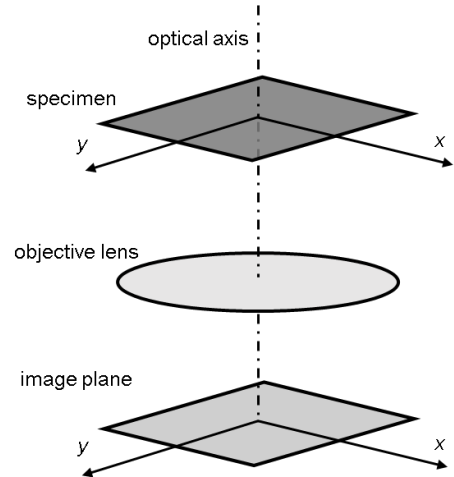


図 1-1 TEM の光学系の模式図。

$$h(\mathbf{r}_{2D}) = h_r(\mathbf{r}_{2D}) + ih_i(\mathbf{r}_{2D}) \quad (1.1)$$

ここで $h_r(\mathbf{r}_{2D})$, $h_i(\mathbf{r}_{2D})$ 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．

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

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．

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

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 $\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})$ と非対称収差関数 $\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})$ 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表される．

$$\psi_i(\mathbf{r}_{2D}) = A \int H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}) + i\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi \mathbf{g}_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) d\mathbf{g}_{2D} \quad (1.4)$$

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．

$$\begin{aligned} i(\mathbf{r}_{2D}) &\simeq A^2 |H(0,0)|^2 \\ &+ 2A^2 |H(0,0)| \int_{\mathbf{g}_{2D} \neq 0} H_r(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \cos \gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi \mathbf{g}_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) d\mathbf{g}_{2D} \\ &- 2A^2 |H(0,0)| \int_{\mathbf{g}_{2D} \neq 0} H_i(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \sin \gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi \mathbf{g}_{2D} \cdot \mathbf{r}_{2D}) d\mathbf{g}_{2D} \end{aligned} \quad (1.5)$$

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． $\cos \gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})$, $\sin \gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})$ 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 $\Delta f = -50$ 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取り、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像面に表れない。また、伝達関数の符号が正の場合は正しいコントラストで伝達されるが、伝達関数の符号が負の場合はコントラストが反転して伝達される。

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。

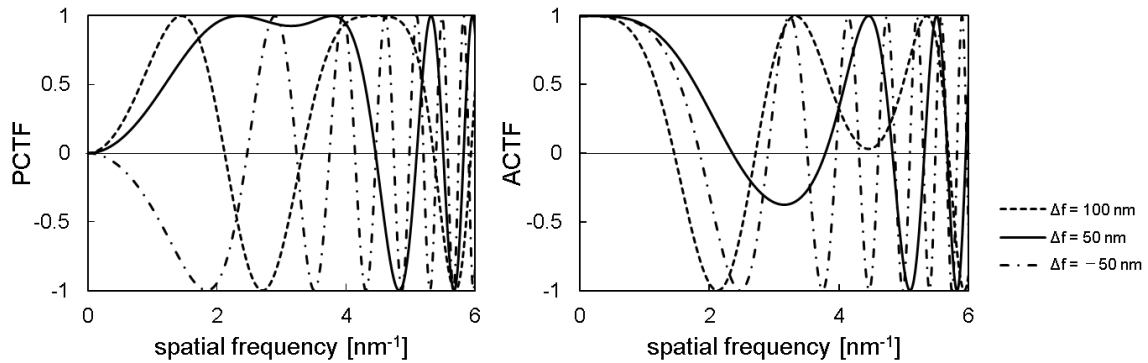


図1-2 位相コントラスト伝達関数と振幅コントラスト伝達関数。

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。

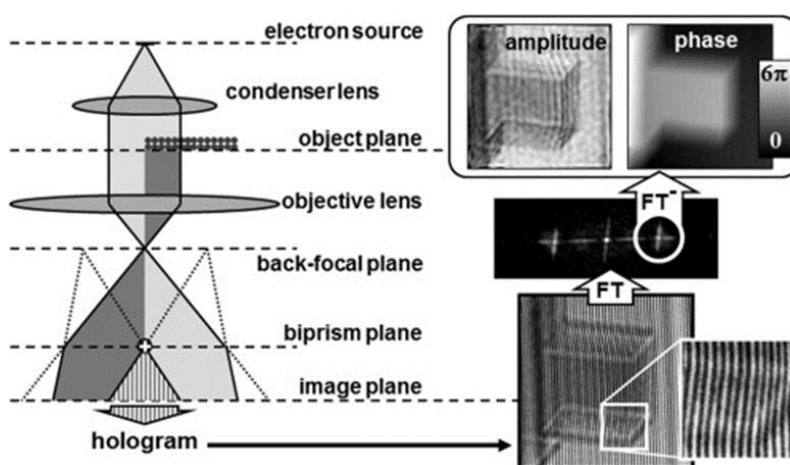


図 1-3 off-axis 電子線ホログラフィーの光学系と処理の模式図[7].

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に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)も提案されている[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ねて撮影する. 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.

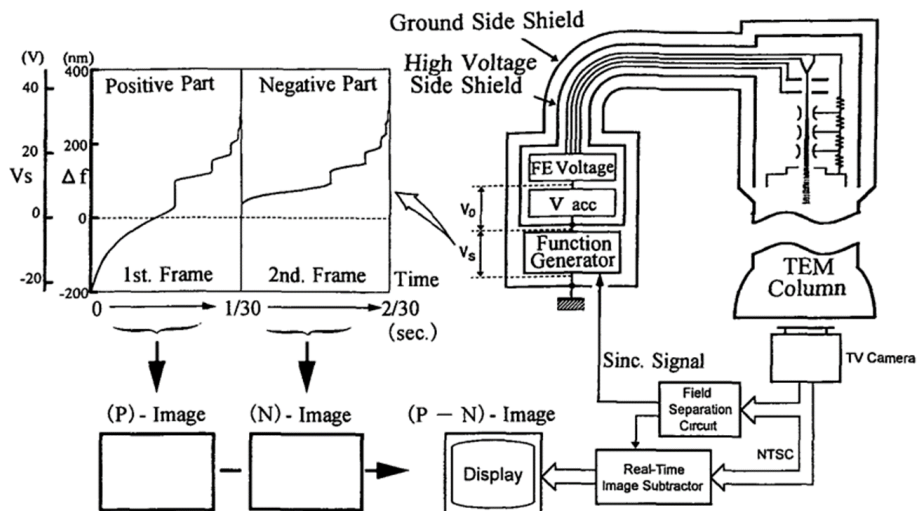


図 1-4 実時間焦点位置変調法における処理の模式図[20].

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.

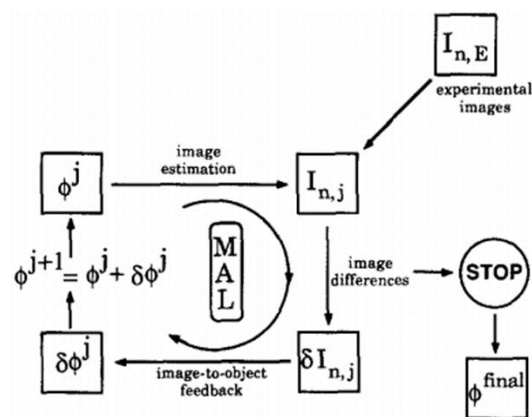


図 1-5 MAL 法における処理の模式図[25].

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 (A_3) 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．

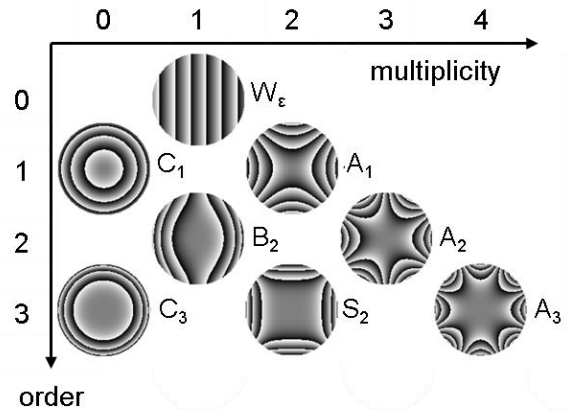


図 1-6 軸上幾何収差の一覧[26]．

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 0 nm 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．

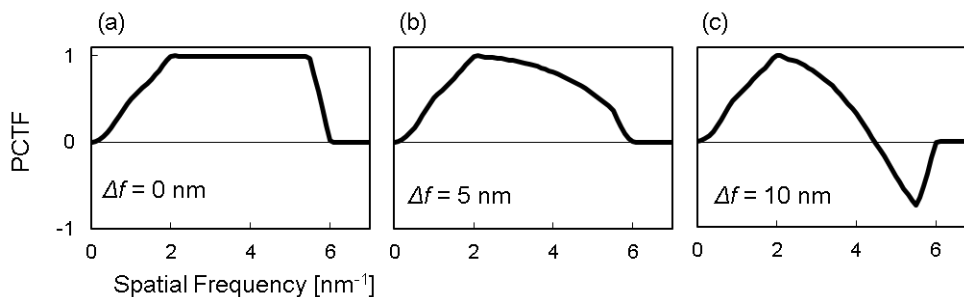


図 1-7 フォーカスシリーズ再構成法で実現される位相コントラスト伝達関数.

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.

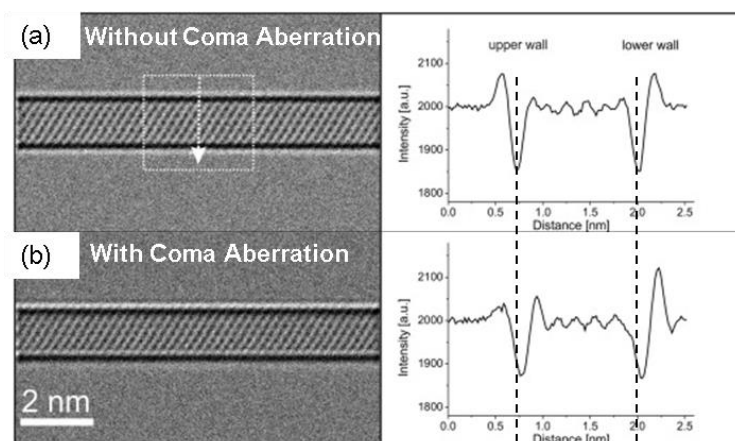


図 1-8 カーボンナノチューブのシミュレーション像とナノチューブ断面方向のラインプロファイル[27]. (a) コマ収差がない場合. (b) コマ収差がある場合.

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。

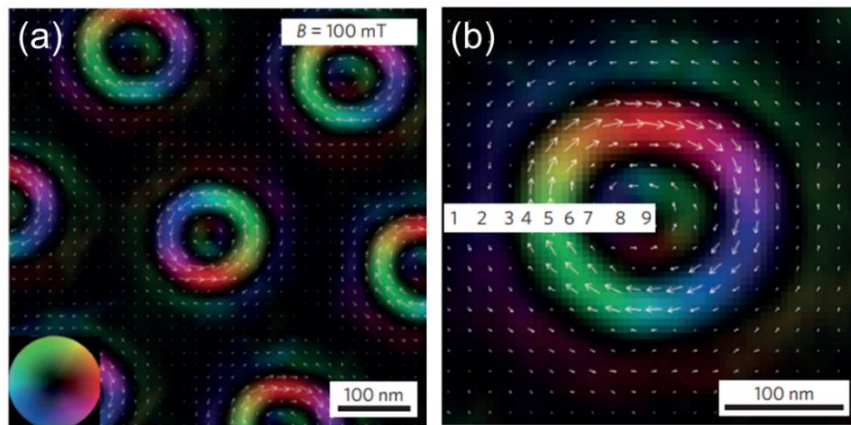


図 1-9 (a) フォーカスシリーズ再構成法によって計測された磁気スキルミオンの面内磁化分布。(b) (a)の拡大像[30]。

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处理的に強調する

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处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と考えられる。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).
5. 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).
7. M. Linck, B. Freitag, S. Kujawa, M. Lehmann, and T. Niermann, *Ultramicroscopy*, **116**, 13 (2012).
8. W. O. Saxton, *Ultramicroscopy*, **55**, 171 (1994).
9. 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).
11. 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).
18. T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu, and T. Ikuta, *Ultramicroscopy*, **54**, 261 (1994).
19. Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, **48**, 873 (1999).
20. 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, *Ultramicroscopy*, **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

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。残収差の補正を行うには、残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 $\mathbf{g}_{3D} = (u, v, w)$ 、電子波の波数ベクトルを $\mathbf{k}_{3D} = (k_x, k_y, k_z)$ と表す。光軸に対して垂直に電子波が入射する場合、 $\mathbf{k}_{3D} = (0, 0, 1/\lambda)$ である。また $\mathbf{k}_{2D} = (k_x, k_y)$ 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。

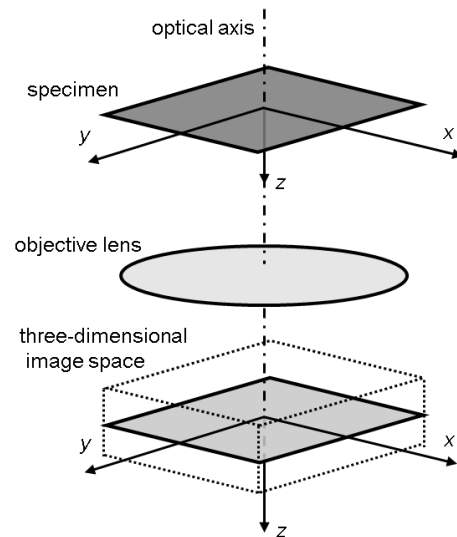


図2-1 三次元結像理論で扱う光学系の模式図。

$$\psi_0(\mathbf{r}_{3D}) = A \cdot \exp\{i2\pi(\mathbf{k}_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D})\} \quad (2.1)$$

式(1.1)で示した試料の複素透過関数 $h(\mathbf{r}_{2D})$ 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。

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

ここで $\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}$ 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。

$$|\mathbf{k}_{3D}| = |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}| \quad (2.3)$$

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。

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

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。

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

ただし $\gamma(\mathbf{g}_{2D}) = \gamma_{\text{sym}}(\mathbf{g}_{2D}) + \gamma_{\text{anti-sym}}(\mathbf{g}_{2D})$ 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。

$$\begin{aligned}
 i(\mathbf{r}_{3D}) &= \psi_i(\mathbf{r}_{3D}) \cdot \psi_i^*(\mathbf{r}_{3D}) \\
 &= i_{background}(\mathbf{r}_{3D}) + i_{linear}(\mathbf{r}_{3D}) + i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D})
 \end{aligned} \tag{2.6}$$

ここで $i_{background}(\mathbf{r}_{3D})$, $i_{linear}(\mathbf{r}_{3D})$, $i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D})$ 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].

$$i_{background}(\mathbf{r}_{3D}) = A^2 |H(0, 0)|^2 \tag{2.7}$$

$$\begin{aligned}
 i_{linear}(\mathbf{r}_{3D}) &\cong A^2 |H(0, 0)| \int_{\mathbf{g}_{3D} \neq 0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^*(\mathbf{g}_{2D}) \\
 &\quad \cdot \exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot \exp(-i2\pi\mathbf{g}_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) d\mathbf{g}_{3D} \\
 &\quad + A^2 |H(0, 0)| \int_{\mathbf{g}_{3D} \neq 0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \\
 &\quad \cdot \exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi\mathbf{g}_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) d\mathbf{g}_{3D}
 \end{aligned} \tag{2.8}$$

$$\begin{aligned}
 i_{non-linear}(\mathbf{r}_{3D}) &= A^2 \int_{\mathbf{g}_{3D} \neq 0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^*(\mathbf{g}_{2D}) \\
 &\quad \cdot \exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot \exp(-i2\pi\mathbf{g}_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) d\mathbf{g}_{3D} \\
 &\quad \cdot \int_{\mathbf{g}_{3D} \neq 0} \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \\
 &\quad \cdot \exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \cdot \exp(i2\pi\mathbf{g}_{3D} \cdot \mathbf{r}_{3D}) d\mathbf{g}_{3D}
 \end{aligned} \tag{2.9}$$

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.

$$\begin{aligned}
 I_{linear}(\mathbf{g}_{3D}) = & A^2 |H(0,0)| \\
 & \cdot [\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} - \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^*(-\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} - \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\} \\
 & + \delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\}]
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

$$\begin{aligned}
 I_{non-linear}(\mathbf{g}_{3D}) = & A^2 [\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} - \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H^*(-\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{-i\gamma(\mathbf{k}_{2D} - \mathbf{g}_{2D}) + i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\}] \\
 & \otimes [\delta(|\mathbf{k}_{3D}| - |\mathbf{k}_{3D} + \mathbf{g}_{3D}|) \cdot H(\mathbf{g}_{2D}) \cdot \exp\{i\gamma(\mathbf{k}_{2D} + \mathbf{g}_{2D}) - i\gamma(\mathbf{k}_{2D})\}]
 \end{aligned} \tag{2.11}$$

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。

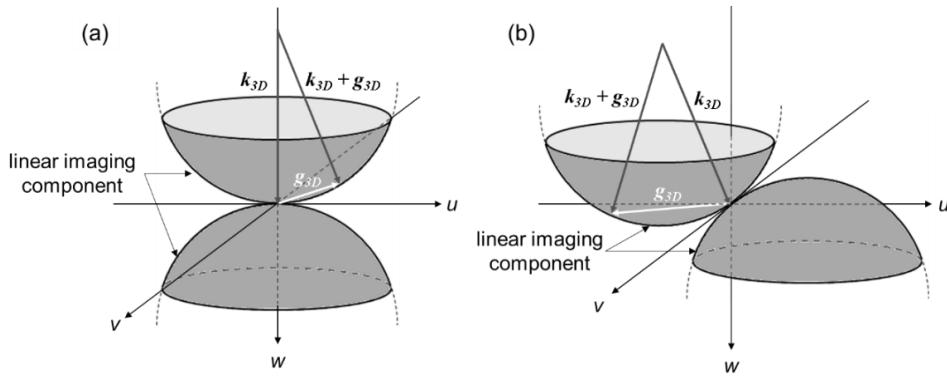


図 2-2 三次元フーリエ空間における線形結像成分の分布。(a) 軸上照明下。(b) 傾斜照明下。

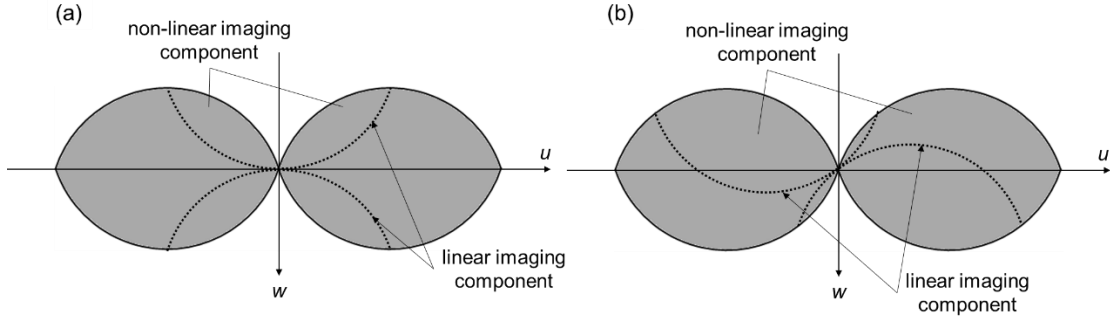


図 2-3 三次元フーリエ空間の uw 断面における線形結像成分と非線形結像成分の分布. (a) 軸上照明下. (b) 傾斜照明下.

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．

$$|\mathbf{g}_{2D}|^2 - 2kw \approx 0 \quad (2.12)$$

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．

$$\begin{aligned} I_{linear}(\mathbf{g}_{3D}) = & A^2 |H(0,0)| \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \\ & \cdot [\delta(|\mathbf{g}_{2D}|^2 - 2k_z w) \cdot \{H_r(\mathbf{g}_{2D}) - iH_i(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \exp\{-i\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \\ & + \delta(|\mathbf{g}_{2D}|^2 + 2k_z w) \cdot \{H_r(\mathbf{g}_{2D}) + iH_i(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \exp\{i\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\}] \end{aligned} \quad (2.13)$$

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]。

$$W_R(z) = \int_0^\infty F(\rho(w)) \cdot \cos\{\gamma_{Cs}(\rho(w)) + 2\pi wz\} dw \quad (2.14)$$

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

ただし $F(|\mathbf{g}_{2D}|)$ は実現したいコントラスト伝達関数、 $\rho(w)$ は w から $|\mathbf{g}_{2D}|$ への変換関数、 $\gamma_{Cs}(\mathbf{g}_{2D})$ 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。

$$\gamma_{Cs}(\mathbf{g}_{2D}) = -\frac{\pi}{2} \lambda^3 C_s |\mathbf{g}_{2D}|^4 \quad (2.16)$$

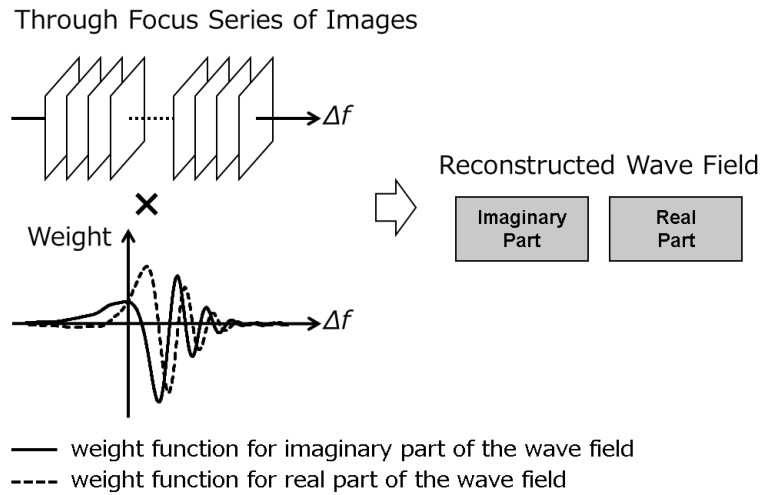


図 2-4 焦点位置変調法における処理の模式図。

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。

$$\begin{pmatrix} I_r(\mathbf{g}_{2D}) \\ I_i(\mathbf{g}_{2D}) \end{pmatrix} = A^2 |H(0,0)| \cdot \exp\{i\gamma_{anti-sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \cdot \begin{pmatrix} \cos\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\} & -\sin\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \\ \sin\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\} & \cos\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_r(\mathbf{g}_{2D}) \\ H_i(\mathbf{g}_{2D}) \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

ここで、 $I_r(\mathbf{g}_{2D})$ 、 $I_i(\mathbf{g}_{2D})$ 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 $H_r(\mathbf{g}_{2D})$ 、 $H_i(\mathbf{g}_{2D})$ 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 $\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D})$ 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．

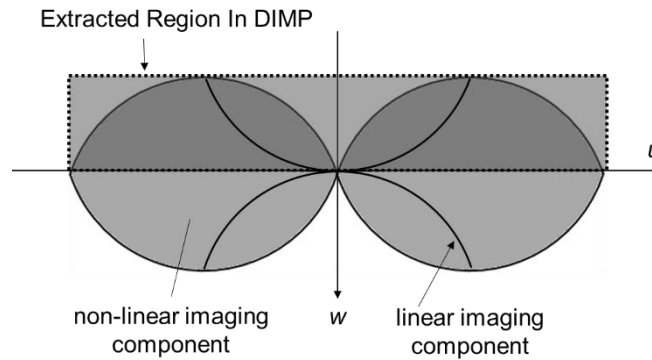


図 2-5 焦点位置変調法によって抽出される領域.

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．

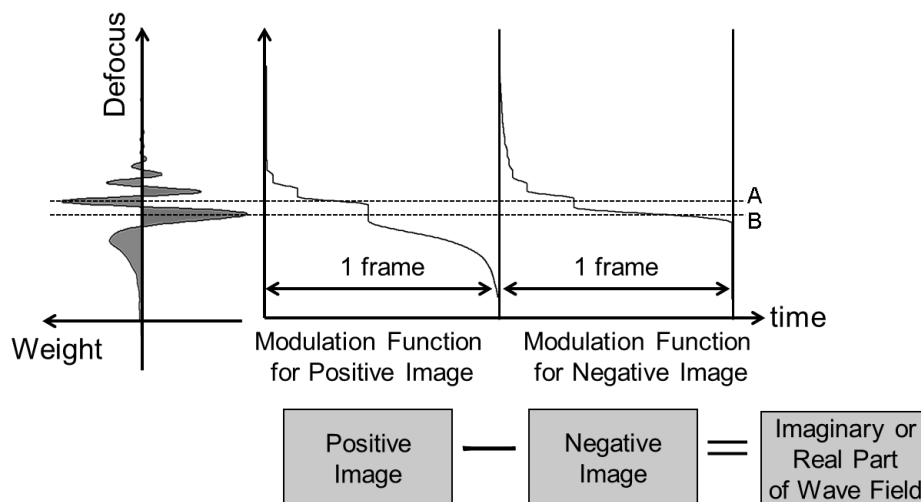


図 2-6 フォーカス変調を用いた滞在時間方式による重み付き積分と波動場再構成．

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．

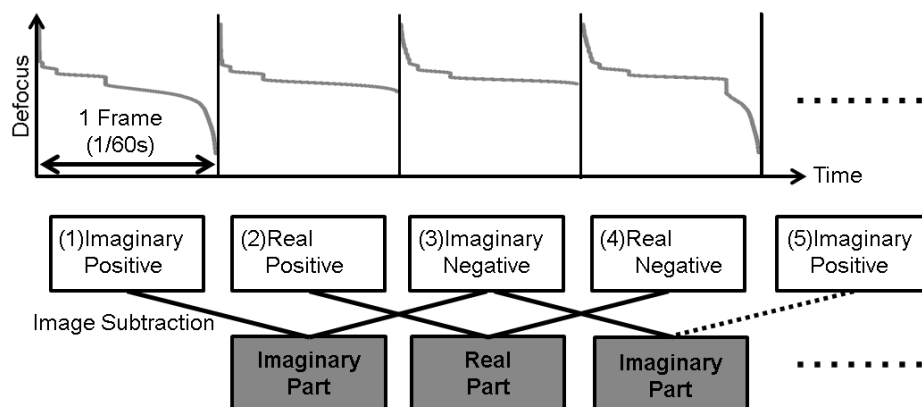


図 2-7 実時間焦点位置変調法における処理の模式図．

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]．

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

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

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

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

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．

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

$$W_{I+}(z) = \begin{cases} W_I(z) & (z \geq 0) \\ 0 & (z < 0) \end{cases}, \quad W_{I-}(z) = \begin{cases} 0 & (z \geq 0) \\ W_I(z) & (z < 0) \end{cases} \quad (2.23)$$

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).
7. T. Ando, Y. Taniguchi, Y. Takai, Y. Kimura, R. Shimizu, and T. Ikuta, *Ultramicroscopy*, **54**, 261 (1994).
8. Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato, and M. Ichihashi, *J. Electron Microsc.*, **48**, 873 (1999).
9. 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 $\gamma_{\Delta f}(\mathbf{g}_{2D})$, $\gamma_{A1}(\mathbf{g}_{2D})$, $\gamma_{B2}(\mathbf{g}_{2D})$, $\gamma_{A2}(\mathbf{g}_{2D})$ は以下のように表される[1-3]。

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

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

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

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

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_{A2} , θ_{A2} 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 $\mathbf{g}_{2D}$ 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 $h_r(\mathbf{r}_{2D})$ は電子波の吸収、虚部成分 $h_i(\mathbf{r}_{2D})$ は電子波の位相変化に相当し、以下の関係式が成り立つ。

$$|h_r(\mathbf{r}_{2D})| \ll |h_i(\mathbf{r}_{2D})| \quad (3.5)$$

$$|H_r(\mathbf{g}_{2D})| \ll |H_i(\mathbf{g}_{2D})| \quad (3.6)$$

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 $I_r(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$, $I_i(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$ 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。

$$\begin{pmatrix} I_r(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f - \Delta f'', C_a - C_a'', \theta_a - \theta_a'') \\ I_i(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f - \Delta f'', C_a - C_a'', \theta_a - \theta_a'') \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}, -\Delta f'', -C_a'', -\theta_a'')\} & -\sin\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}, -\Delta f'', -C_a'', -\theta_a'')\} \\ \sin\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}, -\Delta f'', -C_a'', -\theta_a'')\} & \cos\{\gamma_{sym}(\mathbf{g}_{2D}, -\Delta f'', -C_a'', -\theta_a'')\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_r(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a) \\ I_i(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a) \end{pmatrix} \quad (3.7)$$

式(3.7)は再構成波動場 $I_r(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$, $I_i(\mathbf{g}_{2D}, \Delta f, C_a, \theta_a)$ 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。

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

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 ダイア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 ダイアグラムを計算した。Thon ダイア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 ダイア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。

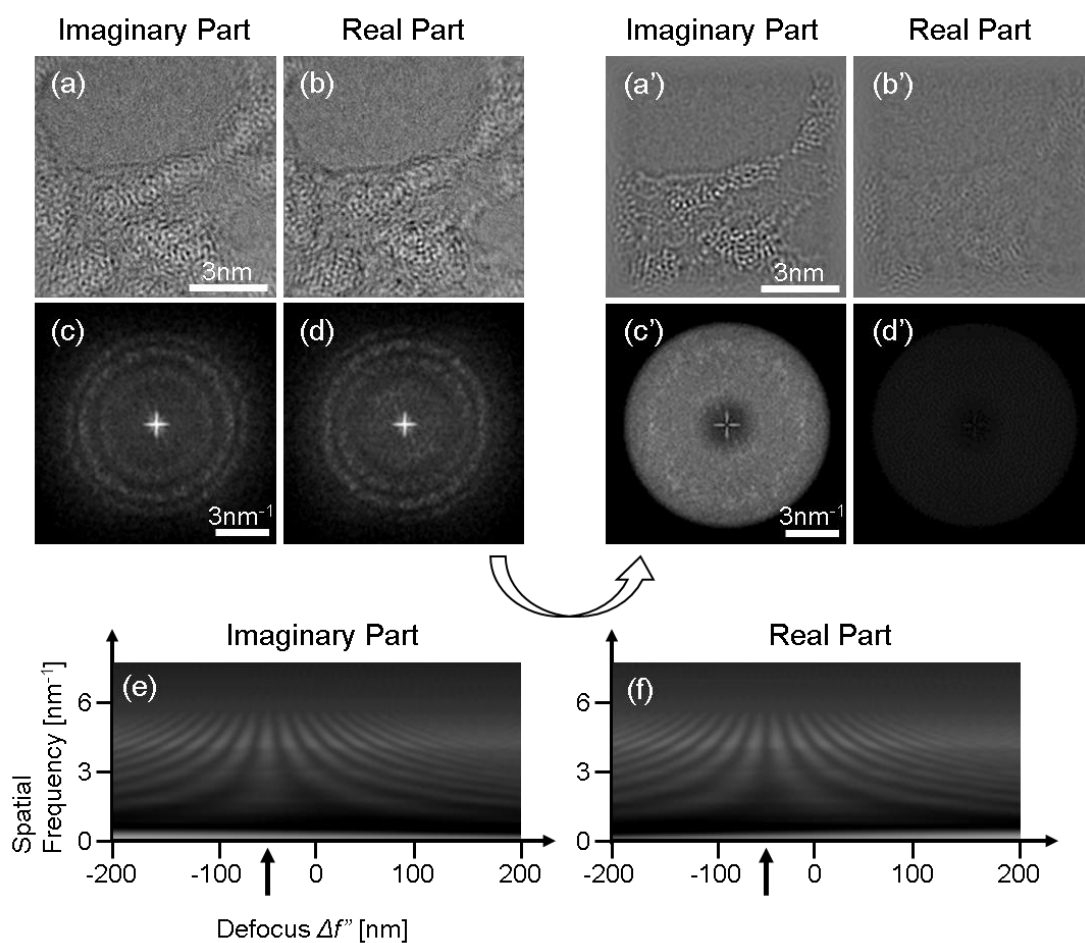


図 3-1 デフォーカスの計測と補正の原理確認結果。(a)-(d) 再構成した波動場の虚部成分と実部成分とそのパワースペクトル。(e), (f) 再構成波動場(a), (b)から計算した虚部成分と実部成分の Thon ダイアグラム。(a')-(d') デフォーカス補正後の再構成波動場とそのパワースペクトル。

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]．

$$\begin{aligned}\gamma'_a(\mathbf{g}_{2D}) &= \pi\lambda C'_a \cos\{2(\theta - \theta'_a)\} |\mathbf{g}_{2D}|^2 \\ &= \pi\lambda \text{Re}\{\mathbf{A}'_1 \tilde{\mathbf{g}}_{2D}^{*2}\}\end{aligned}\quad (3.9)$$

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, $\mathbf{A}'_1 = C'_a e^{i2\theta'_a}$, $\tilde{\mathbf{g}}_{2D} = u + iv$ である．また $\text{Re}\{z\}$ 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 $\mathbf{k}_{2D}$ を複素形式で $\tilde{\mathbf{k}}_{2D}$ 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]．

$$\mathbf{A}'_1 = \mathbf{A}_1 + 2\lambda \mathbf{A}_2 \tilde{\mathbf{k}}_{2D}^* + \frac{2}{3} \lambda \mathbf{B}_2 \tilde{\mathbf{k}}_{2D} + \lambda^2 C_s \tilde{\mathbf{k}}_{2D}^2 \quad (3.10)$$

ここで $\mathbf{A}_1$, $\mathbf{A}_2$, $\mathbf{B}_2$ 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、 $\mathbf{A}_1 = C_a e^{i2\theta_a}$, $\mathbf{A}_2 = C_{A_2} e^{i3\theta_{A_2}}$, $\mathbf{B}_2 = C_{B_2} e^{i\theta_{B_2}}$ 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。

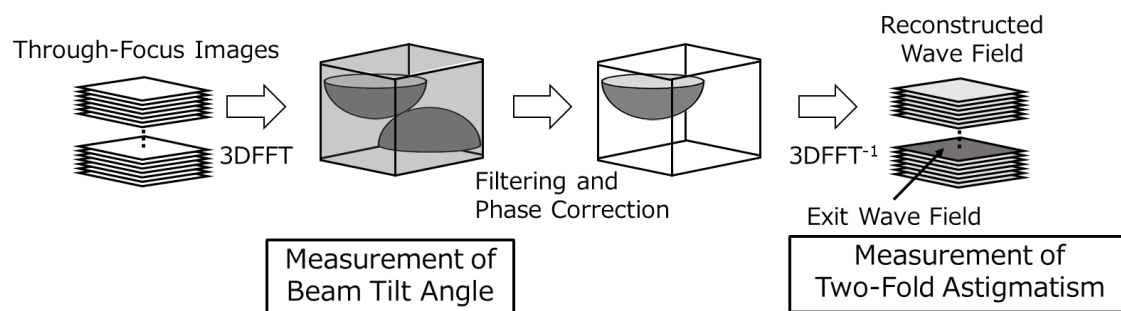


図 3-2 3DFFM を用いたビームの傾斜角と二回非点収差量の計測手順。

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。

1. 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。
2. 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。

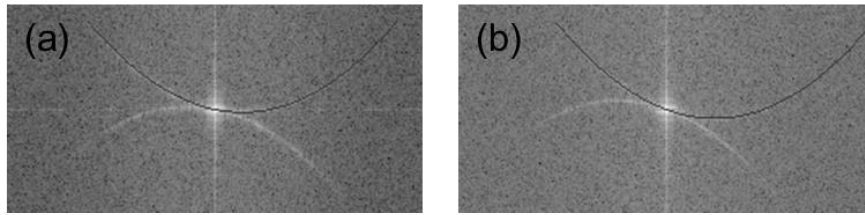


図 3-3 三次元パワースペクトルの断面像と計測した傾斜角を用いて計算したエバルト球. (a) uw 断面. (b) vw 断面.

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。

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。

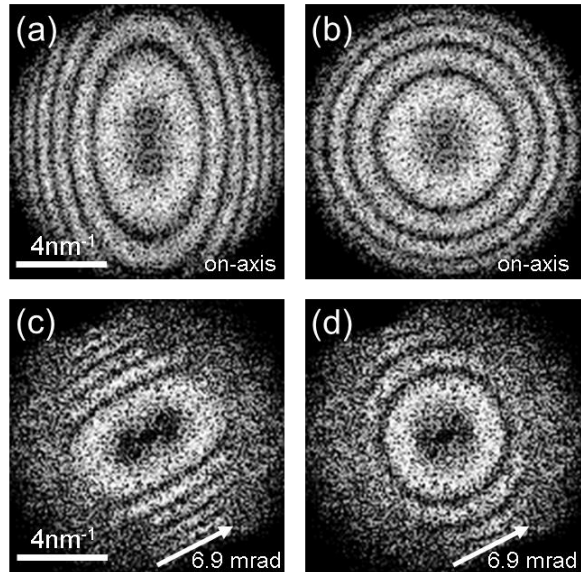


図 3-4 (a), (b) 軸上照明下で二回非点収差を補正する前後のパワースペクトル. (c), (d) 傾斜照明下で二回非点収差を補正する前後のパワースペクトル.

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 $C_{B2} = 1809 \text{ nm}$, $\theta_{B2} = 336^\circ$, $C_{A2} = 285 \text{ nm}$, $\theta_{A2} = 42^\circ$ 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 $\pm 230 \text{ nm}$, $\pm 77 \text{ nm}$ 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。

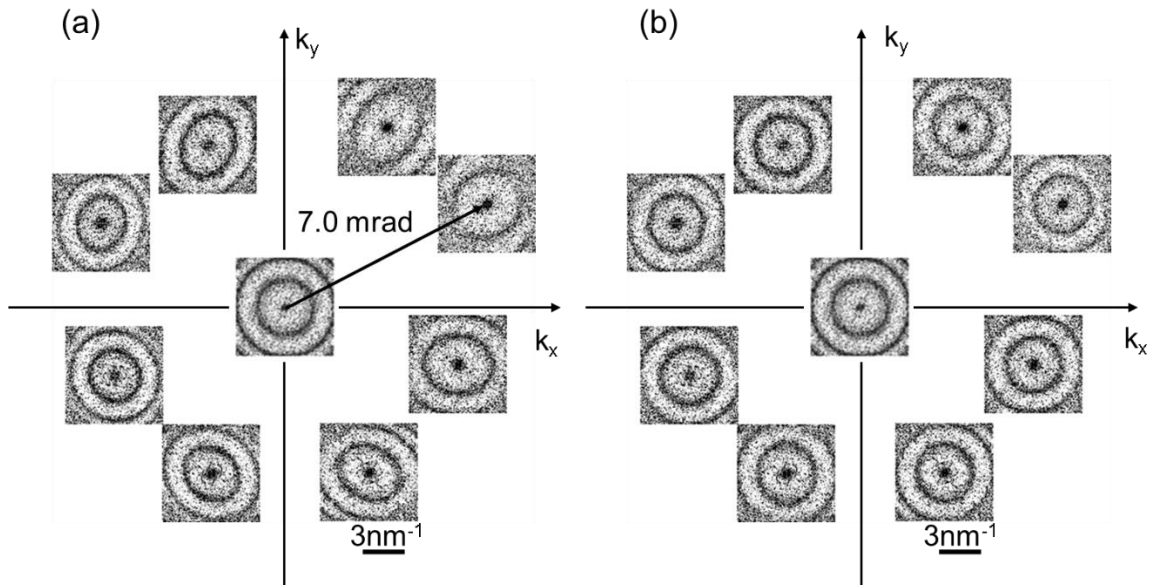


図 3-5 (a) 軸上二回非点収差，球面収差，球面収差によって誘起される見かけの二回非点収差を補正した後のディフラクトグラムタブロー．(b) (a)に対してコマ収差と三回非点収差によって誘起される見かけの二回非点収差を補正した後のディフラクトグラムタブロー．

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arbon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arbon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。

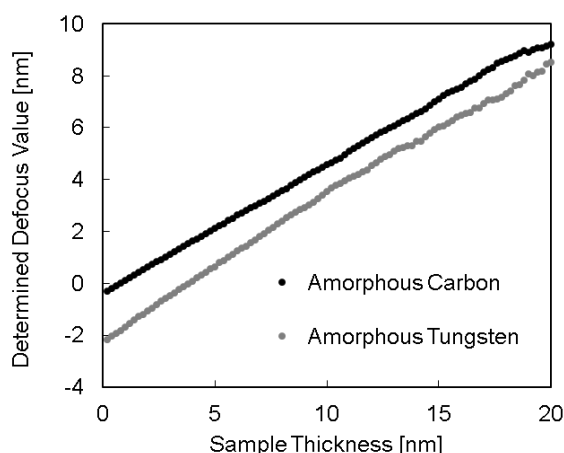


図 3-6 膜厚と実部成分のコントラストが最小となるフォーカス位置との関係。

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混在しているため、パワースペクトルの uw 断面にはエバルト球対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．

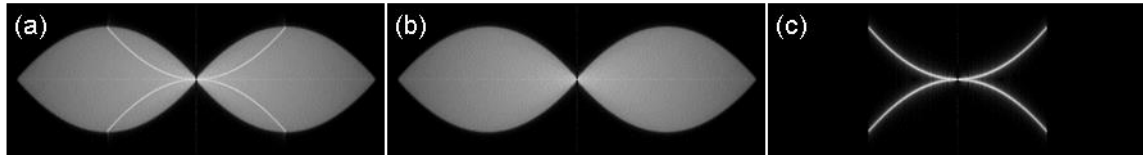


図 3-7 (a) 通常のスルーフォーカスシリーズの三次元パワースペクトル．

(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．

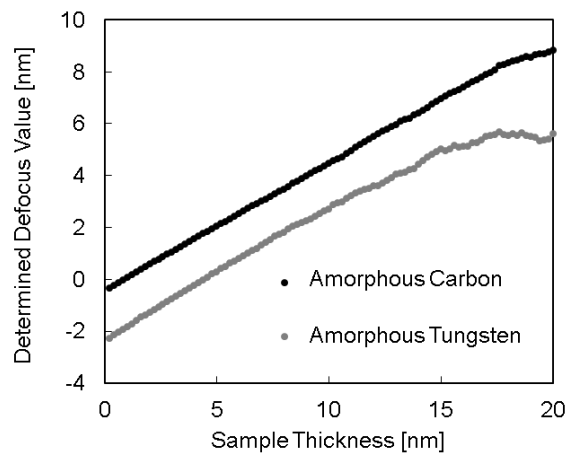


図 3-8 膜厚と実部成分のコントラストが最小となるフォーカス位置との関係．

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).
7. 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。

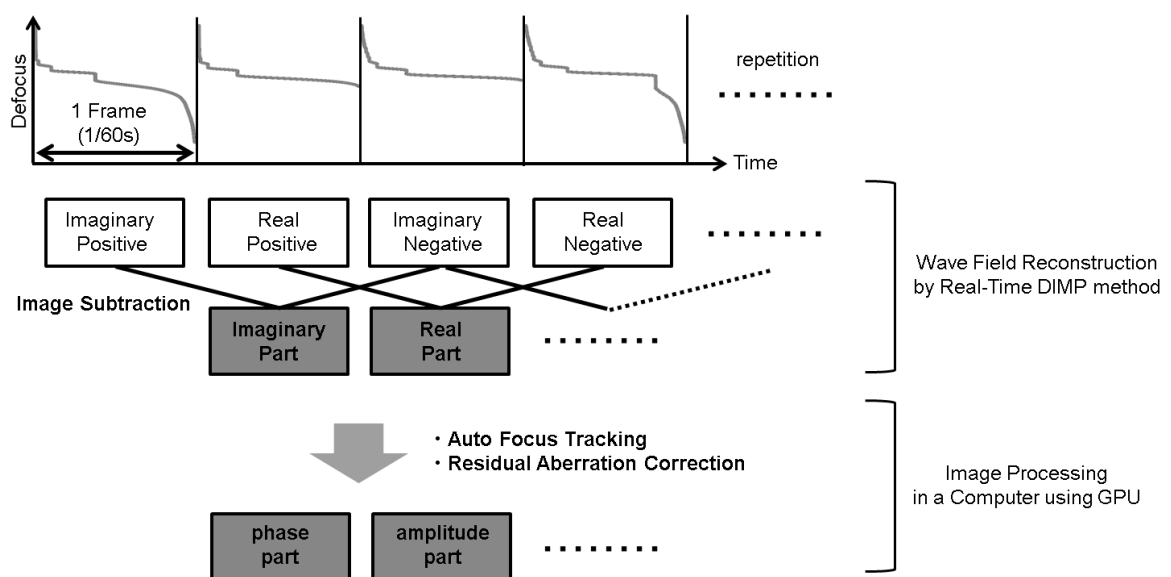


図 4-1 実時間波動場再構成 TEM システムにおける処理の模式図。

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．

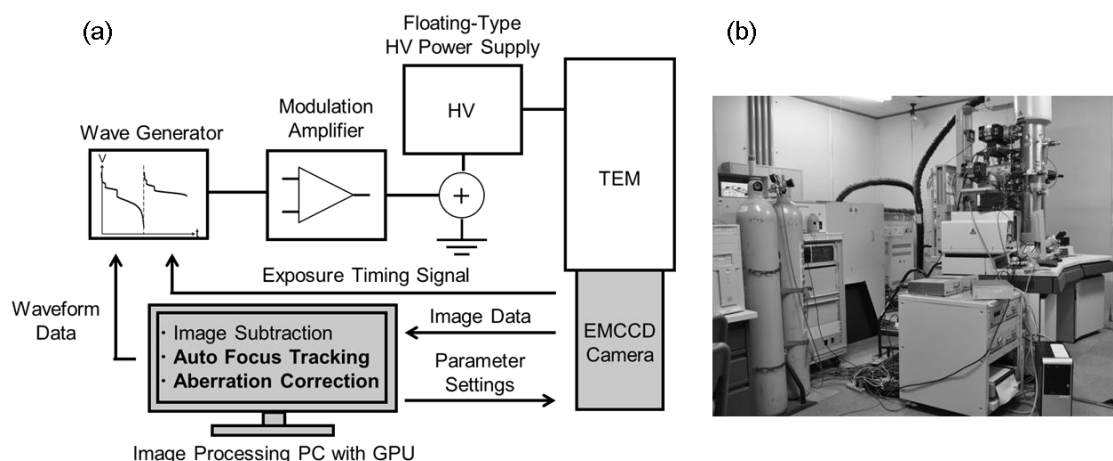


図 4-2 (a) 実時間波動場再構成 TEM システム模式図．(b) システムの外観．

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．

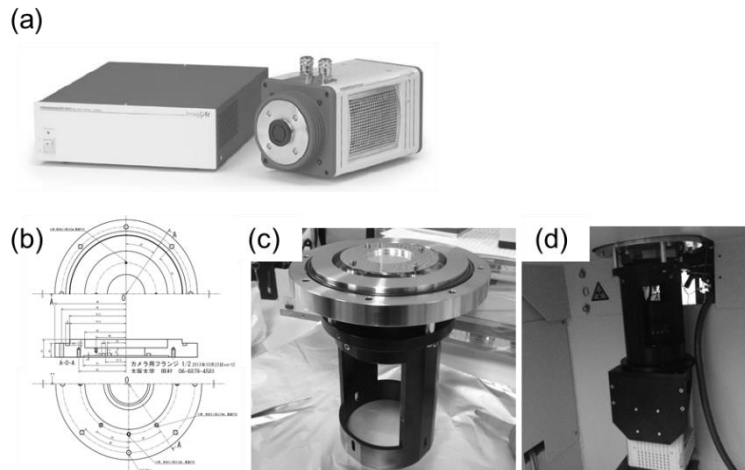


図4-3 (a) 使用した EMCCD カメラ. (b) カメラ取り付けフランジの設計図.
(b) 作成したフランジ. (d) カメラを TEM に取り付けた様子.

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.

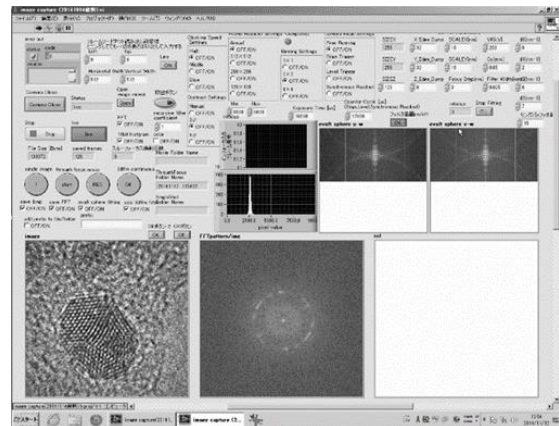


図4-4 関数発生器とカメラ制御ソフトの GUI.

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.

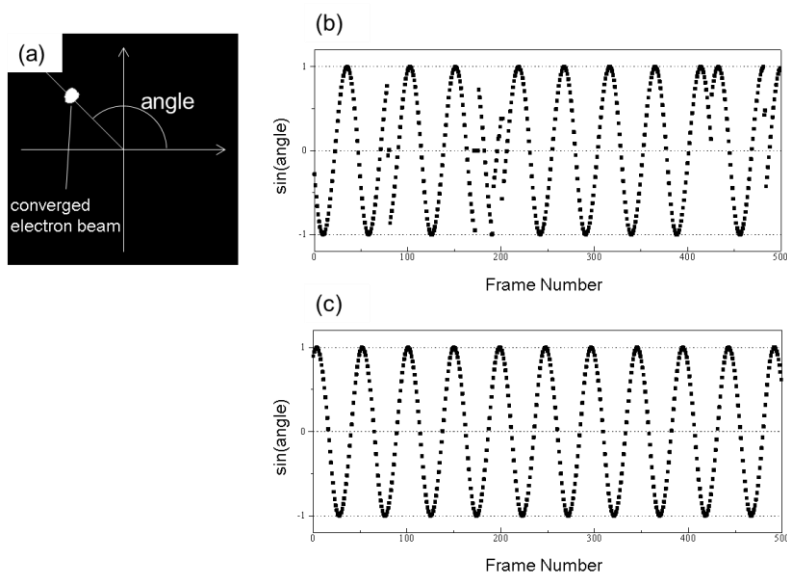


図 4-5 (a) 収束電子線の撮影像. (b) コマ落ちがあるときのプロット. (c) コマ落ちがない時のプロット.

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 $\exp(-t/\tau)$ 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.

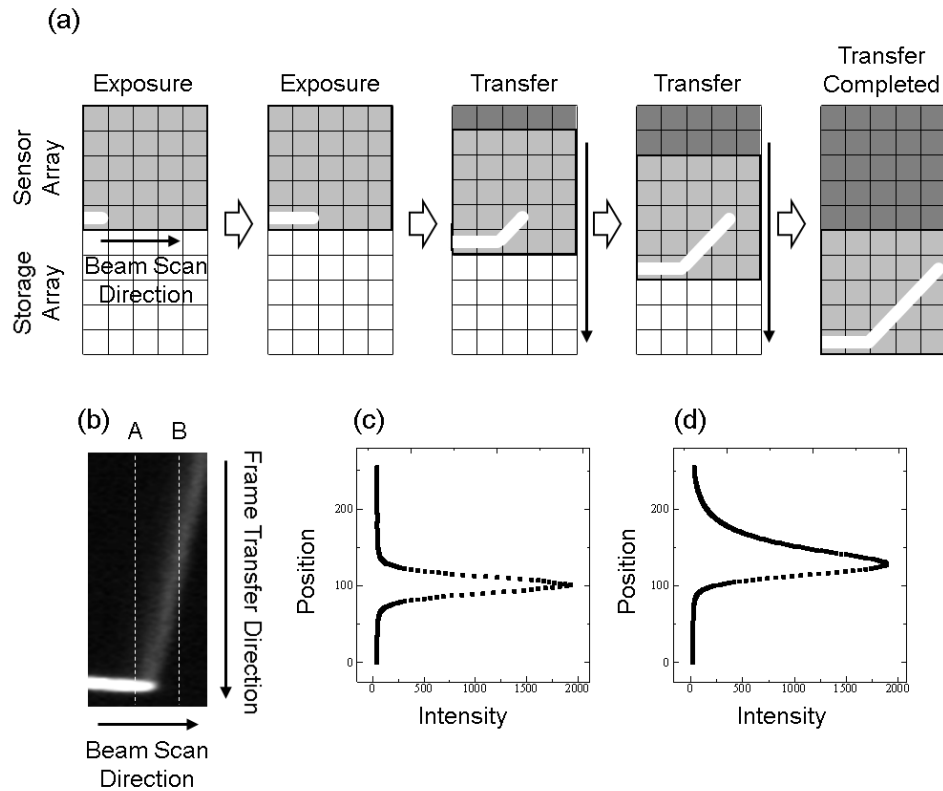


図 4-6 (a) CCD カメラを用いたシンチレータの残光時定数の計測方法の模式図. (b) 撮影像. (c), (d) 点線 A, B における強度プロファイル.

4.4. 空間分解能の評価

次に Thon ダイアグラム[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 ダイアグラムを示している. 図 4-7(a)では球面収差の影響で Thon ダイア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 ダイアグラムから通常の 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 ダイア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 ダイア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 ダイア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.

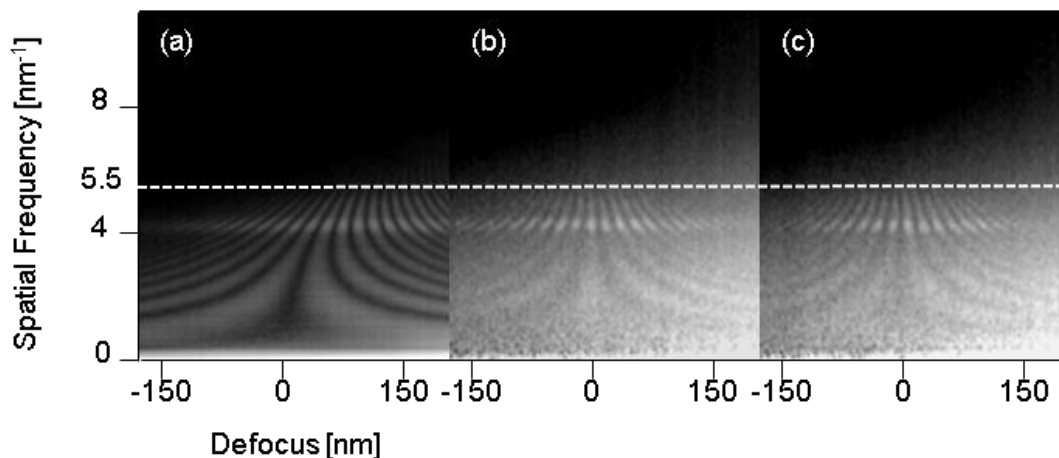


図 4-7 (a) 通常のスルーフォーカスシリーズから作成した Thon ダイアグラム。
(b), (c) 波動場の虚部成分と実部成分のスルーフォーカスシリーズから作成した Thon
ダイアグラム。

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 $\Delta f = 19.5$ nm, $C_a = 16.1$ nm, $\theta_a = 62.0^\circ$ ($t = 0$ s), $\Delta f = 18.7$ nm, $C_a = 17.6$ nm, $\theta_a = 13.8^\circ$ ($t = 5$ s), $\Delta f = 18.0$ nm, $C_a = 31.9$ nm, $\theta_a = 113.0^\circ$ ($t = 35$ s) であった．

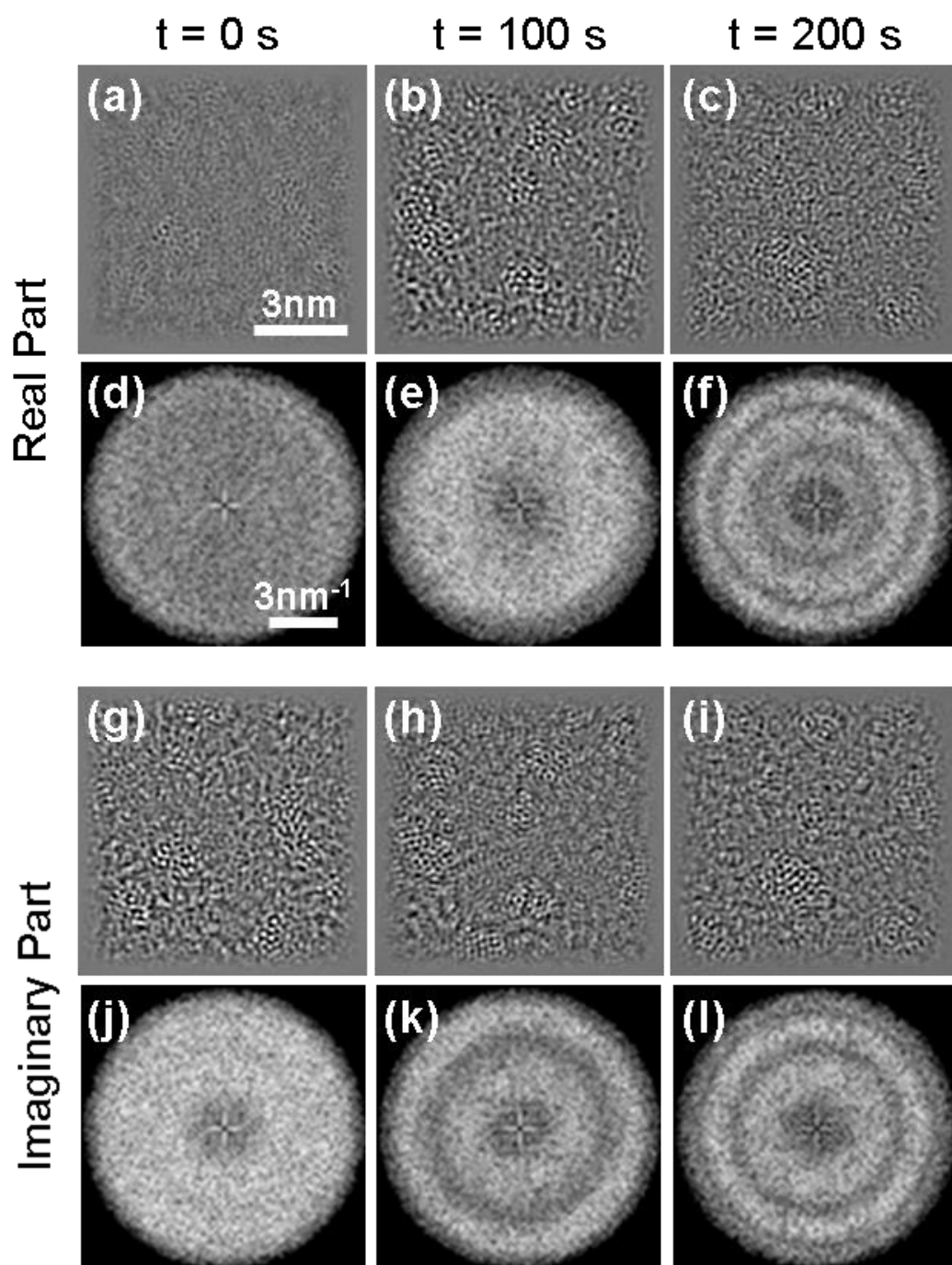


図 4-8 デフォーカスを実時間で補正する前の再構成波動場とそのパワースペクトル.

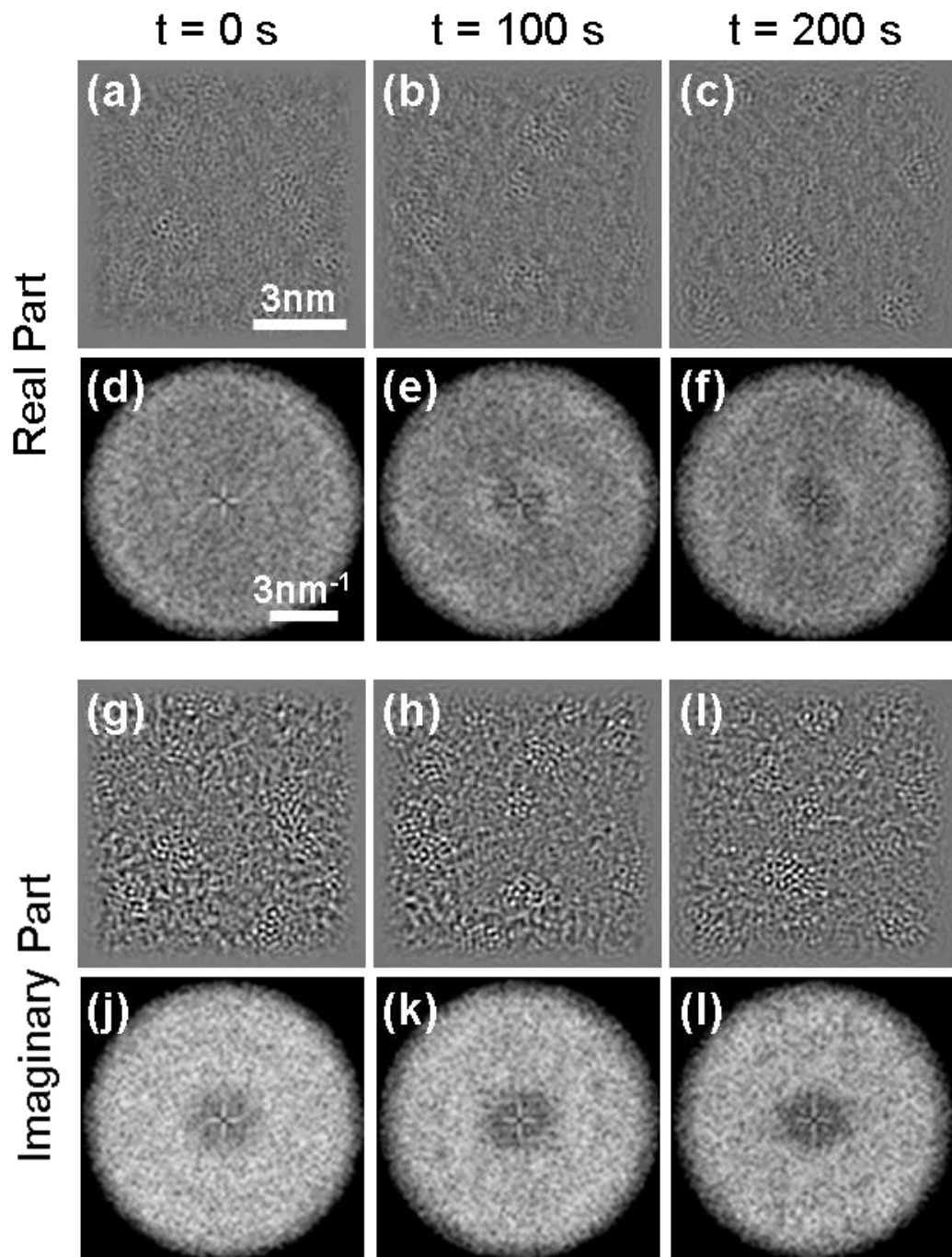


図 4-9 デフォーカスを実時間で補正した後の再構成波動場とそのパワースペクトル.

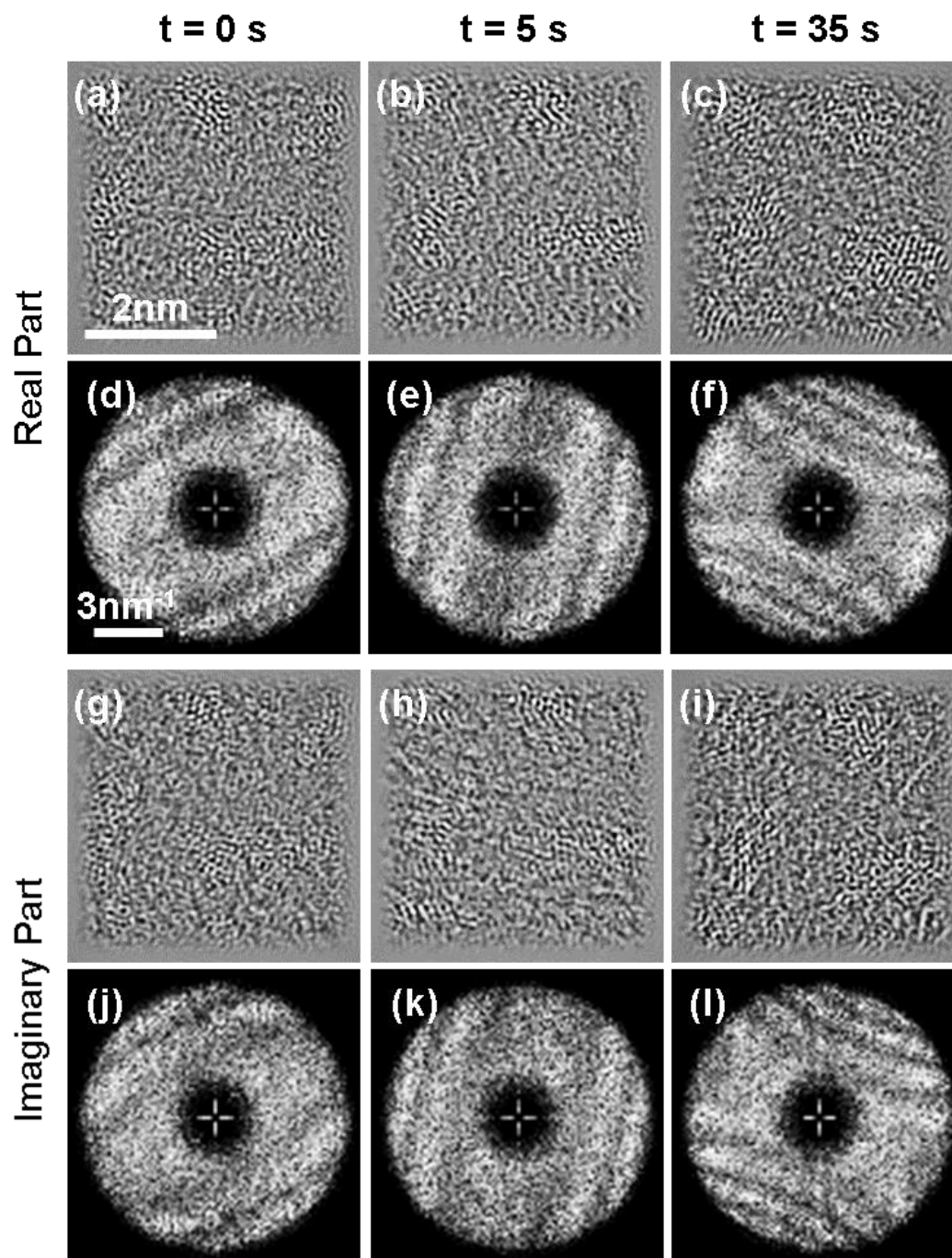


図 4-10 デフォーカスと二回非点収差を実時間で補正する前の再構成波動場とそのパワースペクトル。

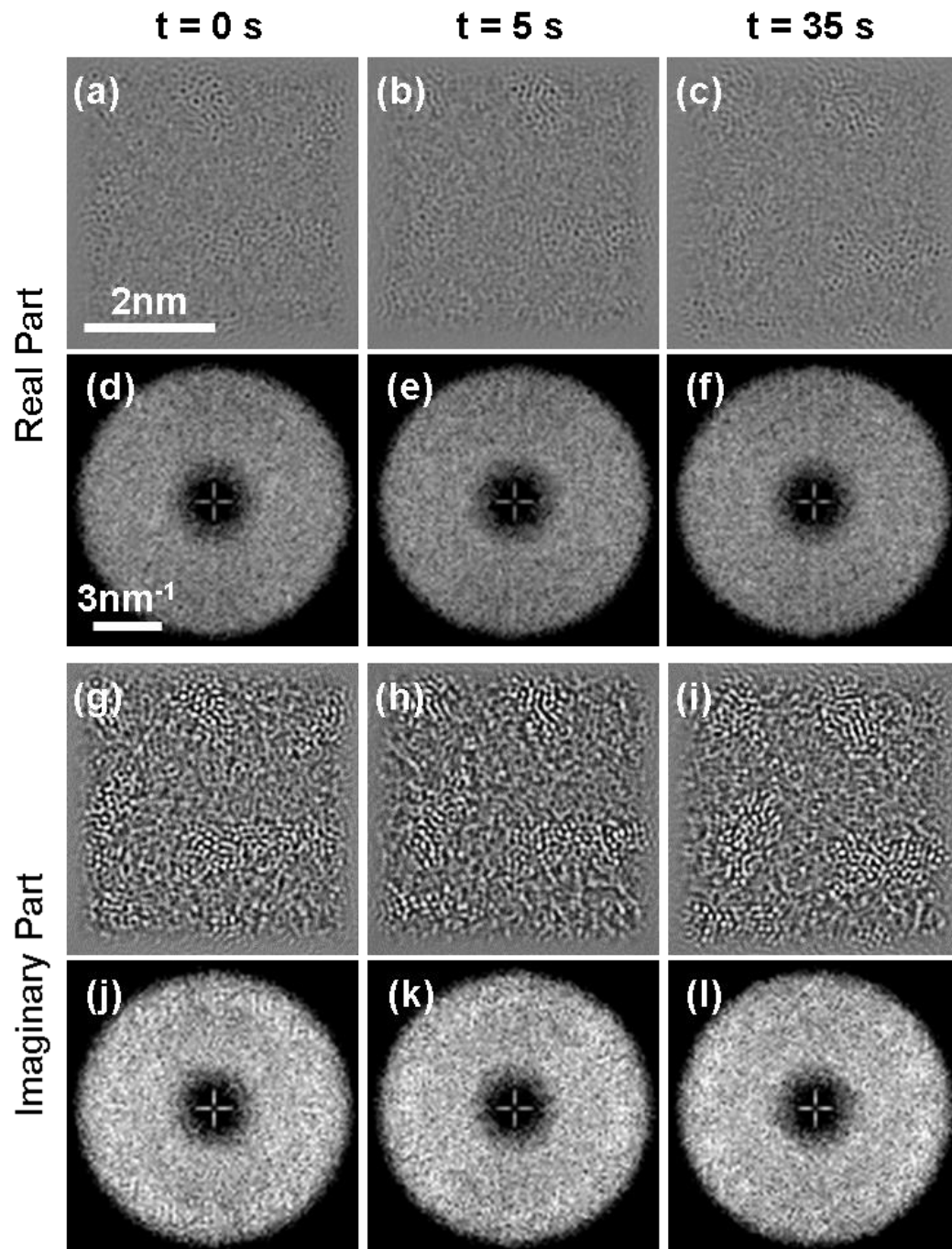


図 4-11 デフォーカスと二回非点収差を実時間で補正した後の再構成波動場とそのパワースペクトル。

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ことを確認した。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。 $t = 0.0 \text{ s}$ 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、 $t = 5.9 \text{ s}$, $t = 7.0 \text{ s}$ 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。

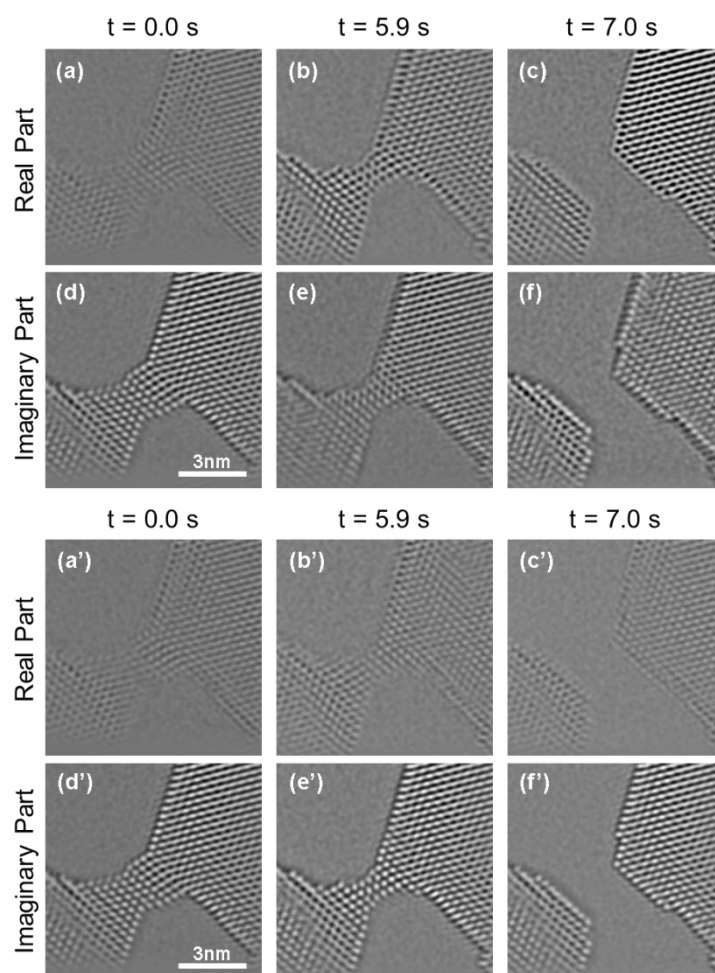


図 4-12 (a)-(f) デフォーカスの実時間での計測と補正を行う前の再構成波動場。

(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 $\pm 0.4 \text{ nm}$ 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 $\pm 2^\circ$ 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。

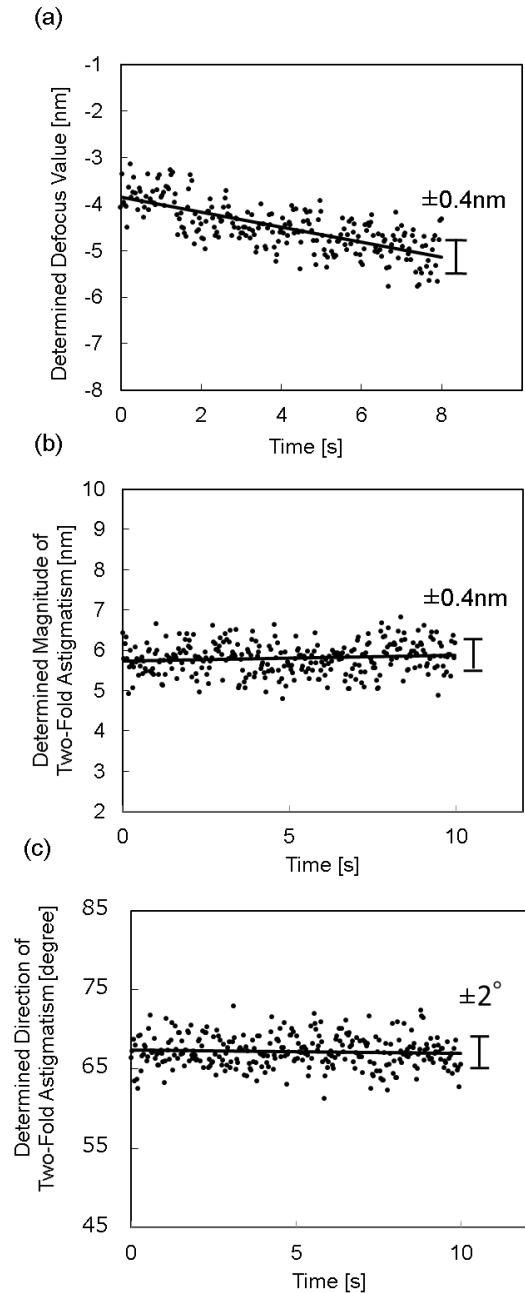


図 4-13 (a) 計測されたデフォーカス量の時間変化. (b), (c) 計測された二回非点収差の大きさと角度の時間変化.

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。

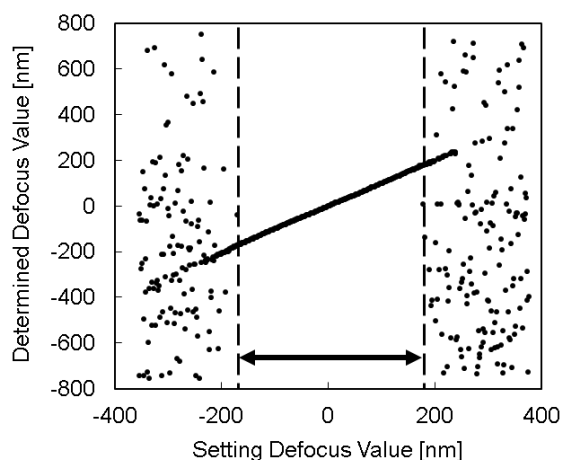


図 4-14 対物レンズ電流値で設定したデフォーカス量と計測されたデフォーカス量の関係。

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。

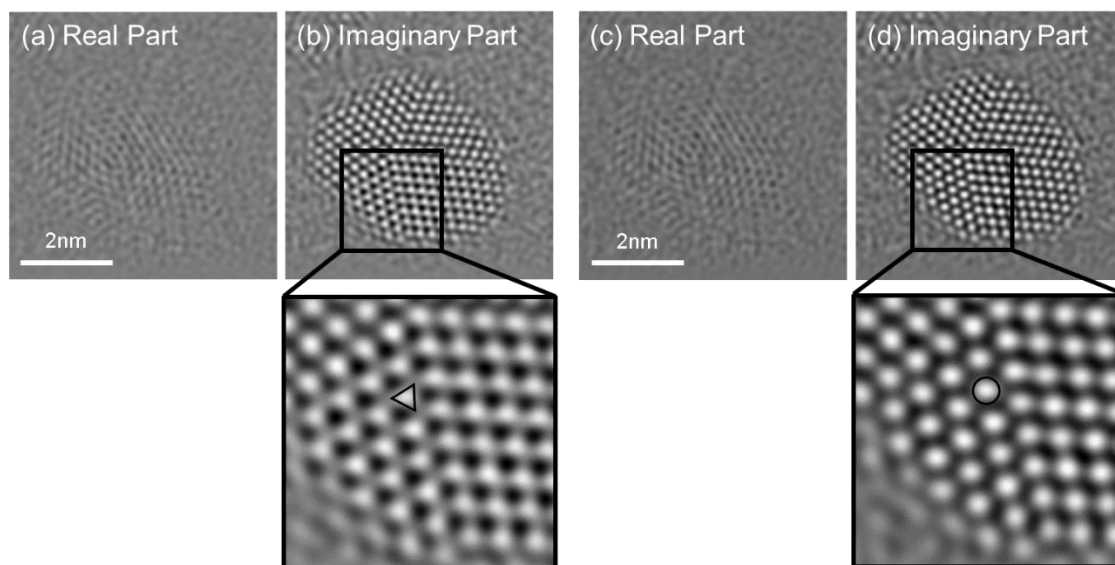


図 4-15 (a), (b) コマ収差と三回非点収差を実時間補正する前の再構成波動場。
(c), (d) コマ収差と三回非点収差を補正した後の再構成波動場。

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，実時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 $\pm 0.4 \text{ nm}$ 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

1. 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处理的に強調する

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处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]。

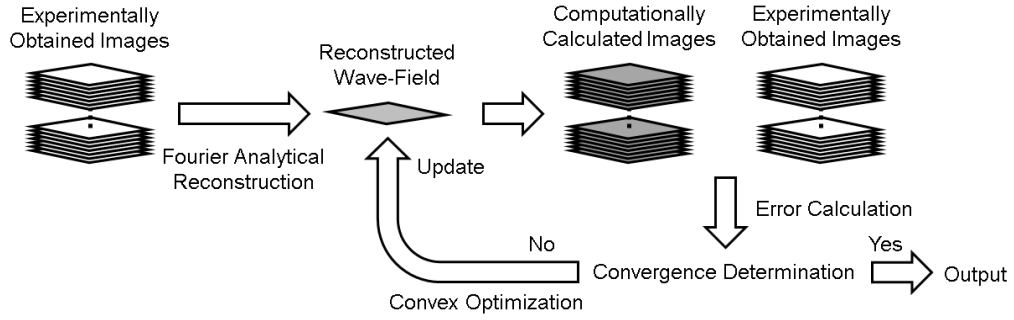


図 5-1 MAL 法における処理の模式図。

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 $\phi_{x,y}^{(j)}$ ($j = 0, 1, 2 \dots$) 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。

$$I'_{x,y,z}^{(j)}(\phi_{x,y}^{(j)}) = \left| \phi_{x,y}^{(j)} \otimes t_{x,y,z} \right|^2 \quad (5.1)$$

$t_{x,y,z}$ は各フォーカスにおける点広がり関数、 $\otimes$ 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。

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

$I_{x,y,z}$ 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。

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

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.

$$\begin{aligned} g_{x,y}^{(j)} &= \frac{\partial E^{(j)}(\phi_{x,y}^{(j)})}{\partial \phi_{x,y}^*} \\ &= -\frac{1}{N_z} \sum_z \left[\left\{ (I_{x,y,z} - I'_{x,y,z}(\phi_{x,y}^{(j)})) \cdot (\phi_{x,y}^{(j)} \otimes t_{x,y,z}) \right\} \otimes t_{x,y,z}^* / \sum_{x,y} I_{x,y,z} \right] \end{aligned} \quad (5.4)$$

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–Ribière 法を用いて探索方向を決定する[5].

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

上式において β は以下のように定義する.

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

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.

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

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 $2 \times N_z$ 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 $210\text{ }\mu\text{m}$ 、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。

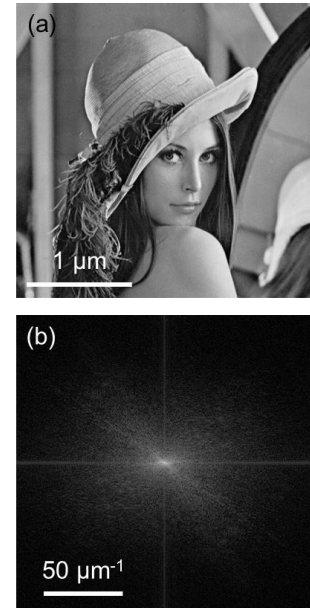


図5-2 (a) 仮定した位相分布.
(b) 位相分布のパワースペクトル.

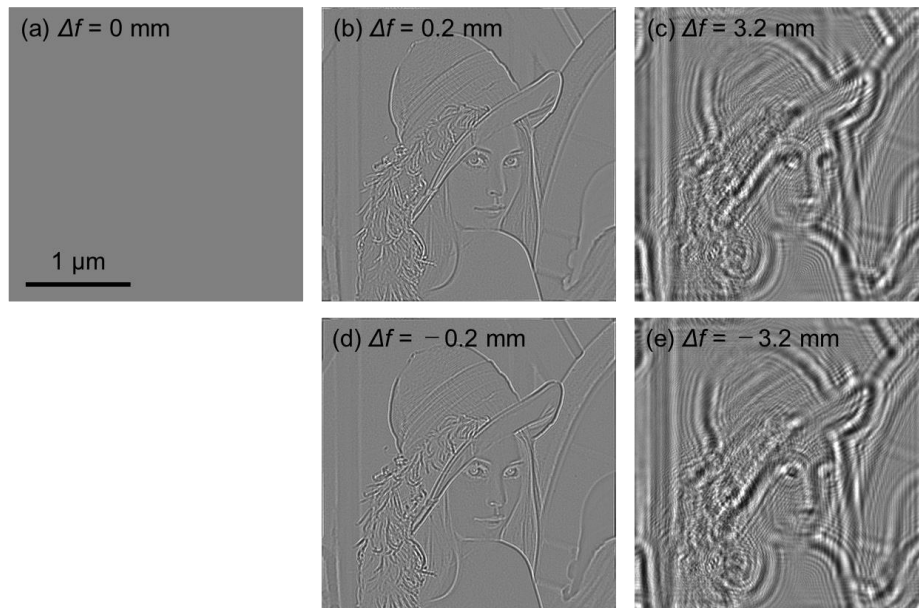


図5-3 計算したスルーフォーカスシリーズの一部.

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。

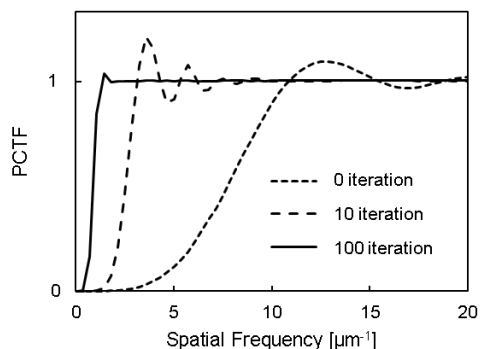


図 5-5 反復回数ごとの位相コントラスト伝達関数.

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ており [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 $I_n(\mathbf{r}_{2D})$ ($n=1, 2, \dots, N_z$), 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 $I_n(\mathbf{r}_{2D})$ 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。
4. 3 の結果に収差関数 $\exp\{i\gamma_n(\mathbf{g}_{2D})\}$ 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 $\mathbf{r}-\theta$ 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] の変形形であるため、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 N_z 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。

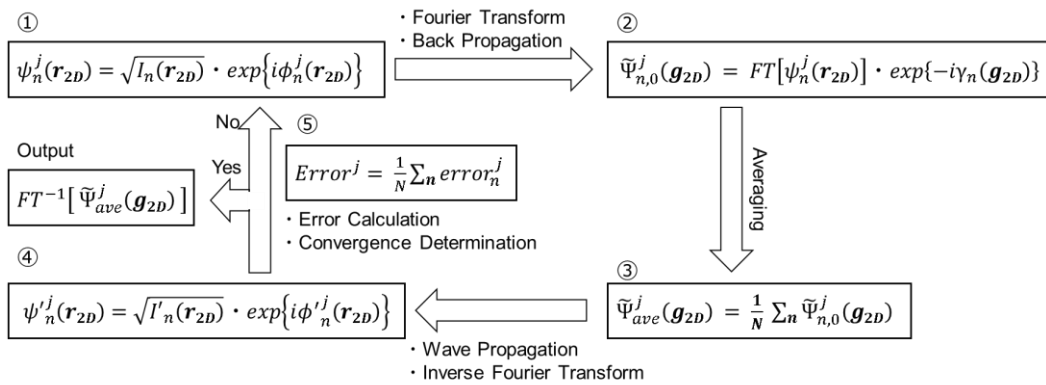


図 5-6 IWFR 法における処理の模式図.

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 法よりも反復一回あ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].

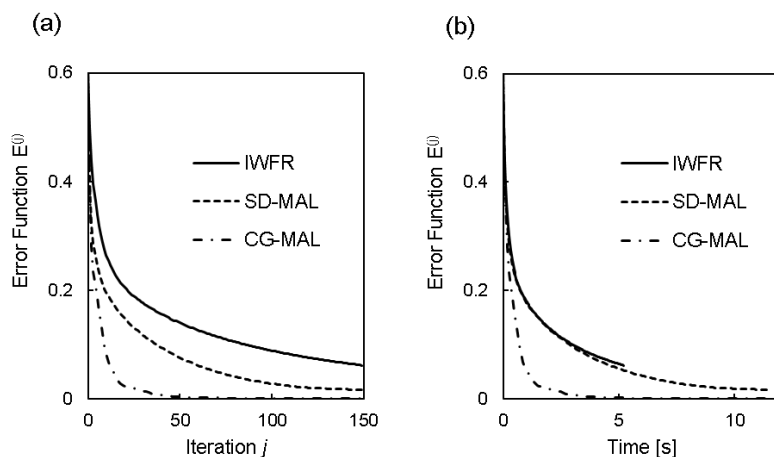


図 5-7 (a)IWFR, SD-MAL, CG-MAL 法の誤差の推移. (b)IWFR, SD-MAL, CG-MAL 法の誤差の時間変化.

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]．

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

$I(x, y, z)$, $\phi(x, y, z)$ 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．

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

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．

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

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．

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

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 $210\ \mu\text{m}$ 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 $3.2\ \text{mm}$ 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．

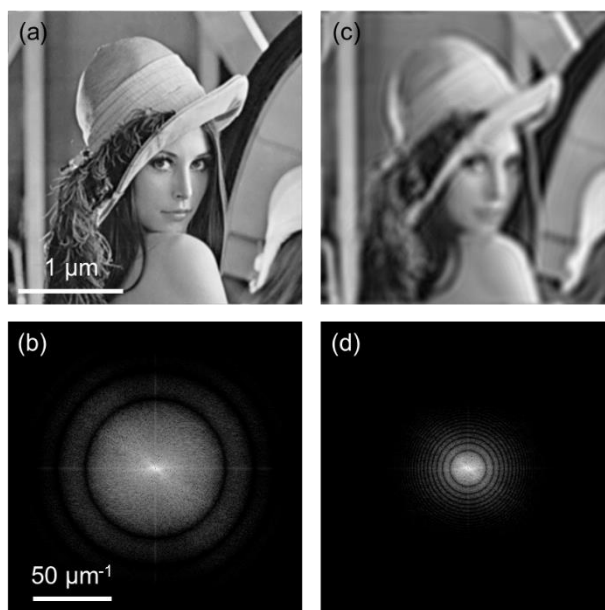


図 5-8 TIE 法を用いて再構成した位相分布とそのパワースペクトル．(a), (b) フォーカスステップ $210\ \mu\text{m}$ ．(c), (d) フォーカスステップ $3.2\ \text{mm}$ ．

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。

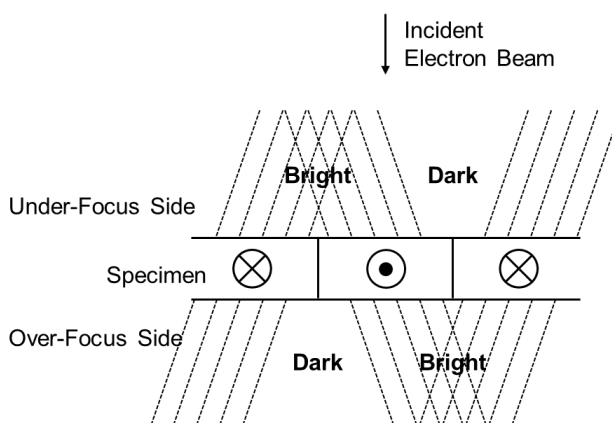


図6-1 LTEMにおけるフレネルモードの模式図。

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を観察と実像を観察ができる。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。

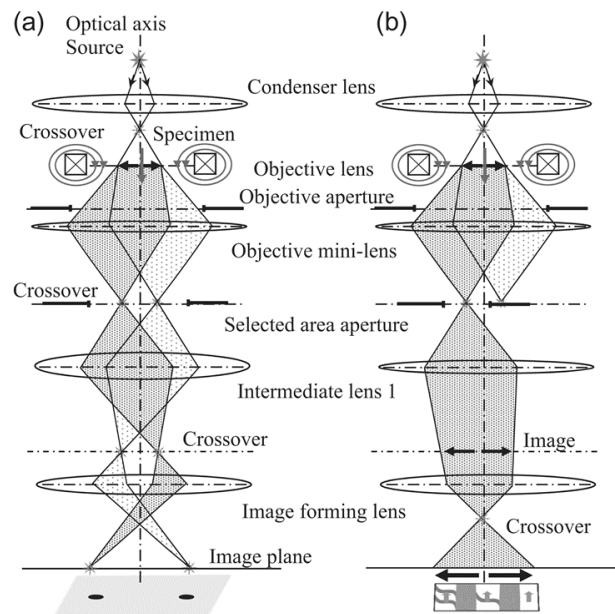


図 6-2 (a) 小角電子線回折パターンを観察するための光学系、(b) 実像を観察するための光学系[4]。

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트로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.

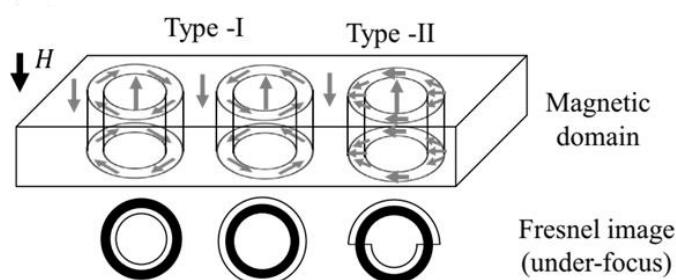


図 6-3 type-I 磁気バブルと type-II 磁気バブルの磁気構造とフレネルモードによって得られるコントラストの模式図[10].

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 $\text{BaFe}_{12-x}\text{Sc}_x\text{Mg}_{0.05}\text{O}_{19}$ ($x=1.6$) 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 型ヘキサフェライトを 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, -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^-/nm^2 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].

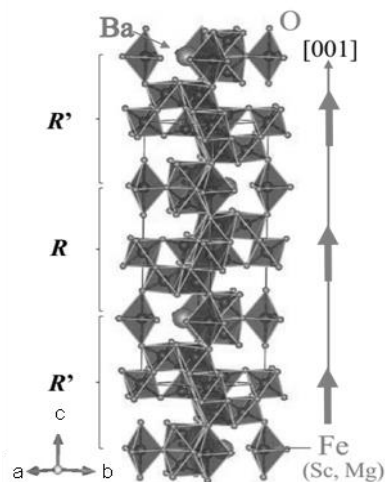


図 6-4 M 型六方晶フェライトの結晶構造[10].

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が表れている. 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, それぞれ反時計回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.

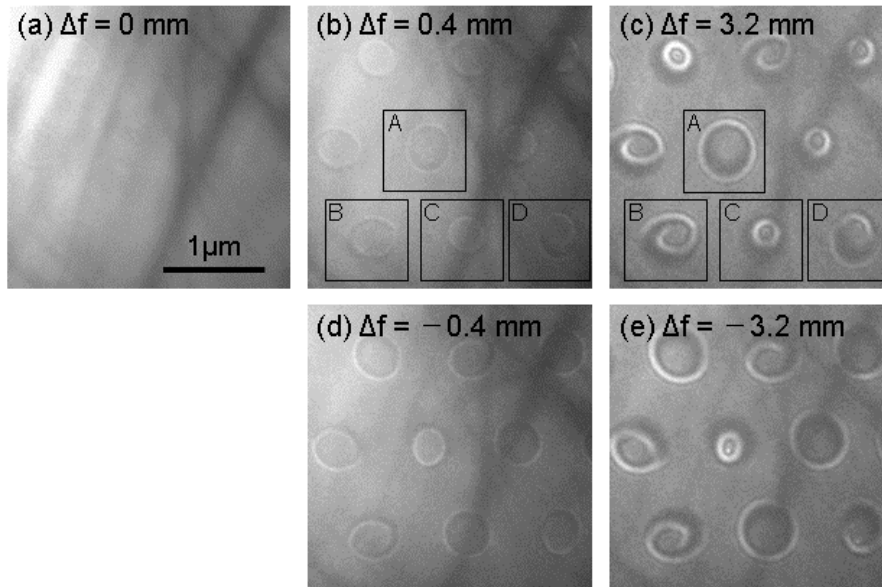


図 6-5 磁気バブルのスルーフォーカスシリーズの一部.

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 $2.5 \mu\text{m}^{-1}$ 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。

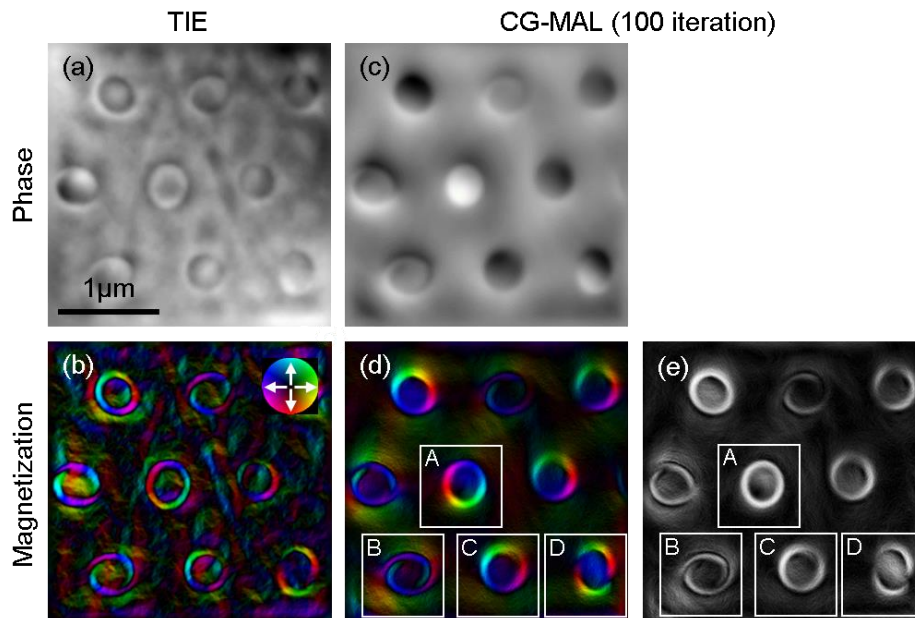


図 6-6 (a), (b) TIE 法で再構成された位相分布と面内磁化分布。 (c), (d) CG-MAL 法で再構成された位相分布と面内磁化分布。 (e) CG-MAL 法で得られた面内磁化分布の大きさ。

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定した。

また位相分布の最大値は $\theta_{\max}$ 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 $1600 \text{ e}^-/\text{nm}^2$ 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 $\theta_{\max}$ 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 $\theta_{\max}$ が小さな図 6-8(e)-(g)などでは像コントラストが弱い場合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 $\theta_{\max}$ で割ったものと定義した。図 6-9 は位相分布の最大値 $\theta_{\max}$ 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 $1600 \text{ e}^-/\text{nm}^2$ 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

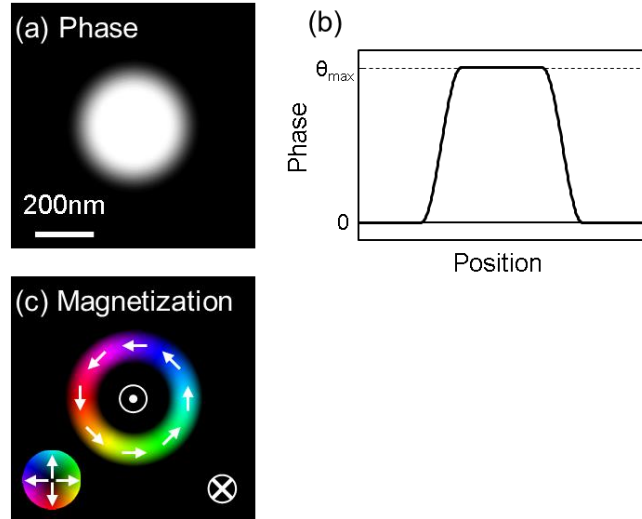


図 6-7 (a), (b) 仮定した type-I 磁気バブルの位相分布と動径方向のラインプロファイル。 (c) 仮定した磁気バブルの面内磁化分布。

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．

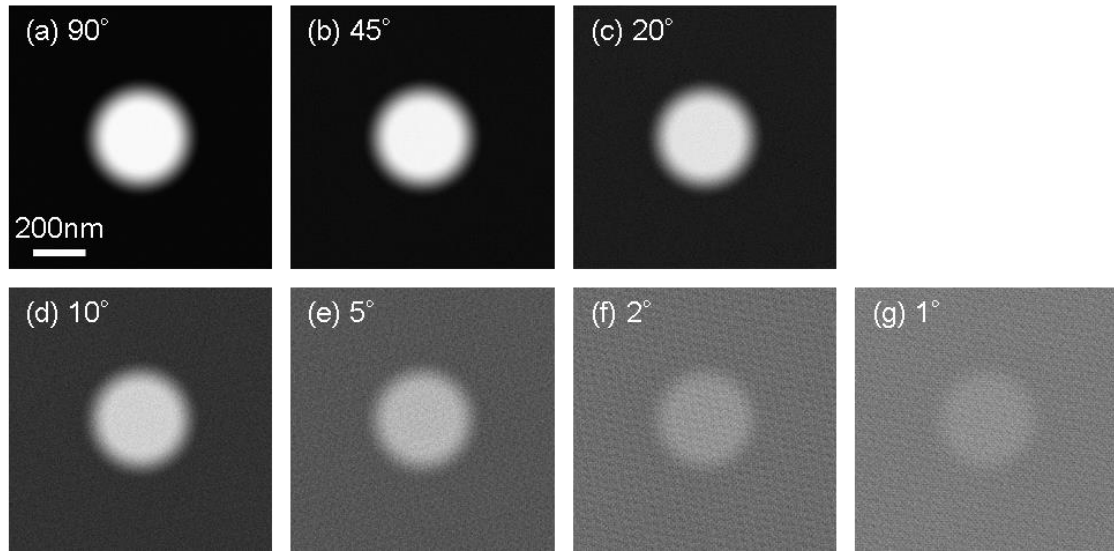


図 6-8 電子線照射量を考慮した計算像から再構成した type-I 磁気バブルの位相分布．位相分布の最大値 $\theta_{\max}$ は(a) 90° ，(b) 45° ，(c) 20° ，(d) 10° ，(e) 5° ，(f) 2° ，(g) 1° ．位相分布を再構成するのに用いた総電子線照射量は $1600 \text{ e}^-/\text{nm}^2$ ．

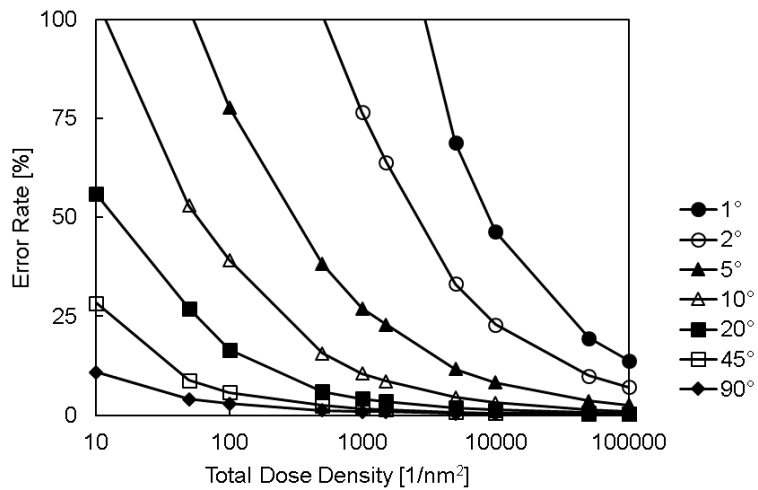


図 6-9 総電子線照射量と位相分布の最大値 $\theta_{\max}$ を変化させた時の誤差率の変化．

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。

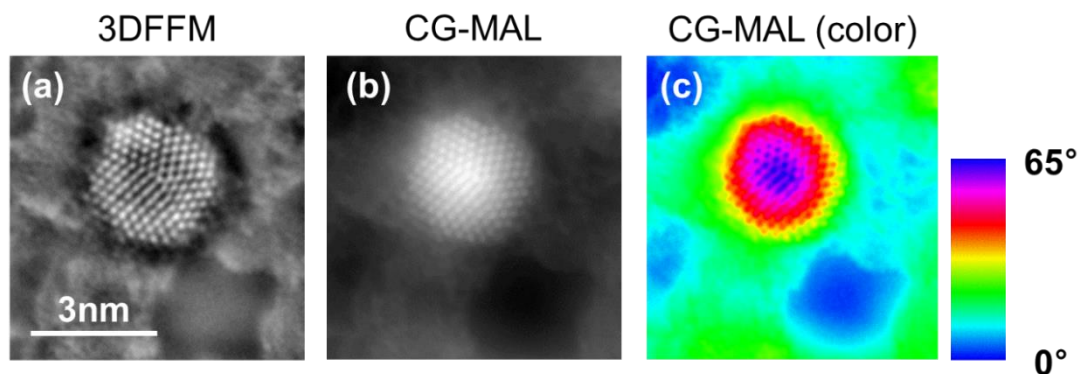


図 6-10 (a) 3DFFM によって再構成された位相分布。 (b), (c) CG-MAL 法によって再構成された位相分布。

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。

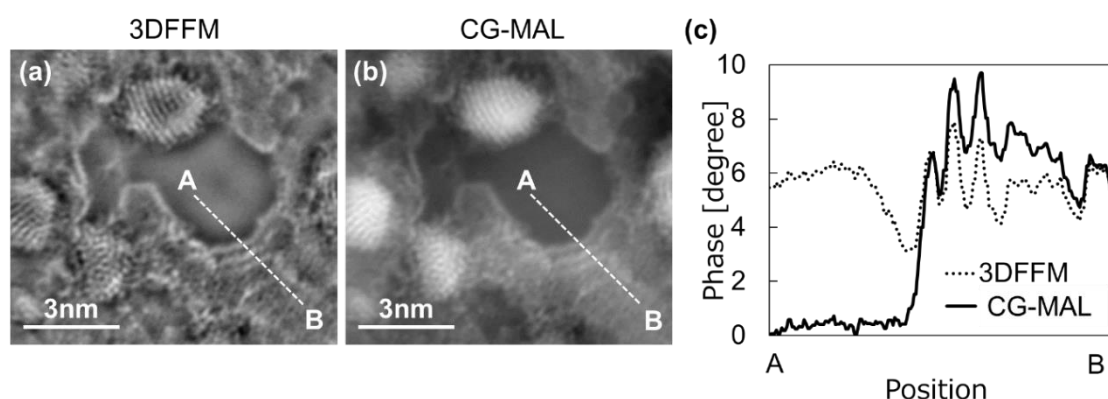


図 6-11 (a) 3DFFM, (b) CG-MAL 法によって再構成された位相分布. (c) AB 間のラインプロファイル.

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/nm^3 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。

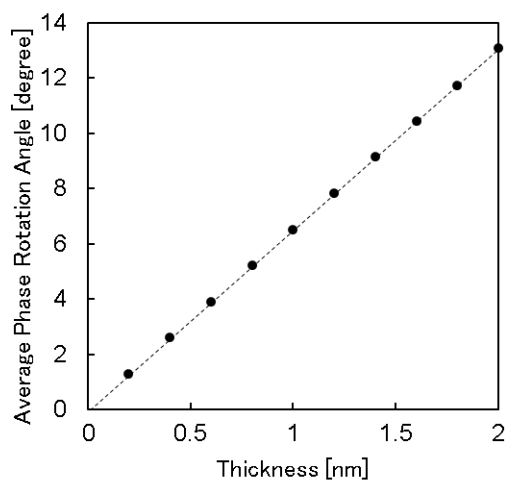


図 6-12 アモルファスカーボン膜の膜厚と平均的な位相回転角との関係。

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° であることがわかった。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).
2. 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).
5. 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).
7. 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).
9. 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).
16. 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な不可欠な要素技術である実時間での残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， $\pm 0.4 \text{ nm}$ 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かと期待される．

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、結びとさせていただきます。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”
T. Tamura, 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”
T. Tamura, Y. Kimura, Y. Takai
Microscopy **67**, 37-45 (2018).
- [3] “Phase retrieval using through-focus images in Lorentz transmission electron microscopy”
T. Tamura, 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”
○T. Tamura , 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”
○T. Tamura , 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”
○Y. Takai, T. Tamura, Y. Kimura
Electron Holography Workshop 2017 (Saitama, Japan, 15-17 February, 2017)

研究業績

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

T. Tamura, Y. Kimura, ○Y. 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