

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02600

研究課題名(和文)物質中での電子線多重散乱過程解明に基づく形状も密度も正しい三次元再構成法の実現

研究課題名(英文) Developing the electron tomography for correct reconstructions of three-dimensional shape and density of materials based on elucidation of the multiple scattering phenomenon of electron beams

研究代表者

山崎 順 (Yamasaki, Jun)

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・教授

研究者番号：40335071

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：全角傾斜試料ホルダーの製作とサブミクロンサイズ試料の取り付け技術の開発を行い、トモグラフィー再構成に重要な画像アライメントの新手法を開発することにより、三次元形状を高精度に再構成できる汎用性の高い手段を確立した。また三次元密度も高精度に再現するために、物質厚さと電子顕微鏡像強度の非線形関係を調べ、その結果に基づく非線形処理手法をノイズを含む実験画像に施す方法も確立した。これによって本課題の目的である密度定量電子線トモグラフィーの手法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

長年にわたり物質厚さと電子顕微鏡像強度の関係式が未解明であったが、電子顕微鏡の2大観察方式であるTEM像もSTEM像も数式で表せることになり、高エネルギー電子の多重散乱過程の理解につながる学術的意義のある成果が得られた。また汎用電子顕微鏡の観察スケール(ナノメートル)とX線による観察スケール(マイクロメートルからミリメートル)をつなぐサブミクロンスケールの物質の三次元構造を高精度に観察できるようになったため、そのサイズの物質群を活用した科学技術や応用技術への貢献が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Manufacturing a whole-angle-tilt sample holder, developing a mounting technique for submicron-sized samples, and devising a new mutual alignment algorithm for a tomographic tilt series were achieved for high-precision reconstructions of three-dimensional (3D) shapes of samples. Moreover, based on the precise measurements for the nonlinear relationship between material's thickness and image intensity in electron micrographs, the procedure of correcting the nonlinearity in experimental images including noise was established. Integrating all the achievements, the method to obtain correct 3D density of materials by electron tomography, which is the purpose of this project, was successfully established.

研究分野：電子顕微鏡学

キーワード：電子線トモグラフィー 密度定量 多重散乱 非線形強度減衰

1. 研究開始当初の背景

「電子線トモグラフィー」は分解能や汎用性、非破壊性といった特徴を総合的に兼ね備えたナノ・ミクロンスケール三次元観察法として重要な計測技術である。医療用 CT と同じ原理に基づき、様々な方向から撮影した電子顕微鏡像より三次元構造を再構成する。この手法成立の2大要件は、360度全方位からの像取得がなされていること、撮影像コントラストが試料内部密度の投影に比例していること、である。しかし実際の実験データはどちらも満たしていない場合がほとんどである。を満たさない原因は、試料ホルダー形状や試料自体の形状(通常は電顕観察用の薄膜形状)のせいであらう。±70度以上の高角度傾斜像が撮影できないことにある。この場合試料は不正確な形状に再構成される(情報欠落問題)。一方を満たさない原因は、物質内での入射電子線の多重散乱によって投影密度と電顕像強度との比例関係が崩れ、不正確な密度の三次元再構成(非線形投影問題)を引き起こす。このような電子線トモグラフィーの定量性欠如の問題点の解決には、全方位からの電顕像を効率よく取得できる実験手法の確立と、電子線多重散乱現象の基礎的な解明に基づく適切な処理手法の開発が求められている状況である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、物質形状だけでなく密度まで正しい三次元再構成すなわち「密度定量トモグラフィー」を確立することである。そのために物質厚さ増加に伴う透過電子顕微鏡(TEM)像と走査型TEM(STEM)像の強度変化曲線を精密な実験に基づき解明することも目指す。

3. 研究の方法

(1) 電子顕微鏡像シグナルと物質密度投影の関係性を効率よく計測するための試料作製について、集束イオン加工装置(FIB)によってくさび形状に加工した試料を準備した。この試料を用いて、TEM像とSTEM像の物質厚さ増加に伴う強度変化を、対物絞り径や検出角度などの結像パラメータごとに精密に計測した。特に、本課題の研究対象となっている多重散乱現象が顕著に現れる厚膜試料を観察するために、超高圧電子顕微鏡を率先して実験に用いた。

(2) 超高圧電子顕微鏡用の全角傾斜トモグラフィー試料ホルダーを作製しその性能確認を行った。情報欠落問題を回避するにはこのホルダーに膜状試料ではなく粒子状試料またはロッド形状試料を取り付ける必要がある。特に前者の試料を試料ホルダーに取り付ける技術は確立されていないため、これに取り組んだ。100-1000nmサイズの試料をFIB装置内でピックアップして高い成功率で試料ホルダーに取り付ける手順を確立するため、試料の初期設置方式、試料を付着する金属ニードルの寸法やデポに用いる元素、などを最適化した。この手順に基づいて数100nmの粒子をピックアップしている際のSEM像を図1左に示している。

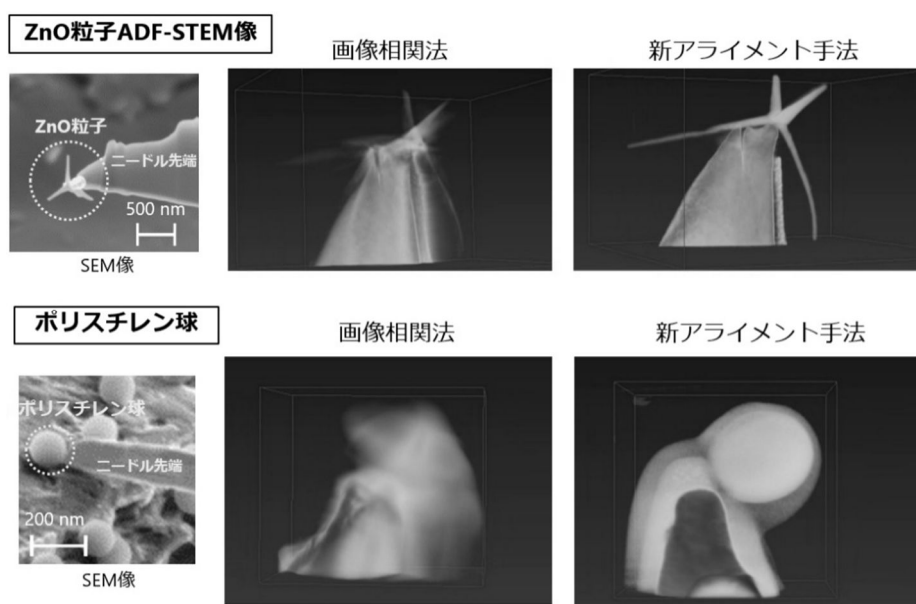


図1 (左) 金属ニードルによる観察対象粒子のピックアップ。(右) 従来のマーカーレスアライメント手法(画像相関法)と新アライメント手法によるトモグラフィー再構成結果の比較。

4. 研究成果

(1) 当課題研究の申請時点までに解明していた物質厚さ増加に伴う TEM 像強度減衰曲線の知見に基づき、物質内密度が区分的一様という拘束条件のもとに上記関数に含まれるパラメータの最適値を割り出すアルゴリズムは既に考案済みであった。その結果を用いた画像強度補正によって内部密度の正しい 3 次元再構成を行う手法まで考案済みであったが、実験画像に適用したところ思うような精度が得られなかった。その原因を探ったところ、傾斜シリーズ画像の位置合わせエラーに起因するストリークアーティファクト、実験データが含む画像ノイズの影響、の 2 つが原因であることが判明した。1 つ目の原因への対処として、全角傾斜トモグラフィーの特徴を最大限に生かした像アライメント手法を新たに考案した。これによって、像アライメント用に一般的に用いられる金マーカを付着できないような試料であっても、高精度なアライメントが可能となった。図 1 右にその成果の例を示す。またこの新規開発アライメント手法を、電子顕微鏡用高速カメラを用いた高速 TEM トモグラフィーにも応用し、従来の一般的な計測時間よりも二桁以上短い 14 秒の計測時間でサブミクロンの物質を高精度に三次元再構成することにも成功した。次に 2 つ目の原因への対策として、図 2 に示すようなシミュレーションによる検討を行った。まずパラメータ推定精度が実験像に含まれるノイズのせいで劣化することが判明したため、ガウシアンによる画像スムージングを行ってから推定することによって解決できることを見出した。しかしこのスムージング処理のせいで最終的な再構成像の分解能が劣化してしまう。そのためパラメータ推定が終わってからスムージングなしの元の画像を用いて再構成してみたところ、今度はノイズが増幅される結果となってしまった。これを解決するため、像のぼやけを最小限に抑えるノイズ処理法である non-local means フィルターを施したところ、強度非線形、像ボケ、ノイズの全てを同時解決できることが判明し、密度定量トモグラフィーの手法を実験データに対して適用する方策を確立できた。この手法を用いて、細胞の内部を正しい密度で再現した 3 次元計測結果を得ることに成功した（自然科学研究機構との共同研究）。

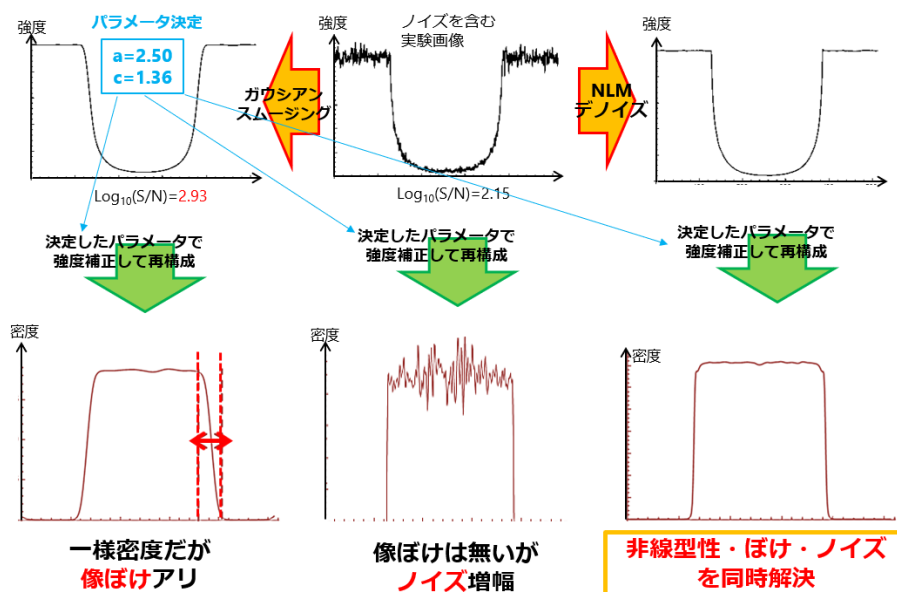


図 2 電顕像強度の非線形性に起因する 3 次元再構成密度の不正確性を補正する手順

(2) これまで見落としていた手法上の欠陥として、立体形状試料のエッジ近傍に出現する素性不明の TEM 像コントラストが三次元再構成結果にアーティファクトを与えることが判明した。このコントラストの成因を探るため、様々なサイズの対物鏡使用とエネルギーフィルター使用有無の場合について出現条件を系統的に調べ、モデル化した理論計算によって傾向を再現することに成功した（図 3 参照）。これによって、電子線の弾性/非弾性多重散乱によって顕著化する色収差効果で出現する偽像コントラストであることを解明した。この結果に基づき、径の小さな対物鏡の使用またはエネルギーフィルターの使用がこの問題解決に有効であることを結論付けた（National Research Council Canada との共同研究）。

(3) 研究成果(1)で開発した手法を結晶性材料にも適用可能とするために、STEM 像の強度変化曲線を与える関数の導出に取り組んだ。くさび形状試料を用いた計測実験を行い、TEM 像強度減衰を与える関数の組み合わせによって明視野/暗視野 STEM 像の実験データを高精度に再現できることを発見した。特に、暗視野 STEM 像の厚さ変化に伴う強度変化曲線は特徴的なピーク形状を示し、これを考慮した計測条件を設定することにより、従来手法では全く観察できなかった AI 製磁気ディスク基板中のめっき欠陥の立体観察に成功した（古河電気工業との共同研究）。

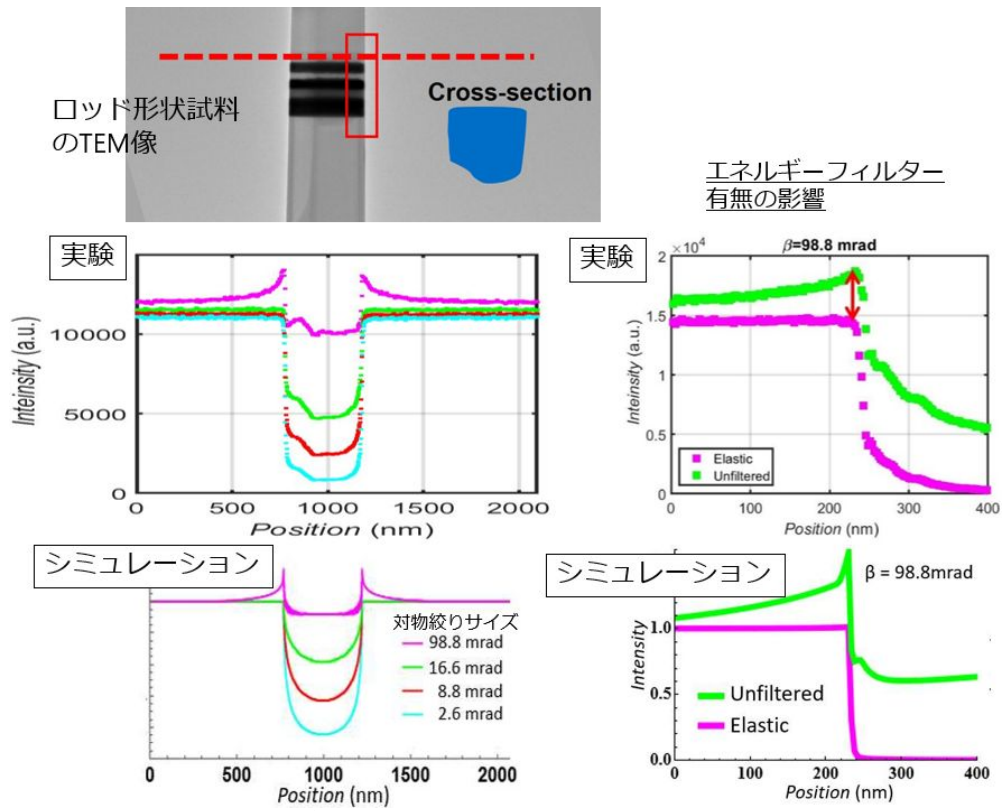


図3 ロッド形状試料のエッジに現れる明るい像コントラストの解析。(左側) 対物絞りサイズ依存性。(右側) エネルギーフィルタリングによる変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tanaka Nobuo, Fujita Takeshi, Takahashi Yoshimasa, Yamasaki Jun, Murata Kazuyoshi, Arai Shigeo	4. 巻 378
2. 論文標題 Progress in environmental high-voltage transmission electron microscopy for nanomaterials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences	6. 最初と最後の頁 20190602
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1098/rsta.2019.0602	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Segawa Yuhiro, Yamazaki Kenji, Yamasaki Jun, Gohara Kazutoshi	4. 巻 13
2. 論文標題 Quasi-static 3D structure of graphene ripple measured using aberration-corrected TEM	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 5847 ~ 5856
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/D1NR00237F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 山崎 順	4. 巻 54
2. 論文標題 厚さ増加に伴うTEM像強度減衰とトモグラフィーへの影響	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 顕微鏡	6. 最初と最後の頁 149 ~ 152
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11410/kenbikyo.54.3_149	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 3件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 山崎 順
2. 発表標題 電子顕微鏡によるミクロン/ナノスケール3次元計測の進展
3. 学会等名 2020年 日本表面真空学会 学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山崎 順
2. 発表標題 電子線トモグラフィーにおける形状と密度の定量的再構成とダイレクト・ディテクターを用いた高速化
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第63回シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 照屋 海登、山崎 順、加藤 文晴、畑中 修平、馬場 則男
2. 発表標題 全角傾斜トモグラフィーにおけるマーカーフリーアライメント手法の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第63回シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山崎 順、西久保 英郎、佐々木 宏和、荒井 重勇、保田 英洋
2. 発表標題 超高圧STEM像強度の厚さ依存性定量解析
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第75回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 照屋 海登、山崎 順、加藤 文晴、畑中 修平、馬場 則男
2. 発表標題 全角傾斜トモグラフィーにおけるマーカーレスアライメント手法の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第75回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 照屋海登、山崎 順
2. 発表標題 電子線トモグラフィにおける密度定量化手法へのノイズの影響除去
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jun Yamasaki, Yuya Ubata, and Hidehiro Yasuda
2. 発表標題 Precise Measurements of Transmission Attenuation in Mass-Thickness Contrast TEM Images
3. 学会等名 Microscopy and Microanalysis 2019 Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jun Yamasaki, Yuya Ubata, and Hidehiro Yasuda
2. 発表標題 Precise analysis of intensity attenuation with increasing thickness in TEM images
3. 学会等名 the 6th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC6) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 照屋 海登、山崎 順、加藤 文晴、藤田 直弘、馬場 則男
2. 発表標題 TVノルム最小化を用いた密度定量トモグラフィにおけるノイズ問題解決法
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山崎 順、宇畑雄哉、保田英洋
2. 発表標題 TEM像強度減衰曲線の精密解析と多重散乱に基づく解釈
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第75回学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 照屋 海登、山崎 順、加藤 文晴、藤田 直弘、馬場 則男
2. 発表標題 電子線トモグラフィーの非線形透過率補正におけるノイズ問題の解決法
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第75回学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jun Yamasaki, Yuya Ubata, and Hidehiro Yasuda
2. 発表標題 Precise analysis of transmission attenuation in mass-thickness contrast TEM images
3. 学会等名 12th Asia-Pacific Microscopy conference (APMC-2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山崎 順、林田 美咲、Marek Malac
2. 発表標題 急峻なエッジ近傍に見られるTEM像コントラストの解析
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西久保英郎、佐々木宏和、村田拓哉、米光誠、兒島洋一、荒井重勇、山本剛久、山崎順
2. 発表標題 超高压STEM像強度解析を活用したAI製磁気ディスク基板中のめっき欠陥の立体解像
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	保田 英洋 (Yasuda Hidehiro)		
研究協力者	永瀬 丈嗣 (Nagase Takeshi)		
研究協力者	栞原 隆亮 (Kuwahara Ryusuke)		
研究協力者	佐々木 宏和 (Sasaki Hirokazu)		
研究協力者	加藤 丈晴 (Kato Takeharu)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	平泉 由梨 (Hiraizumi Yuri)		
研究協力者	馬場 則男 (Baba Norio)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
カナダ	National Research Council			