

平成22年5月1日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2008～2009
 課題番号：20710080
 研究課題名 (和文) 球面収差補正電子顕微鏡による3次元位相構造観察手法の確立
 研究課題名 (英文) Three-dimensional phase imaging using spherical aberration corrected transmission electron microscope

研究代表者
 藤田 武志 (FUJITA TAKESHI)
 東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教
 研究者番号：90363382

研究成果の概要 (和文)：

代表的な球状ナノ物質としてラテックス粒子を用いることで、電子線ホログラフィックトモグラフィの定量性について検討した。その結果、3次元で取りたいプロファイルホルダー回転軸状に置けば、比較的良好なデータが得られることがわかった。この実験は、さらなる球面収差補正電子線トモグラフィに向けて、“missing wedge”の定量評価に与える影響について再確認させられると共に、その解決法を示唆している。

研究成果の概要 (英文)：

We demonstrate quantitative electron holographic tomography using a latex sphere as a simple example. For performing potential profiling in the presence of a missing wedge, the region of interest should ideally be aligned perpendicular to the rotational axis. Although a simple object is used, we believe that the observations made in this study will lead to further developments in electron holographic tomography. In particular, we make the quantitative interpretation mainly deals with of artifacts caused by incomplete angular information, i.e., a “missing wedge.”, showing an important implication of the solution.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：電子線トモグラフィ、電子線ホログラフィ、電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

現在、ナノテクノロジーによって3次元ナノ構造物の作製が可能になった。そこで、材料設計するためには、複雑な3次元ナノ構造物

を正しく把握し、フィードバックする必要がある。3次元イメージングの代表的なものとして、共焦点レーザースキャン顕微鏡法、X線CT法、3次元NMR顕微鏡法、集束イオ

ンビーム顕微鏡法(FIB)などが挙げられる。近年、電子線トモグラフィの金属材料への応用が報告され始めている。電子線トモグラフィとは、試料の同一視野領域の投影像を傾斜しながら数十枚撮影を行い、コンピュータ処理により再構築をして3次元情報を得る手法である。この手法は、電子線トモグラフィは分解能レベルにおいて他の手法の追随を許さず 1nm 以下の分解能を有しているため、ナノテクノロジーの基盤的手法として確立すべく研究が行われている。

一方、電子線ホログラフィとは、電子波干渉法のひとつで、バイプリズムをもちいて物質や空間に存在する電磁場によって散乱・偏向を受けた電子波の干渉縞としてフィルムに記録したホログラムを用い、これを画像再生することによってナノスケールでの電場や磁場を観察する技術である。したがって、電子線トモグラフィと電子線ホログラフィを組み合わせることで、電場・磁場双方の情報を含んだ3次元ナノ位相像を得ることが予想される。

2. 研究の目的

本研究代表者は、これまで電子線トモグラフィと電子線ホログラフィを各々独立して利用してきており、この経験を生かし、高性能電子顕微鏡を駆使することで両手法の融合に取り組むことを目的としている。

3. 研究の方法

ナノ球状粒子としてラテックス粒子を使用した。この粒子は荷電粒子として電子線ホログラフィでよく用いられる試料である。図8にラテックス粒子のホログラムを示す。次に位相再生像の手順について解説する。

ホログラムの位相再生には主として、フーリエ変換法(8)、位相シフト法(9)の2つの方法がある。フーリエ変換法がより簡便であるため一般的に使われている。

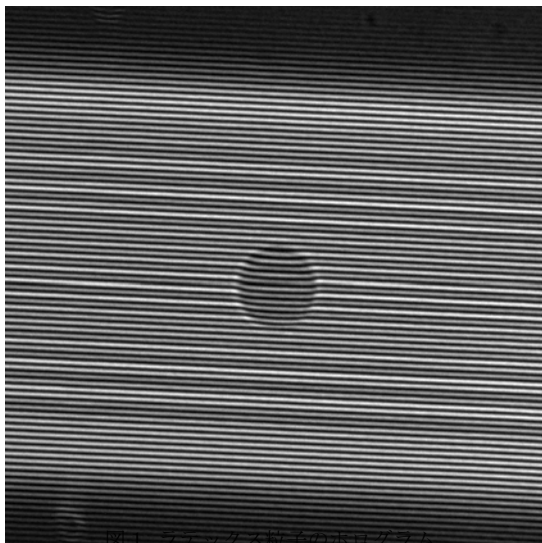


図8 ラテックス粒子のホログラム

手順(1)

ホログラムに対して窓関数を掛け、フーリエ変換を行なう。1つのセンターバンドと2つのサイドバンドが現れる。

手順(2) 1つのサイドバンドを選び、中心に置く。センターバンドは取り除く。

手順(3) 逆フーリエ変換を行ない、複素画像を得る。

手順(4) 複素像から位相、振幅を求める。2・の位相の不連続性をつなげる処理(位相アンラップ処理)を行なう。以下に具体的な手順を示す。

手順(1)

ホログラフィに窓関数を掛けずにフーリエ変換処理を行なうと、画像の端のアーティファクトによりサイドバンドなどのスペクトルが画像端まで伸びてしまい、正しい結果が得られない。したがって、窓関数を用いて画像端の影響を取り除くことが必要になる通常、ホログラム用の窓関数は Hanning 窓関数が用いられ、以下のように書ける。

$$H^r = H_x^r(x) \cdot H_y^r(y)$$

$$H_x^r(x) = \frac{N}{2\pi} \sum_{j=1}^r \frac{(-1)^j}{j} \sin \left[\frac{\pi j(N-1)}{N} \right] \cos \left[\left(\frac{2\pi j x}{N} \right) - 1 \right]$$

$$H_y^r(y) = \frac{N}{2\pi} \sum_{j=1}^r \frac{(-1)^j}{j} \sin \left[\frac{\pi j(N-1)}{N} \right] \cos \left[\left(\frac{2\pi j y}{N} \right) - 1 \right]$$

N は画像サイズ、 x, y はピクセル位置、 \cdot は Hanning 窓関数の次数で、 $\cdot \cdot = 3$ を通常使う。

手順(2)

$\cdot = 3$ の Hanning 窓関数を掛けてフーリエ変換処理を行ない、1つのサイドバンドを選んで画像の中心に移動させる。その際、センターバンドからサイドバンドにかけて現れるバイプリズムのフレネルフリッジの影響によりすじ状のアーティファクトが現れる。これは、図1中に現われている干渉パターン内の不規則な白黒コントラストに相当するものである。アーティファクトが入る原因になるので、その領域のみ取り除く。

手順(3)

次に逆フーリエ変換後、複素像が得られ、今度は Hanning 窓関数で割る。

手順(4)

複素像から振幅像と位相像が計算できる。例えば複素数を $a+bi$ (a ;実数, b ;実数, i ;虚数) とすると振幅は $\sqrt{a^2+b^2}$, 位相は $\text{Tan}^{-1}(b/a)$ になる。ただし位相の計算には制限があり、例えば C 言語の atan2 関数では位相を $-\pi$ から π の範囲でしか計算できない。したがって、このままでは位相の絶対値を評価することができないので、2・の不連続点をつなげる位相アンラッピング処理を行なう必要がある。現在、位相アンラッピングアルゴリズムは数多く提案されている。その中で、Goldstein,

Flynn のアルゴリズムは比較的ノイズに強いこと

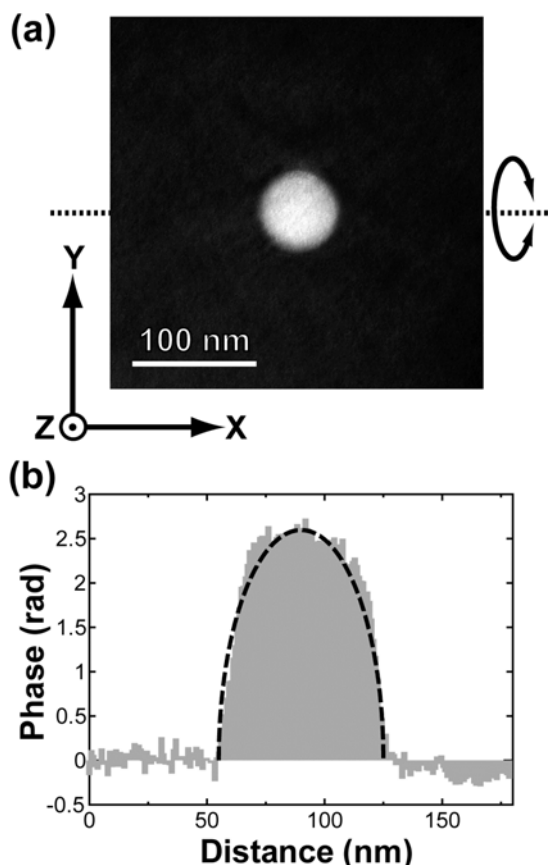


図2 (a)ラテックス粒子の位相像
(b)位相プロファイル

が知られており、容易に用いることができる。まず Goldstein の方法を試し、うまくいかないときは Flynn の方法を試すことを勧める。位相アンラップした画像を図2 (a)に示す。動力学効果およびフレネルコントラストの影響がない状態で、電子線の位相は電場や磁場によって位相変調を受ける。ここでは、電位による位相変化を考える。試料が付加的な静電ポテンシャルを持たない場合では、電子線は試料の平均内部ポテンシャル V_0 [V] によって位相変化 ϕ を受け、以下のように表される。

$$\phi(x, y) = C_E V_0 t(x, y)$$

C_E は電子線エネルギーによって決まる定数で、ここでは $6.53 \times 10^6 \text{ rad V}^{-1} \text{ M}^{-1}$ である。X 軸方向の球の中心を通った時のプロファイルを図2 (b)に示す。点線は、完全な球状と見なしたときのプロファイルである。これから、このラテックス粒子はほぼ球体であることが分かる。この比較より、このラテックス粒子の平均内部ポテンシャルは 5.7 V であることがわかった。次に、図2 (a)中の矢印のように x 軸を中心にして試料を -60° から $+60^\circ$ まで 2° ずつ回転し、ホログラムを記録

し、上記の画像処理で位相像を求めた。一連の位相像シリーズを電子線トモグラフィの

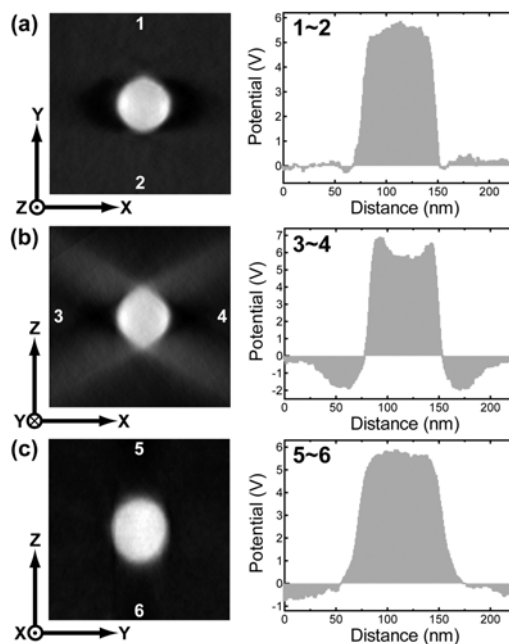


図3ラテックスの3D電位像の断面像とプロファイル
(a)X-Y面, (b)Z-X面, (c)Y-Z面

前述と同じ方法で3次元像を構築した。

4. 研究成果

図3は得られた3次元像を(a)X-Y面, (b)Z-X面, (c)Y-Z面に切ったときの断面像である。この断面像は、完全に球状の3次元電位分布の情報を示すべきである。しかし、図3 (b)では筋状の強度が不完全な球体の周りが見え、強度プロファイルも一様ではない。また、図3 (c)ではZ方向に球が延びた形状を呈しているのが分かる。これは、情報の欠落部”missing wedge”による影響でありアーティファクトである。したがって、この影響を最小限にする必要がある。ただ、”missing wedge”の影響があったとしても、3次元で取りたいプロファイルをY軸状に置けば、比較的良好的なデータが得られることがわかった (図3 (a))。この実験は、さらなる球面収差補正電子線トモグラフィに向けて、”missing wedge”の定量評価に与える影響について再確認させられると共に、その解決法を示唆している。つまり、”missing wedge”を完全に無くすために 360° 試料回転ホルダーの使用が今後の最も有効な手段になり得ると考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計10件)

1. X. Y. Lang, P. F. Guan, L. Zhang, T. Fujita, and M. W. Chen, Size dependence

- of molecular fluorescence enhancement of nanoporous gold, Applied Physics Letters 96 (2010) 073701、査読有
2. L. Y. Chen, L. Zhang, T. Fujita, and M. W. Chen, Surface-Enhanced Raman Scattering of Silver@Nanoporous Copper Core-Shell Composites Synthesized by an In Situ Sacrificial Template Approach, Journal of Physical Chemistry C 113 (2009) 14195-14199、査読有.
 3. X. Y. Lang, P. F. Guan, L. Zhang, T. Fujita and M. W. Chen, Characteristic Length and Temperature Dependence of Surface Enhanced Raman Scattering of Nanoporous Gold, Journal of Physical Chemistry C 113 (2009) 10956-10961、査読有.
 4. X. Y. Lang, L. Y. Chen, P. F. Guan, T. Fujita and M. W. Chen, Geometric effect on surface enhanced Raman scattering of nanoporous gold: Improving Raman scattering by tailoring ligament and nanopore ratios, Applied Physics Letter 94 (2009) 213109、査読有.
 5. T. Fujita and M. W. Chen, Quantitative electron holographic tomography for a spherical object, Journal of Electron Microscopy 58(5) (2009) 301-304、査読有.
 6. L. Y. Chen, J. S. Yu, T. Fujita, and M. W. Chen, Nanoporous Copper with Tunable Nanoporosity for SERS Applications, Advanced Functional Materials, 19 (2009) 1221-1226、査読有.
 7. T. Fujita, L. H. Qian, K. Inoke, J. Erlebacher, and M. W. Chen, Three-dimensional morphology of nanoporous gold, Applied Physics Letters, **92** (2008) 251902、査読有.
 8. T. Fujita, H. Okada, K. Koyama, K. Watanabe, S. Maekawa, and M. W. Chen, Unusually small electrical resistance of three-dimensional nanoporous gold in external magnetic fields, Physical Review Letters, **101** (2008) 166601、査読有.
 9. T. Fujita, and M. W. Chen, Characteristic length scale of bicontinuous nanoporous structure by fast Fourier transform, Japanese Journal of Applied Physics **47** (2008)

1161-1163、査読有.

10. 藤田武志, Lihua Qian, Jinshan Yu, Xingyou Lang, Luyang Chen, 陳明偉, 脱成分腐食で作るオープンチャンネル型ナノ多孔質金属, まてりあ 47 巻 8 号 (2008) 413-417、査読無

[学会発表] (計 3 件)

1. 藤田武志、脱成分腐食によるナノポーラス金属の創成と応用、東京工業大学、日本金属学会第 144 回春期大会、2009 年 3 月 29 日.
2. T. Fujita, L. H. Qian, X. Y. Lang, M. W. Chen, “Three-dimensional Structure of Dealloyed Nanoporous Gold” The IUMAR International Conference in Asia 2008, Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, December 11, 2008.
3. 藤田武志, L. H. Qian, X. Y. Lang, M. W. Chen, ナノ多孔質金の 3 次元形態と曲率, 熊本大学, 日本金属学会第 143 回秋期大会 2008 年 9 月 23 日.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 貴金属で表面修飾されたナノポーラス金属

発明者: 陳明偉、藤田武志、陳廬陽

権利者: 東北大学

種類: 特許

番号: 特願 2009-282052

出願年月日: 2009 年 12 月 11 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤田武志 (FUJITA TAKESHI)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号: 90363382