

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760026

研究課題名(和文)

電子回折図形からの新規結像法によるサブオングストローム分解能の達成と応用への研究

研究課題名(英文)

Implementation of sub-Å resolution by a new imaging method based on electron diffraction patterns and towards its application for materials science

研究代表者：

山崎 順 (YAMASAKI JUN)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・助教

研究者番号：40335071

研究成果の概要(和文)：

電子回折顕微法における種々の問題点を解決し、手法の可能性と汎用性を大きく前進させることに成功した。具体的成果として、0.078nmの空間分解能の達成、直径6nm領域の再構成、化合物結晶構造の再構成に成功した。

研究成果の概要(英文)：

We succeeded in making large progresses in possibility and versatility of electron diffractive imaging. Spatial resolution of 0.078 nm, reconstruction of areas 6 nm in diameter, and reconstruction of compound crystalline materials were achieved in the present study.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：電子顕微鏡学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 薄膜・表面界面物性

キーワード：電子顕微鏡、回折顕微法、制限視野回折

1. 研究開始当初の背景

近年、回折図形自体からレンズ結像を経ずに試料構造を再生する「回折顕微法」が世界的に注目されている。レンズを持たないX線の分野では特に精力的に取り組まれており、約10nmの空間分解能が達成されている他、トモグラフィー計測までもが実現されている。一方で電子回折を用いた報告は、2008年夏の時点でわずかに2件のみであり、応募者らが世界で3番目の成功例を達成したのが現状である。これほどまで電子回折での研究例が少ない原因は以下の3点に大別される。

① 研究意義の理解が浸透していない

X線とは異なり、電子顕微鏡という結像システムが既に存在しているため、電子回折を

用いる意義が理解されにくい。しかしこの手法には、現状の電子顕微鏡よりも高い空間分解能を達成する可能性が秘められている。TEM像分解能は対物レンズの収差やプローブ干渉性の影響を受けて制限されるが、電子回折図形は位相変調以外にはレンズの影響を受けないためである。したがって次世代の原子レベル結像としての基礎研究が必要とされている。

② 応用範囲が著しく狭い

回折顕微法の再生過程自体に起因する問題として、電子回折の対象となるナノ構造は、例えばアモルファス薄膜に担持しても原子レベルで精密に再生することが容易ではない。従来の方法では、対象のナノ構造は真空中に孤立していなければならず、ナノチューブ等

のごく限られた系にのみ有効であった。

③ 原子レベルでの再生が技術的に困難

この困難さの理由としては、照射電子線プローブに高い平行性（空間的コヒーレンス）が求められることをはじめとして、複数の要因が考えられる。

上記のうち技術的問題点である②、③に対し、応募者は収差補正 TEM と制限視野回折法を組み合わせる方法を考案した。

②の問題は「物質周辺の真空領域を拘束条件に用いる」という手法の原理自体に起因しているが、制限視野絞りで電子線が遮断された領域を拘束条件に代用すれば任意形状の試料に対応可能である。また、プローブを収束して対象のナノ構造を選択する従来法に対し、十分に広げた高い平行性のプローブを形成できるため③も解決される。

また一般的な制限視野回折法の問題点として、対物レンズの球面収差に起因する選択領域のぼやけがよく知られている。応募者は以前から、収差補正 TEM によるこの問題の解決を提案し取り組んできた。現段階までに、FIB 装置で金属箔に極小サイズの穴を開け、直径約 3 nm の試料領域を選択できる制限視野絞りを作製してその絞り穴を用いて得た回折図形から、シリコン結晶のダンベル構造（間隔 0.136nm）を明瞭に分離観察することに本研究開始前年に成功した。この像のフーリエ変換からは 0.096nm 間隔相当のスポットが確認されており、収差補正 TEM 像と比較しても遜色ない分解能が、既に現段階で達成されている。

2. 研究の目的

回折図形のみから局所構造を再生する「回折顕微鏡」は、今後のナノ構造解析の一翼を担うべき手法である。本研究では、収差補正電子顕微鏡と制限視野電子回折を組み合わせた全く新しい方式の電子線回折顕微鏡を確立し、レンズ結像を超える分解能の追求と応用への道を切り開く。

3. 研究の方法

(1) 従来の回折顕微鏡では、試料周囲の真空領域を拘束領域に使用するため、微粒子やナノワイヤーのような孤立形状の試料しか対象とすることができない。これに対し本研究では、制限視野絞りで電子線が遮断された領域を拘束条件に代用する。これは回折顕微鏡としては全く新しい方式であり、通常の透過型電子顕微鏡観察の対象となるあらゆる試料形状に対して適用可能な手法となる。

(2) ナノ構造を効率よく選択し原子分解能を達成することのできる極小サイズの制限

視野絞りを FIB 装置を用いて作製する。具体的な絞り直径は約 300nm であり、これを透過型電子顕微鏡の第一像面に挿入することにより、試料面の直径数 nm の領域を選択することが可能である。

(3) 対物レンズ球面収差に起因する選択領域のぼやけが制限視野電子回折の最大の弱点であり、本研究のように数 nm 領域を対象とする場合、特に顕著に問題化してしまう。本研究ではこの問題を球面収差補正装置を用いることで解決する。

4. 研究成果

研究期間(21, 22 年度)を通じ、電子回折顕微鏡における種々の問題点を洗い出し、基礎的観点からも応用に向けての観点からも概ね研究計画に沿った成果を得ることに成功した。

(1) 様々な初期位相からの収束解の平均化処理を行うことにより、それまで約 20%程度にとどまっていた再構成の成功率を大幅に改善した。またこれによって、再構成結果に含まれる S/N 比やアーティファクトを大幅に低減することに成功した。結果の一例を図 1 に示す。

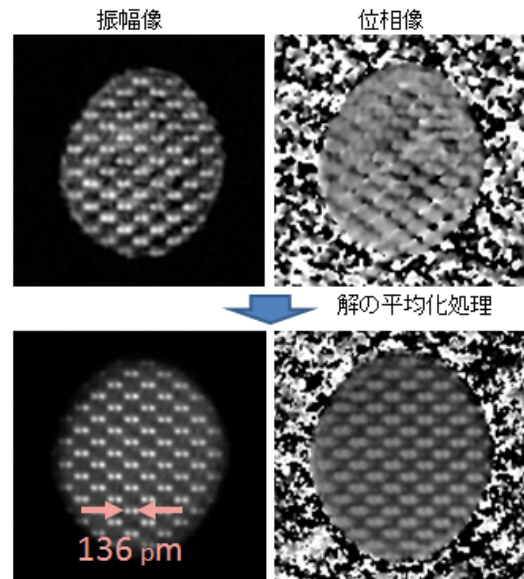


図1 収束解の平均化処理によるアーティファクト低減

(2) 記録する回折図形における量子ノイズの影響を定量的に考察し、それを踏まえた実験条件を設定しなおすことにより、これまで Si[011]方向から確認できていた 0.136nm の分解能を大幅に更新し、Si[112]方向からのダンベル構造 0.078nm の分離に成功した(図 2)。これは収差補正 TEM の現状での分解能を大幅に上回っている値であり、手法の持つポテンシャルを大幅に引き出すことに成功したと言える。

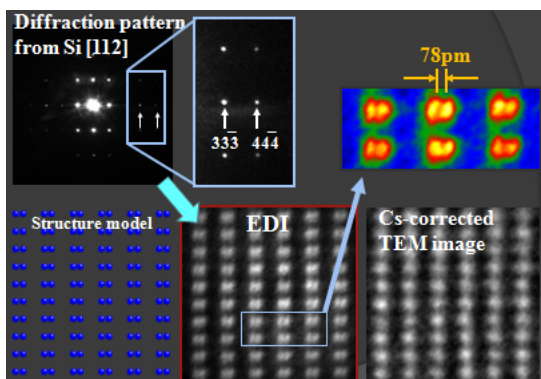


図2 Si<112>方位からの制限視野回折図形からの原子配列再構成。間隔 78pm のダンベル構造が分解されており、球面収差補正 TEM 像の分解能を上回っている。

(3) 上記のノイズ量の考察を踏まえてサイズの異なる絞り穴を作製し、これまでは直径 3nm であった再構成領域を、図3に示すように直径約 5nm (面積比で約 3 倍) まで拡大することに成功した。

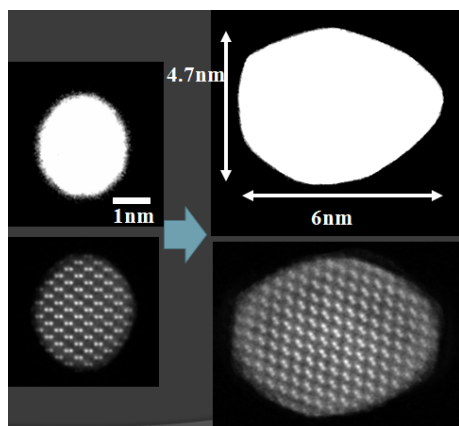


図3 再構成領域の拡大

(4) 複数元素からなる物質の代表として酸化マグネシウムの再構成に取り組み、ポテンシャルの異なる 2 種類の原子コラムを明瞭に区別して再構成することに成功した (図4)。これらの成果により、当初の研究目的である様々な構造を持つ物質の原子レベルイメージングへの応用に向けて、道筋を大きく開くことにつながったと言える。

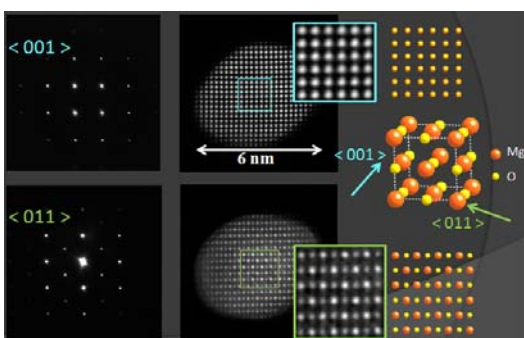


図4 複数元素物質 MgO の再構成結果

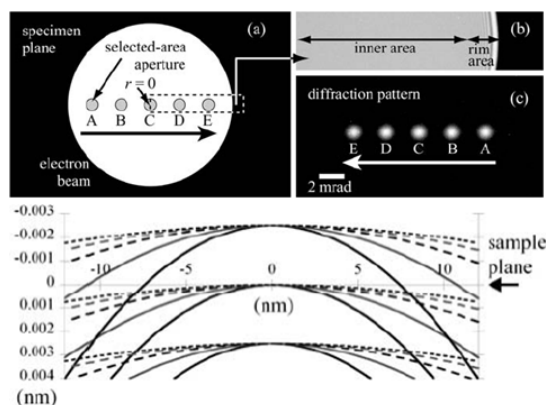


図5 極小制限視野絞りを用いた照射電子波動場の精密測定。上段は測定手順、下段は測定結果である波面の湾曲を示す。

(5) 本手法を新たな顕微鏡法として確立するための試みとして、前年度には直径約 5nm の領域を再構成することに成功しているが、直径 3nm の場合に比べ像質の劣化が認められた。これを解決するため、電子ビームの直径と波面湾曲および空間干渉性の関係を測定する手法を開発した。

(6) 実験を遂行する上での問題点として極小の絞り穴を作製する困難性とコンタミネーション付着を回避する必要があったが、FIB で効率よく穴を作製する手順を確立し、コーティングによる清浄化の道筋を達成した。これにより今後はさらに効率よくまた高い精度で広い領域の再構成を達成することができると見込まれる。

(7) 前年度は様々な結晶構造の再構成を達成したが、本年度は局所構造の再構成に取り組んだ。高分解能再構成達成への取り組みとして、酸化マグネシウムのエッジ部分の原子配列を再現する実験に取り組んだ。その過程で、電子回折図形に含まれるノイズの許容量に関する議論を深めることができ、ptychography と呼ばれる複数箇所からの再構成データを結合する手法の採用によって、ある程度の像質での再構成に成功した。

(8) 原子分解能のない中倍率での実験もを行い、結晶シリコンのくさび形エッジ形状および半導体ナノワイヤーの再構成に成功した。これらの成果により、今後電子線ホログラフィーと同等の電場磁場観察手法としての展開が大きく期待される。図6は一例である。

(9) 前年度に収差補正 TEM の分解能を上回る 78pm の空間分解能を達成したが、この要因について理論的側面からの考察をすすめた。その結論を踏まえて、当初の計画に沿って傾斜

照明によるさらなる分解能の向上に取り組んだ。この点に関しては本年度中に目に見える形での成果までたどり着くことはできなかったが、ごく近い将来に達成できる見通しを立てることに成功した。

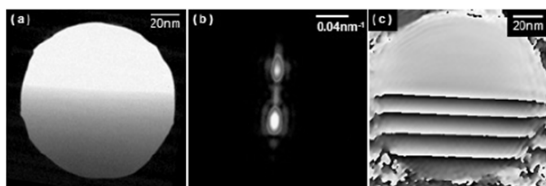


図6 (a) 制限視野経路で様子のSiを演算した際の明視野TEM像。(b) (a)からの回折図形。(c) (b)を基に再構成した実空間波動場の位相像。

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2件)

- ①山崎順、田中信夫、森下茂幸、「回折顕微鏡による原子配列構造の可視化 -制限視野回折図形からのSiダンベル構造再生-」、まてりあ、査読有、48巻12号、2009、604
- ②S. Morishita, J. Yamasaki, and N. Tanaka, “Estimation of wave fields of incident beams in a transmission electron microscope by using a small selected-area aperture”, *Journal of Electron Microscopy*, 査読有、60(2), 2011, 101-108.

[学会発表] (計15件)

- ①森下 茂幸, 山崎 順, 加藤 丈晴, 田中 信夫、日本顕微鏡学会第65回学術講演会、2009年5月27日、仙台国際センター
- ②Jun Yamasaki, *et al.*, *Microscopy & Microanalysis* 2009, 2009年7月30日, Richmond, USA
- ③Shigeyuki Morishita, and Jun Yamasaki, *Microscopy & Microanalysis* 2009, 2009年7月30日, Richmond, USA
- ④Jun Yamasaki, Nobuo Tanaka, and Shigeyuki Morishita, *The 12th Frontiers of Electron Microscopy in Materials Science (FEMMS2009)*, 2009年9月28日, 長崎ハウステンボス
- ⑤森下茂幸, 山崎順, 田中信夫、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月21日、岡山大学
- ⑥濱邊麻衣子, 齋藤晃, 森下茂幸, 山崎順, 田中信夫、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月21日、岡山大学
- ⑦森下 茂幸, 山崎 順, 加藤 丈晴, 田中 信夫、日本顕微鏡学会66回学術講演会、2010年5月23-26日、名古屋国際会議場
- ⑧ J. Yamasaki, S. Morishita, and N. Tanaka, *COHERENCE 2010*, 2010年6月9日, Rostock-Warnemunde, Germany

- ⑨ S. Morishita, J. Yamasaki, and N. Tanaka, *COHERENCE 2010*, 2010年6月9日, Rostock-Warnemunde, Germany
- ⑩S. Morishita, J. Yamasaki, T. Kato, and N. Tanaka, *The 2nd International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations*, 2010年6月25日, 名古屋国際会議場
- ⑪J. Yamasaki, A. Hirata, Y. Hirotsu, N. Tanaka, *The 17th IFSM International Microscopy Congress*, 2010年9月23日, Rio de Janeiro, Brazil
- ⑫J. Yamasaki, S. Morishita, N. Tanaka, *The 17th IFSM International Microscopy Congress*, 2010年9月23日, Rio de Janeiro, Brazil
- ⑬S. Morishita, J. Yamasaki, T. Kato, *The 17th IFSM International Microscopy Congress*, 2010年9月23日, Rio de Janeiro, Brazil
- ⑭山崎順、原子分解能ホログラフィー研究会ワークショップ、2010年11月13日、東北大学
- ⑮太田圭佑、森下茂幸、山崎順、田中信夫、日本顕微鏡学会67回学術講演会、2011年5月17日、福岡国際会議場

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等
<http://sirius.cirse.nagoya-u.ac.jp/~tanakalab/research/researches/DiffImg.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山崎 順 (YAMASAKI JUN)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・助教

研究者番号：40335071

(2) 研究分担者 なし

()

研究者番号：

(3) 連携研究者 なし

()

研究者番号：