

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年9月23日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K06419

研究課題名(和文) 動力的回折効果を考慮した電子線ホログラフィーによる電磁場解析法の確立

研究課題名(英文) Development of electron holography in consideration of a dynamical electron diffraction for electromagnetic field analysis

研究代表者

赤瀬 善太郎 (Akase, Zentaro)

東北大学・多元物質科学研究所・講師

研究者番号：90372317

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：近年、透過電子顕微鏡を用いた電磁場解析において、動力的回折効果が電子の位相シフトに与える影響が重要視されるようになってきた。本研究ではくさび形に加工したSi単結晶を用いてブラッグ回折条件近傍での電子線の位相シフトの様子を電子線ホログラフィーで計測するとともに、動力的回折理論を用いた理論計算(ベータ法)との比較を行うことで、電子回折が位相シフトに与える影響を詳細に調べた。二波励起条件下において、励起誤差が負の時、位相シフト量の試料厚さに対する傾きは大きくなり、正の時は小さくなる。また、完全なブラッグ回折条件下では、位相のジャンプが起こることなどが、実験と理論の両方から示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子線ホログラフィーや微分位相コントラストSTEM法など透過電子顕微鏡を用いた電磁場解析手法をもちいて結晶性の試料を解析する際、しばしば電子線の回折現象が精確な解析の妨げとなり、ブラッグ条件からなるべく外した条件でホログラムを撮影する処置がとられてきた。しかし、実用材料への展開が進む中、結晶粒界における磁場解析等、回折による位相変化を考慮すべき課題が増えていた。そこで、本研究では電子線の試料中での多重散乱を考慮した動力的回折理論をもちいて、結晶試料内部の電子線の振る舞いをより正確に把握することを目指した。本研究により、電磁場解析の回折現象が大きくかわる研究課題へのアプローチ方法が示された。

研究成果の概要(英文)：With recent improvements in the precision and sensitivity of electron holography, the effect of dynamical electron diffraction on the phase shift has become important. In this study, we investigated the effect of dynamical electron diffraction on the phase shift in electron holography. Holograms were recorded from a wedge-shaped specimen of single-crystal Si around a Bragg diffraction condition. The results shows that an effective inner potential depends on the direction of the incident electron beam, especially near the Bragg condition. The characteristic phase shift was analyzed using dynamical electron diffraction theory (Bethe method). When excitation error $sg < 0$, the gradient of the phase-shift is high. On the other hand, when $sg > 0$, the gradient of the phase-shift is low. Under an exact Bragg diffraction condition, the phase shift jumps by where the dark thickness fringes appear in the corresponding bright-field image.

研究分野：材料工学

キーワード：透過電子顕微鏡 電子線ホログラフィー 位相シフト 動力的電子回折

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、電子線ホログラフィー技術はハードウェアの面で大きな発展があった。たとえば、(1) バイプリズムを二段にすることでフレネル縞のない格段に良質な電子干渉縞が得られるようになった[M.Ikeda et al. J. Electron Microsc.60(2011)353-358]。 (2) これまでは試料のエッジ近傍しか観察できなかったが、分離照射ホログラフィー法により試料の内陸部でもホログラムが撮影できるようになった[T.Tanigaki et al. Ultramicrosc. 137(2014)7-11]。 (3) 現在、超高压収差補正ホログラフィー電頭の開発が進められ、原子分解能ホログラフィーが可能になりつつある状況にある。こうした、ハード面の進歩に伴い、得られたデータの解析も従来のものよりも踏み込んだ高度な解析が求められている。そこで本研究では、これまで電子の運動学的な散乱理論に基づいたデータ解析法をさらに発展させた「電子線の多重散乱の効果を考慮した解析技術の確立」を目指した。

これまでの電子線ホログラフィーにおける電場解析では、結晶中の電子線は結晶の平均内部ポテンシャルに比例する形で位相が変化するという仮定に基づいて解析されている(つまり結晶中で電子線の速度が物質に応じて変化し、屈折率が生じている)。この過程は、透過波方向の結晶構造因子のみを考慮した近似に対応している。実際の結晶中では結晶方位に応じて様々なブラッグ反射が生じており、電子波の位相も透過波の結晶構造因子だけでなく、散乱波の結晶構造因子の影響も強く受けている。2014年に開かれた顕微鏡の国際会議(IMC2014)のホログラフィーのセッションにおいても位相変化の結晶方位依存性も議論の対象となった。この方位依存性は回折波の構造因子も考慮した動力的回折理論を用いると説明が可能と考えられた。研究コミュニティにおいても結晶方位依存性を考慮する必要性が認識されているが、当時は、動力的効果を組み入れた解析を系統的に示した研究はなかった。

代表者らは2012年から鉄ベースの低損失ナノ結晶軟磁性体の磁区構造観察に関する研究にかかわっており、TEM(ローレンツ顕微鏡法)を用いた磁壁移動の動的観察等を行ってきた。より詳細な磁区構造を観察するために電子線ホログラフィーによる磁束分布の観察も並行して行っているが、ナノ結晶材料では視野範囲に結晶方位が揃っていない多数の結晶粒が存在しており、それらが個別にブラッグ散乱を起こすため、通常の位相再生の方法では回折の影響による位相シフトが磁束分布の情報に重畳してしまう。回折の影響を低減するには、通常の磁場と電場の情報を分離する方法(=ホログラム撮影後、試料を反転させて回折条件を反転前と合わせたのち再びホログラムを撮影し、得られた二つの位相再生像から位相の差をとる)を行うと、ある程度は低減できるが、とくに結晶方位がブラッグ条件に近い場合、試料傾斜に対して位相変化が大変敏感であることが経験的にわかっており、正確なデータの解釈が難しい。そこで、得られた位相再生像を正しく解釈し、かつ、解析の精度を上げるためには、電子線穂ホログラフィーにも電子線の多重散乱の効果を考慮することが不可欠だと考え、本課題の着想に至った。

2. 研究の目的

透過電子顕微鏡を用いた電磁場解析の手法である電子線ホログラフィーをもちいて結晶性の試料を解析する際、しばしば電子線の回折現象が正確な解析の妨げとなり、ブラッグ条件からなるべく外した条件でホログラムを撮影する処置がとられてきた。しかし、実用材料への展開が進む中、結晶粒界における磁場解析等、回折による位相変化を考慮すべき課題が増えている。本研究では、電子線の試料中での多重散乱を考慮した動力的回折理論を用いて、結晶試料内部の電子線の振る舞いをより正確に把握した解析手法を確立し、電子線ホログラフィーの適用範囲の拡張を図れるようにすることである。

3. 研究の方法

動力的回折効果の影響を考慮した電子線ホログラフィー解析手法を確立するために、まず、電子線の位相シフト量を計算するシミュレーションプログラムを開発した。本プログラムは申請者が過去に開発したBethe法による回折強度計算プログラムを、本研究課題において改造したものである。次に標準試料を用いて電子線ホログラフィーの実験を行い、実験結果とシミュレーション結果を比較することで手法の評価を行った。標準試料を用いた実験ではSi単結晶を用いて回折効果が電子線の位相に及ぼす影響を電子線ホログラフィーにより調べた。

4. 研究成果

(1) シミュレーションプログラムの開発

動力的回折理論(Bethe法)で「回折強度」を計算するには、通常次式(波動関数の解)の絶対値の二乗を計算する。

$$\psi = \sum_j \alpha^{(j)} C_0^{(j)} \exp(2\pi i \gamma^{(j)} t) \quad \dots(1)$$

ここで、 $\alpha^{(j)}$ はブロッホ波の励起係数、 C は固有ベクトル、 λ は固有値、 t は試料厚さである(、 C_0 の値はシュレディンガー方程式を解くことで得られる)。この式(1)は強度を計算するための式であるため、計算を簡単にするための省略が含まれており、この式からは位相シフト量を直接計算することはできない。電子線ホログラフィーの位相再生像に現れる位相シフト量は真空領域を通過する電子の位相と、物質を透過した電子の位相の差なので、それを計算するには、

まず、式(1)において省略された位相の項を補うことで物質を透過した電子の位相が計算し、次に、真空を透過した際の電子の位相を計算して、その差をとる必要がある。本研究においては、考察の結果、下の式(2)を計算すると、その絶対値の二乗は強度となり、位相は電子線ホログラフィーで得られる位相シフトに対応する値になることを見出した。

$$\psi = \exp(i\sigma \int_0^t V_0 dt) \sum_j \alpha^{(j)} C_0^{(j)} \exp(2\pi i \gamma^{(j)} t) \dots (2)$$

ここで σ は相互作用定数、 V_0 は平均内部ポテンシャルである。この式を用いることで位相シフトの回折条件への依存性を計算できるようになった(式中の α 、 C_0 は回折条件に依存するため)。計算するためのコードは FORTRAN および Python を用いて独自に作成した。

(2) 標準試料を用いた試料の評価

透過波の位相シフトに動力的回折効果が実際に起こっているか調べるために、Si 単結晶で標準試料を作製し、位相シフトをホログラフィーで評価した。<100> Si ウェハから FIB を用いてエッジ部分の角度が 52° になるような楔形の試料を切り出し観察用試料とした。220 系統列励起条件で 220 反射がブラッグ条件を満たすように試料を傾斜し(二波励起条件) 更に、入射電子線方向を少しずつ傾斜させることで、回折条件を系統的に変化させながら、明視野像とホログラムを撮影した。図 1 に 220 ブラッグ条件近傍の明視野像(上段) 位相再生像(中段)、位相シフトのプロファイル(下段)を示す。各列ごとに電子線の入射条件を少しずつ変えており、左では励起誤差 S_{220} が負となる方向、右は励起誤差 S_{220} が正となる方向である。位相シフトプロファイルから、励起誤差が負の時、試料厚さに対する位相シフトの傾きは大きく、励起誤差が正の時、位相シフトの傾きが小さくなっている様子が観察された。また、励起誤差が 0 に近い時(ブラッグ条件)では、位相シフトがジャンプする様子が観察された。これらの特徴は従来の平均内部ポテンシャルのみを考慮した位相シフトのモデルでは説明できないため、動力的回折効果だと考えられる。次に図 2 に式(2)の計算結果を示す。図 2(i)は式(2)の複素数の値を、試料厚さを媒介変数として複素平面にプロットしたもので、原点から軌跡までの距離の二乗が電子線強度、軌跡上の点と原点と実数軸のなす角度が位相シフト量に対応している。図 2(ii)は電子線強度を、図 2(iii)は位相シフト量を試料厚さに対してプロットしたものである。列の a, b, c は電子線の入射方向に対応しており、220 反射の励起誤差はそれぞれ a では負、b ではゼロ(ブラッグ条件)、c では正である。図 2 において赤線でプロットした領域は試料厚さが 20 nm から 80 nm の領域で、図 2(i)の複素平面上では小ループを形成しているが、このループが a では原点を内包し、b では原点を通過し、c では原点を含まない。これが、各回折条件での位相シフトの傾きに対応していることがわかる。この計算結果は図 1 の実験結果と良い対応を示している。本実験は典型的な 2 波励起の条件で行われており、他の結晶試料においても同様の傾向が見られると考えられる。

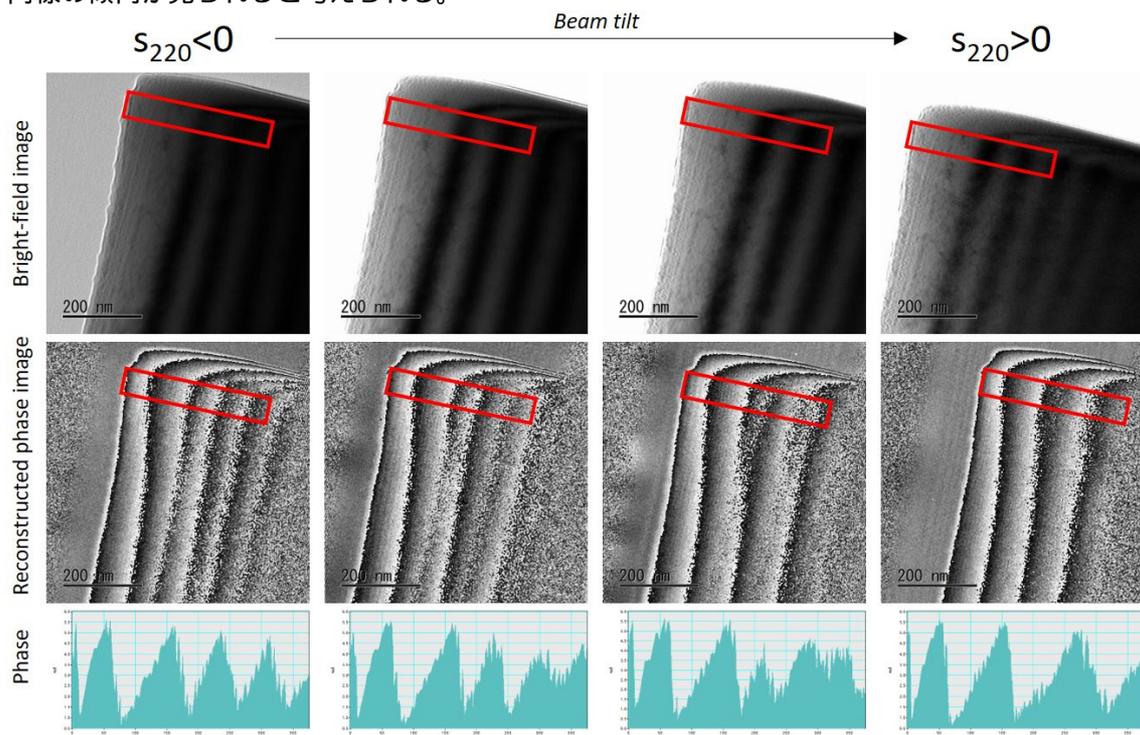


図 1 くさび形 Si 単結晶の 220 ブラッグ回折条件近傍での明視野像、位相再生像、位相シフトプロファイル。

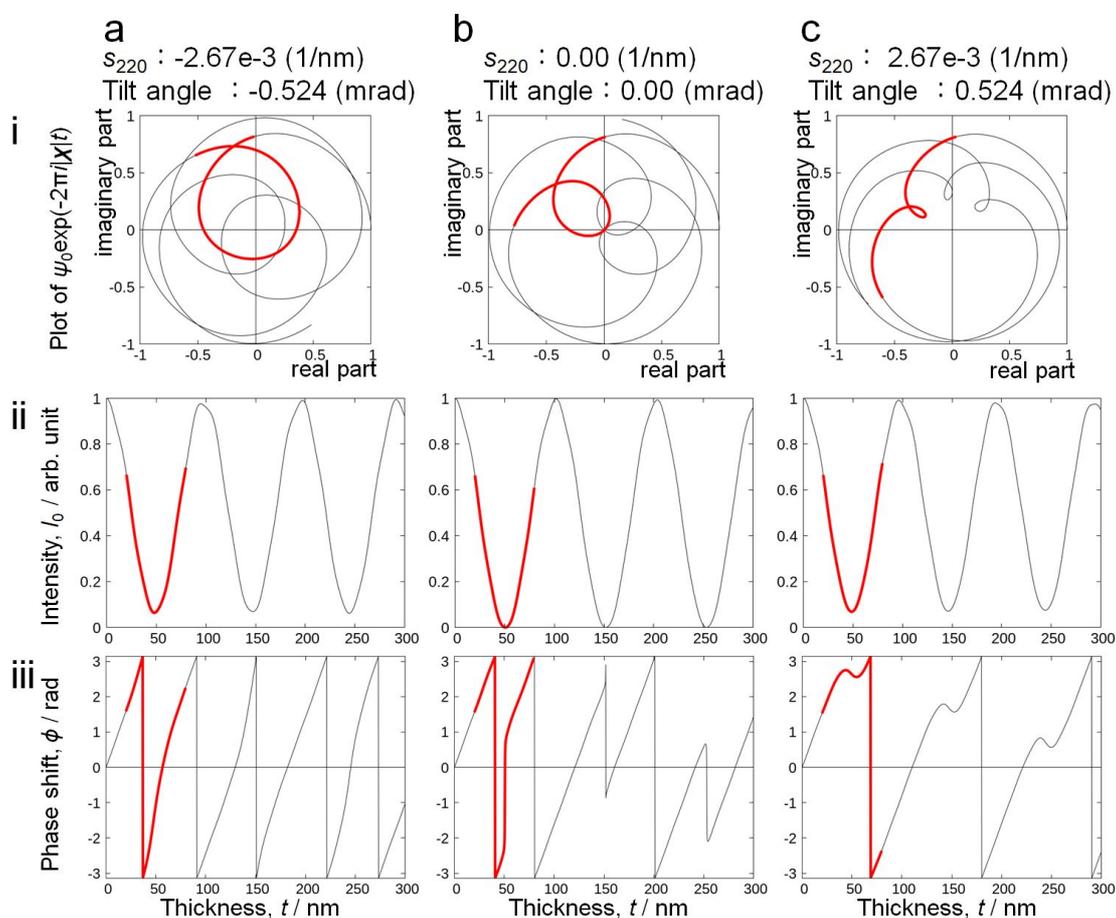


図2 動力的回折理論による計算結果。列 a, b, c は回折条件。(i)式2を試料厚さを媒介変数として複素平面にプロットした図。(ii)220 反射の回折強度の試料厚さ依存性。(iii)透過波の位相シフト量の試料厚さ依存性。赤の太線は試料厚さが 20 nm から 80 nm までの領域に対応している。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- [1] Z. Akase, D. Shindo, “Effects of Dynamical Electron Diffraction on Phase Shift Detected by Electron Holography”, Materials Transactions, 60(10),(2019), in press.
<https://doi.org/10.2320/matertrans.MT-MI2019007>

〔学会発表〕(計 8 件)

- [1] Z. Akase and D. Shindo, “Effect of Dynamical Electron Diffraction on Phase Shift Studied by Electron Holography”, International Workshop of Ultra-High-Resolution on Microscopy 2019, Hatoyama (2019.2.22-2019.2.23)
- [2] 赤瀬善太郎, 進藤大輔 「ローレンツ顕微鏡法および電子線ホログラフィーによる鉄系材料の磁区観察」東北大学多元物質科学研究所 第 27 回素材工学研究懇談会, 仙台 (2018.11.12- 2018.11.13)
- [3] Z. Akase and D. Shindo, “Effect of dynamical diffraction on phase shift in electron holography study”, 19th International Microscopy Congress (IMC19), Sydney, (2018.9.9-2018.9.14)
- [4] 赤瀬善太郎, 進藤大輔 「電子線ホログラフィーによる位相シフトにおける動力的回折効果の観察」日本顕微鏡学会第 73 回学術講演会, 札幌, (2017.5.30-2017.6.1)
- [5] 赤瀬善太郎, 進藤大輔 「電子線ホログラフィーによる回折波励起時の位相変化の解析」日本金属学会第 160 回春季講演大会, 八王子, (2017.3.15-2017.3.17)
- [6] 木村健太, 赤瀬善太郎, 進藤大輔, Parmanand Sharma, 牧野彰宏, 新津甲大, 谷垣俊明 「電子線ホログラフィーによるナノ結晶軟磁性材料の磁束分布の定量評価」日本金属学会第 159 回秋季講演大会, 大阪, (2016.9.21-2016.9.23)
- [7] Zentaro Akase, Tomoshiro Saito, Daisuke Shindo, Parmanand Sharma, Akihiro Makino, “Electron Holography Study of Magnetic Flux Distribution in Fe-rich Nanocrystalline Soft Magnetic Material Fe₈₅Si₂B₈P₄Cu₁” The 5th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC5), Nagoya, (2016.5.11-2016.5.13)

- [8] 木村 健太, 赤瀬 善太郎, 進藤 大輔, 新津 甲大, 谷垣 俊明, Parmanand Sharma, 牧野 彰宏 「電子線ホログラフィーによるナノ結晶軟磁性材料の定量的磁場解析の検討」日本金属学会第 158 回春期講演大会,日本,東京,(2016.3.23-2016.3.25)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況(計 0 件)
- 取得状況(計 0 件)

6 . 研究組織

(2)研究協力者

研究協力者氏名：進藤 大輔

ローマ字氏名：Shindo Daisuke

研究協力者氏名：村上 恭和

ローマ字氏名：Murakami Yasukazu

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。