

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02624

研究課題名(和文) ソフトマテリアル解析を可能とする電子計数型透過電子顕微鏡法の要素技術開発

研究課題名(英文) Transmission electron microscopy for soft materials with electron counting technique

研究代表者

木本 浩司 (KIMOTO, Koji)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・拠点長

研究者番号：90354399

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：透過電子顕微鏡法(TEM)は広範な材料の微細構造観察に適しているが、いわゆるソフトマテリアル群への適用は電子線損傷などから制限されている。本研究では、電子計数型透過電子顕微鏡法の要素技術を開発するとともに、各種材料への適用を行った。まず電子一個が作り出す検出器信号強度を様々な検出器群(6種)について加速電圧依存性も含めて定量計測した。次に計測結果をTEM装置にソフトウェアとして組み込み、強度を従来の任意単位から電子数へと自動変換されるようにツール化した。サブピコアンペアレベルの電流計測も可能となった。同装置を使って、結晶構造解析や局所温度計測あるいはSTEMの高周波計測などを行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子計数型透過電子顕微鏡法にすることにより、STEM/TEM像観察やEELS分析等で様々な利点がある。電子を一つ一つ数えることができれば、ソフトマテリアルに対し有効な高感度計測となる。また、ドーズ量 $[e^-/2]$ から電子線損傷を議論することが可能になり、ポアソン分布に基づき電子数 N から予想される量子ノイズ (\sqrt{N}/N) を議論できる。その結果、計測システムにおいて、計測ノイズと量子ノイズを個別に議論できる。本研究による電子計数型計測は、ソフトマテリアル計測における「試料損傷」「感度」「計測ノイズ」等の諸課題を解決するための基盤技術を確立したと言える。

研究成果の概要(英文)：Transmission electron microscopy (TEM) is effective for nano structure analysis; however, its application to so-called soft materials is limited due to electron beam damage during TEM observation. In this study, we developed basic techniques of electron-counting electron microscopy and applied them to various materials. First, we quantitatively measured the signal intensity produced by a single electron at various (6 types) cameras for TEM at different acceleration voltage (30-300 kV). Next, we incorporated these measurements into software that automatically converts the measured intensity from arbitrary units to the number of electrons. Using this equipment, local crystal structure analysis by STEM/TEM, local temperature measurement by EELS, and high-frequency STEM observation were performed.

研究分野：material characterization

キーワード：electron microscopy TEM structure analysis soft materials EELS electron counting STEM

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

物質材料の微細構造の評価は、研究開発の基盤であり、さまざまな計測手法の中でも透過電子顕微鏡法 (Transmission Electron Microscopy; TEM) は広範な材料に利用されている。しかし例えばリチウム蓄電池材料など軽元素を含む材料や、グラフェンやナノチューブなど原子レベルで制御されたナノ材料、複雑な構造骨格を有するゼオライト、有機分子・高分子材料等では、観察中の電子線損傷が著しく、TEM の適用が大幅に制限されている。それらのいわゆるソフトマテリアルの材料解析を可能とする電子顕微鏡の要素技術の開発が求められている。開発指針の一つが、できるだけ電子線量を減らし、高効率・高感度に電子を計測することである。

TEM 像や電子回折図形あるいは EELS のスペクトル等さまざまな TEM 計測においては、多くの場合、信号強度は任意単位 (arbitrary unit) となっており、強弱のみが議論される。究極の高感度観察とは、電子を一つ一つ数えること (すなわち電子計数型計測) にあり、強度は任意単位ではなく電子数 [e⁻] で表されるべきである。電子を一つ一つ数えることができれば、高感度計測となるだけでなく、ドーズ量 [e⁻/²] から電子線損傷を議論できるようになり、ポアソン分布に基づき電子数 N から予想される量子ノイズ (\sqrt{N}/N) を予測できる。その結果計測システムにおいて、計測ノイズと量子ノイズを個別に議論できる。以上の様に、電子計数型計測技術は、ソフトマテリアル計測のための「試料損傷」「高感度計測」「計測ノイズ」の課題を解決するための基本要素技術である。

2. 研究の目的

本研究では、ソフトマテリアル評価のため、電子を計数できる電子顕微鏡法のための要素技術を開発し、STEM および EELS への展開を行う。検出系を電子計数化することにより、いわゆる定性的な計測とは異なる検出精度と分析感度を目指す。まず、電子計数を可能とするため、様々な検出系 (CCD カメラ、CMOS カメラほか) について検出効率 (変換効率) を定量的に評価する (フェーズ I)。次にそれらを TEM 像観察や EELS 計測の装置群に組み込む (フェーズ II)。最終的には、TEM/STEM 像観察や EELS 計測においてそれらを利用し、材料評価に生かす (フェーズ III)。

3. 研究の方法

上記研究の目的で述べたように、研究は次の 3 つのフェーズで行った。以下フェーズごとにその研究方法を述べる。

(1) フェーズ I : 検出効率の定量評価 (2020 年)

NIMS 既存のシンチレーターを備えた検出器 (STEM-HAADF 用、EELS 用 CCD および CMOS) の、単電子検出領域の応答特性評価と加速電圧依存性を評価した。単電子がどれくらいの信号を与えるかを定量計測した。加速電圧を変えると発光効率が変わるだけでなく、シンチレーター内の電子の散乱分布も変わるので、定量的に評価する必要がある。例えば STEM プロブ電流 10pA で画素滞在時間 10 μ s 中に照射される電子は 624 個であり、1% の HAADF 像強度では電子 6 個が検出される。このように電子計数の観点からプロブ電流と STEM 画素滞在時間などを最適化し、超高感度 STEM 計測のための計測条件を確立した。

(2) フェーズ II : 手法のツール化および装置組み込み (2020-2021 年度)

開発した手法のツール化として、以下のことを行った。シンチレーター型 CCD、EELS 用高速 CCD、高輝度シンチレーター型 CCD、シンチレーター型 CMOS、EELS 用高速 CMOS など現在使用されている主要な検出器を一部追加して計測し、加速電圧 (30, 40, 80, 300kV) 毎の電子計数のために必要な変換係数 (conversion efficiency) を計測し、ユーザーが使えるツールとするためのソフトウェア組み込みを行った。具体的には、加速電圧や検出器ごとに変換効率をソフトウェアで書き換え、計測強度を自動的に電子数に変換した。その結果、蛍光版ではできないサブピコアンペアレベルの微弱電流も計測できるようになり、低損傷観察用の有効なツールとなった。

(3) フェーズ III : 材料評価 (2021 年度 - 2022 年度)

材料応用として、TEM による材料評価が不可欠な、ナノチューブやナノワイヤーあるいは、半導体素子に広く用いられる窒化シリコンなどに適用した。計測手法としては、高分解能 TEM 像、特に低加速電圧における TEM 像観察、電子エネルギー損失分光法についての計測に利用した。なお、定量取得データについては、NIMS が進める Research Data Express に登録し、電子顕微鏡の専門家だけでなくアクセスできるように準備を進めた。

4. 研究成果

(1) 変換効率の計測

計測方法

従来の一般的な電子顕微鏡装置では、蛍光板などにピコアンメーターを接続し、プロブ電流

として計測されていた。この場合、非常に弱い電流(例えば 1 pA)では計測できなかつたり、蛍光板表面で反射されてしまう電子が一定量あり実際の電流よりも低く観察されるなど定量性に課題があった。電流を正確に計測するための手段として、一般にはファラデーカップが用いられるが、本研究では電子分光器に備えられた電氣的に絶縁されたドリフトチューブを用いて同様の計測を行った。定量的に計測した電流を用いて、画像検出システムにおける出力(count)を電子数(e-)に換算する変換効率(counts/e-)を計測した。

計測結果

本研究で得られた変換効率を表 1 に示す。現在利用できる主たる画像検出器 5 種について、様々な加速電圧で計測した。

表 1 計測した変換効率 (conversion efficiency) 単位は[count/e-]

装置名 (メーカー: Gatan Inc.)	Acceleration voltage [kV]				備考
	30	40	80	300	
UltraScan US1000	-	10.4	10.2	3.7	CCD
OneView (non standard)	-	25.7	-	25.0	CMOS
GIF Quantum ERS	-	13.2	13.2	4.52	CCD
GIF Continuum HR	-	15.8	46.6	25.8	CMOS
OneView (standard)	23.0	-	74.6	36.8	CMOS
GIF Quantum ERS (non standard)	10.2	-	27.6	11.3	CCD

表 1 から明らかなように加速電圧によって変換効率は大きく変わる。シンチレーター式画像検出器の場合、変換効率以外にシンチレーターによるじみ(点広がり関数、Point Spread Function)の特性もかわるため、単に明るく光れば良いシンチレーターとは限らない。また検出器ごとに読み出しノイズ・暗電流ノイズは異なるため、ダイナミックレンジや検出感度はそれとの比較により決定される。一般に CCD と比べ CMOS 検出器のノイズは大きい。上記の CMOS 装置群では読み出しノイズおよび暗電流ノイズ合計で 10 count 程度とされており、単電子レベルの計測は原理的には可能であることが分かった。なお、シンチレーター型ではない直接検出型検出器の単電子レベルの計測については専門誌に共同研究結果を報告した[1]。また、計測結果の一部は、代表者が全体の 4 割を執筆した「物質・材料研究のための透過電子顕微鏡(講談社 2020)」の中にも具体的な数値(2021 第 2 刷にて一部改訂)として記載した[2]。

(2) 手法のツール化および装置組み込み

開発指針

成果をツール化するためには、ユーザーが設定条件(例えば加速電圧)を意識することなく使えるようにするのが望ましい。また、電子数だけではなくプローブ電流も計測したいことが多い。特にピコアンメーターで計測することが難しい 1 pA 以下でも計測できるようにする必要がある。本研究では Gatan 社の DigitalMicrograph の Script による自動化を行った(技術情報を著者が所属するグループのホームページにて公開[3])。開発 Script では、加速電圧などの設定を自動取得し、それぞれのカメラの Global Tag (DigitalMicrograph の計測条件などソフトウェアに共通するメタデータを保存するタグ情報)に表 1 の変換効率を書き込む。計測結果の強度スケール(Intensity Scale)を用いて、計測結果(counts)が電子数(e-)に変換できる。電流を計測する場合には、カメラの露光時間をその場で Image Tag(個別のデータのメタデータを保存するタグ情報)から取得するとともに、画素全体で検出された電子数を積算する。電流は単位時間[s]当たりの電荷量[C]であり、素電荷(1.6×10^{-19} [C])から電流[A]を計算できる。

開発結果

実際に NIMS 設置装置に組み込んだ。図 1 に組み込んだメニューのスクリーンショットを示す。

- SetConversionEfficiency: 加速電圧に依存する変換効率を設定する。
- Current tracker: 任意のカメラに入射する電流を連続的に計測・グラフ化する。
- Measure Probe current: 選択領域のプローブ電流を計算する

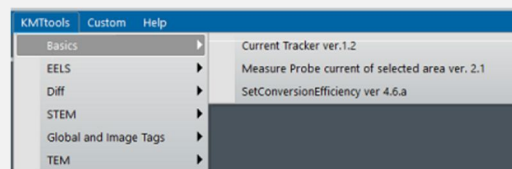


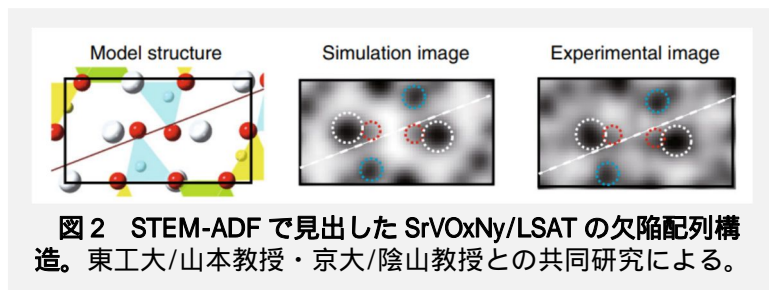
図 1 NIMS の電子顕微鏡装置に組み込んだスクリプトのメニュー画面。

(3) 材料評価

無機ソフトマテリアルの観察

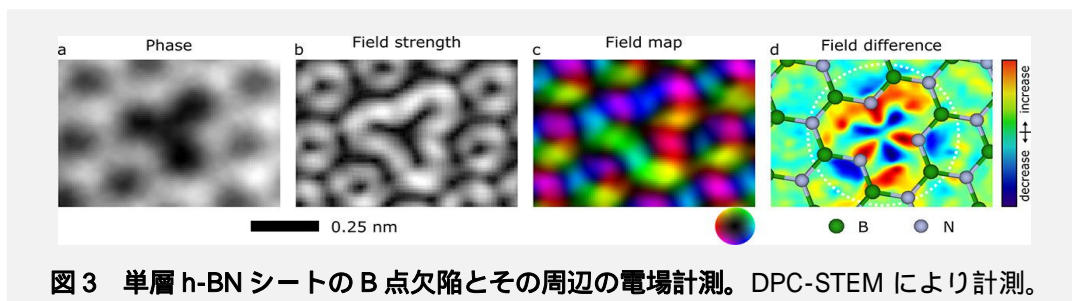
無機ソフトマテリアルとして H₂O 分子を含む材料群の計測を行った(東工大/前田教授との共同研究[4])。真空の透過電子顕微鏡内に入れるだけで水分子が脱離する材料も多いが、一部は STEM 観察中に水分子が脱離した。観察においては、プローブ電流を 0.5 ~ 2 pA として計測した。なお開発前の従来システムでは、40 pA 以下は定量的に計測できない。基本的な計測技術を蓄積した研究結果である。

他の材料への応用として、アニオン欠陥整列構造の解析結果を示す(東工大/山本教授・京大/陰山教授との共同研究)[5]。STEMの環状明視野(Annular Bright-Field, ABF)を用いて、LSAT(アルミニウムタンタル酸ランタンストロンチウム)基板上に製膜したSrVO_xNy試料中のアニオン欠陥配列を評価した。この特異な欠陥配列構造はバルク結晶に対するX線回折(XRD)計測で見出されたものとは異なる。当初XRDでは発見されずSTEMにより初めて観察された。しかし、電子線照射によりアニオン(0,N)欠陥の配列が乱れ、電子線損傷により欠陥がバルク中に均一に拡散してしまうことも明らかとなった。プローブ電流を2 pA以下として多重計測するなどして、初めて欠陥構造を解析できた。



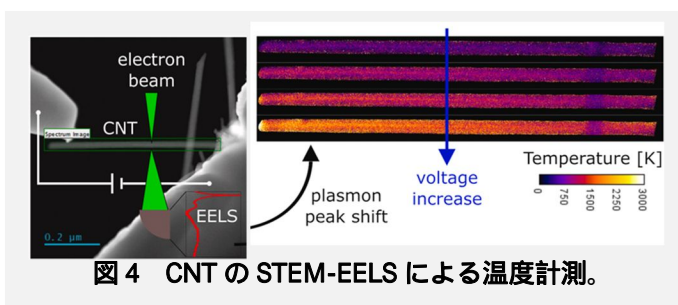
ナノ材料群への応用：STEMによる点欠陥の電位計測

グラフェンやナノシートといった2次元材料はknock-on電子線損傷で点欠陥が導入されるなど観察中のダメージが構造変化や物性に与える影響が大きい。プローブ電流を定量的に評価しつつ、点欠陥の周辺に発生する電位をSTEMの手法の一つである微分位相コントラスト法で解析した[6]。そのほか試料端での電位の発生も計測した。これらは、例えば欠陥やキックサイトが元素吸着等に重要な役割を示していることを示唆しており、今後触媒材料研究等への発展も期待できる



ナノ材料群への応用：EELSによるナノレベルその場温度計測

プローブ電流を定量的に確認できることで、STEM-EELSの計測手法も定量できる。STEMによる物性計測の拡張として、カーボンナノチューブ(CNT)に電圧を印加しつつそのジュール加熱による温度上昇をプラズモンロスのピークシフトを用いて計測した[7]。プローブ電流を比較的高めてポアソンノイズを低減させ、わずかなプラズモンロスピークシフトから温度を計測している。計測ノイズを議論する際に、ポアソンノイズに依存する量子ノイズがわかることから、必要とされるプローブ電流を逆に規定することができる。



超高速実時間STEM計測法の開発(ナノ構造の振動モード可視化法の開発)[2]

プローブ電流を定量的に設定できることを利用し、STEM像計測を改良することにも試みた。近年、ナノメカニカル共振器を用いたデバイスはセンシングや分子輸送などの多くの用途の他、最近では量子計算にも関連し盛んに研究されている。一方、電子顕微鏡で用いられている検出器は2 kHz程度のフレームレートに制限されており、これらナノメートルオーダーでの振動特性の解析には不十分であった。本研究ではSTEM像を超高速に取得し、得られた像を時間に対してフーリエ変換することで周波数成分毎に可視化する手法(周波数選択STEM)を新たに開発し、ナノ構造の振動モードを10 MHzの周波数で可視化する事に成功した[8]。電子線エミッターとして有望なLaB₆ナノワイヤー(Zhang, Cretu, Kimoto et al. Nat. Nanotech. 2022)の熱振動に応用することで、そのモード毎に異なる振動の様子を明瞭に捉えることに成功した。本計測結果はソフトマテリアルを直接計測対象としたものではないが、今後たとえば単分子の動的過程を高周波で計測するときなどに有効である。

その他の材料応用および計測手法開発

その他の材料応用として、電子線照射に弱い材料群の一つに SiO_2 や Si_3N_4 などの非晶質構造があげられる。著者らはこれまで、それらの準安定な材料が電子線照射によりいかに壊れるのか報告してきた(例えば、Kimoto et al. AIP Adv. 2012)。STEM 像の原子番号依存性の違いを積極的に生かす Contrast Variation 法(これまででは XRD や中性子散乱に利用されていた)により非晶質 SiO_2 の構造が解析できることを初めて示した[9]。非晶質材料は半導体用絶縁膜にも広く用いられており、その原子配列と電気的特性(特に絶縁体の場合にはバンドギャップやギャップ内準位)が重要である。民間企業と協力して $-\text{Si}_3\text{N}_4$ から非晶質に変化する際の構造解析も報告している[10]。

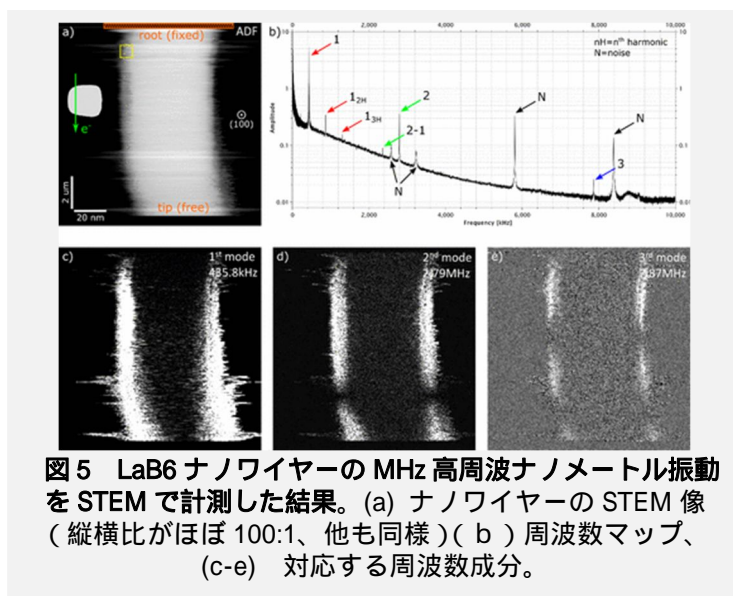


図5 LaB6 ナノワイヤーの MHz 高周波ナノメートル振動を STEM で計測した結果。(a) ナノワイヤーの STEM 像(縦横比がほぼ 100:1、他も同様)(b) 周波数マップ、(c-e) 対応する周波数成分。

計測手法においては、上記 4.-(2)で開発したツールを、まず一つの装置(Thermo Fisher Scientific 社製 Titan)に導入したのち、高いエネルギー分解能を有する他の装置(Thermo Fisher Scientific 社製 ThemisZ)にも導入し、フォノン計測において電子数の計数を可能とした[11, 12]。計測手法としてのツール化に大いに貢献できたと考えている。

<引用文献>

- [1] Haruta M, Kikkawa J, Kimoto K, et al. Comparison of detection limits of direct-counting CMOS and CCD cameras in EELS experiments. Ultramicroscopy. 2022;240:6.
- [2] 木本浩司、三石和貴、三留正則、原徹、長井拓郎。物質・材料研究のための透過電子顕微鏡：講談社；2020。
- [3] 木本浩司。DigitalMicrograph 入門 [Internet]。 Available from: <https://www.nims.go.jp/AEMG/DMindex.html>
- [4] Tang Y, Kato K, Oshima T, et al. Synthesis of Three-Layer Perovskite Oxynitride $\text{K}_2\text{Ca}_2\text{Ta}_3\text{O}_9\text{N}$ center dot $2\text{H}_2\text{O}$ and Photocatalytic Activity for H₂ Evolution under Visible Light. Inorganic Chemistry. 2020;59(15):11122-11128.
- [5] Yamamoto T, Chikamatsu A, Kitagawa S, et al. Strain-induced creation and switching of anion vacancy layers in perovskite oxynitrides. Nature Communications. 2020;11(1).
- [6] Cretu O, Ishizuka A, Yanagisawa K, et al. Atomic-Scale Electrical Field Mapping of Hexagonal Boron Nitride Defects. Acs Nano. 2021;15(3):5316-5321.
- [7] Cretu O, Tang DM, Lu DB, et al. Nanometer-level temperature mapping of Joule-heated carbon nanotubes by plasmon spectroscopy. Carbon. 2023;201:1025-1029.
- [8] Cretu O, Zhang H, Kimoto K. Direct Observation of Thermal Vibration Modes Using Frequency-Selective Electron Microscopy. Nano Letters. 2022;22(24):10034-10039.
- [9] Kimoto K, Shiga M, Kohara S, et al. Local structure analysis of disordered materials via contrast variation in scanning transmission electron microscopy. Aip Advances. 2022;12(9):6.
- [10] Asano T, Tezura M, Saitoh M, et al. Nanoscale observation of subgap excitations in beta- Si_3N_4 with a high refractive index using low-voltage monochromated STEM: a new approach to analyze the physical properties of defects in dielectric materials. Applied Physics Express. 2022;15(7).
- [11] Kikkawa J, Taniguchi T, Kimoto K. Nanometric phonon spectroscopy for diamond and cubic boron nitride. Physical Review B. 2021;104(20):6.
- [12] Kikkawa J, Kimoto K. Optical and acoustic phonon temperature measurements using electron nanoprobe and electron energy loss spectroscopy. Physical Review B. 2022;106(19):9.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Haruta Mitsutaka, Kikkawa Jun, Kimoto Koji, Kurata Hiroki	4. 巻 240
2. 論文標題 Comparison of detection limits of direct-counting CMOS and CCD cameras in EELS experiments	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ultramicroscopy	6. 最初と最後の頁 113577 ~ 113577
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ultramic.2022.113577	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 Asano Takanori, Tezura Manabu, Saitoh Masumi, Tanaka Hiroki, Kikkawa Jun, Kimoto Koji	4. 巻 15
2. 論文標題 Nanoscale observation of subgap excitations in $\text{-Si}_{3\text{N}_{4}}$ with a high refractive index using low-voltage monochromated STEM: a new approach to analyze the physical properties of defects in dielectric materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 076501 ~ 076501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac6e28	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 Cretu Ovidiu, Tang Dai-Ming, Lu Da-Bao, Da Bo, Nemoto Yoshihiro, Kawamoto Naoyuki, Mitome Masanori, Ding Zejun, Kimoto Koji	4. 巻 201
2. 論文標題 Nanometer-level temperature mapping of Joule-heated carbon nanotubes by plasmon spectroscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Carbon	6. 最初と最後の頁 1025 ~ 1029
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbon.2022.10.006	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 該当する
1. 著者名 Cretu Ovidiu, Zhang Han, Kimoto Koji	4. 巻 22
2. 論文標題 Direct Observation of Thermal Vibration Modes Using Frequency-Selective Electron Microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 10034 ~ 10039
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.2c03762	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 Kikkawa Jun, Kimoto Koji	4. 巻 106
2. 論文標題 Optical and acoustic phonon temperature measurements using electron nanoprobe and electron energy loss spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 194531-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.195431	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 Kimoto Koji, Shiga Motoki, Kohara Shinji, Kikkawa Jun, Cretu Ovidiu, Onodera Yohei, Ishizuka Kazuo	4. 巻 12
2. 論文標題 Local structure analysis of disordered materials via contrast variation in scanning transmission electron microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 095219 ~ 095219
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0104798	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 Kikkawa Jun, Taniguchi Takashi, Kimoto Koji	4. 巻 104
2. 論文標題 Nanometric phonon spectroscopy for diamond and cubic boron nitride	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L201402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.104.l201402	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 Kang Yunqing, Jiang Bo, Malgras Victor, Guo Yanna, Cretu Ovidiu, Kimoto Koji, Ashok Aditya, Wan Zhe, Li Hexing, Sugahara Yoshiyuki, Yamauchi Yusuke, Asahi Toru	4. 巻 5
2. 論文標題 Heterostructuring Mesoporous 2D Iridium Nanosheets with Amorphous Nickel Boron Oxide Layers to Improve Electrolytic Water Splitting	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Small Methods	6. 最初と最後の頁 2100679 ~ 2100679
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smt.202100679	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 Sugali Pavan Kumar Naik, Ishida Shigeyuki, Kimoto Koji, Yanagisawa Keiichi, Kamiya Yoshihisa, Tsuchiya Yoshinori, Kawashima Kenji, Yoshida Yoshiyuki, Iyo Akira, Eisaki Hiroshi, Nishio Taichiro, Ogino Hiraku	4. 巻 23
2. 論文標題 Intrinsic defect structures of polycrystalline CaKFe4As4 superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 19827 ~ 19833
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1cp02613e	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 -

1. 著者名 Roth Wieslaw J., Sasaki Takayoshi, Wolski Karol, Ebina Yasuo, Tang Dai-Ming, Michiue Yuichi, Sakai Nobuyuki, Ma Renzhi, Cretu Ovidiu, Kikkawa Jun, Kimoto Koji, Kalahurska Katarzyna, Gil Barbara, Mazur Michal, Zapotoczny Szczepan, Cejka Jiri, Grzybek Justyna, Kowalczyk Andrzej	4. 巻 143
2. 論文標題 Exfoliated Ferrierite-Related Unilamellar Nanosheets in Solution and Their Use for Preparation of Mixed Zeolite Hierarchical Structures	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 11052 ~ 11062
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.1c04081	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 Cretu Ovidiu, Ishizuka Akimitsu, Yanagisawa Keiichi, Ishizuka Kazuo, Kimoto Koji	4. 巻 15
2. 論文標題 Atomic-Scale Electrical Field Mapping of Hexagonal Boron Nitride Defects	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 5316 ~ 5321
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.0c10849	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 該当する

1. 著者名 Yamamoto T., Chikamatsu A., Kitagawa S., Izumo N., Yamashita S., Takatsu H., Ochi M., Maruyama T., Namba M., Sun W., Nakashima T., Takeiri F., Fujii K., Yashima M., Sugisawa Y., Sano M., Hirose Y., Sekiba D., Brown Craig M., Honda T., Ikeda K., Otomo T., Kuroki K., Ishida K., Mori T., Kimoto K., Hasegawa T., Kageyama H.	4. 巻 11
2. 論文標題 Strain-induced creation and switching of anion vacancy layers in perovskite oxynitrides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5923
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-19217-7	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 該当する

1. 著者名 Tang Ya, Kato Kosaku, Oshima Takayoshi, Mogi Hiroto, Miyoshi Akinobu, Fujii Kotaro, Yanagisawa Kei-ichi, Kimoto Koji, Yamakata Akira, Yashima Masatomo, Maeda Kazuhiko	4. 巻 59
2. 論文標題 Synthesis of Three-Layer Perovskite Oxynitride K ₂ Ca ₂ Ta ₃ O ₉ N · 2H ₂ O and Photocatalytic Activity for H ₂ Evolution under Visible Light	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 11122 ~ 11128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.0c01607	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 Oshima Takayoshi, Ichibha Tom, Oqmhula Kenji, Hibino Keisuke, Mogi Hiroto, Yamashita Shunsuke, Fujii Kotaro, Miseki Yugo, Hongo Kenta, Lu Daling, Maezono Ryo, Sayama Kazuhiro, Yashima Masatomo, Kimoto Koji, Kato Hideki, Kakahana Masato, Kageyama Hiroshi, Maeda Kazuhiko	4. 巻 59
2. 論文標題 Two Dimensional Perovskite Oxynitride K ₂ LaTa ₂ O ₆ N with an H ⁺ /K ⁺ Exchangeability in Aqueous Solution Forming a Stable Photocatalyst for Visible Light H ₂ Evolution	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 9736 ~ 9743
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202002534	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 Ohtani Ryo, Matsunari Hiromu, Yamamoto Takafumi, Kimoto Koji, Isobe Masaaki, Fujii Kotaro, Yashima Masatomo, Fujii Susumu, Kuwabara Akihide, Hijikata Yuh, Noro Shin ichiro, Ohba Masaaki, Kageyama Hiroshi, Hayami Shinya	4. 巻 59
2. 論文標題 Responsive Four Coordinate Iron(II) Nodes in FePd(CN) ₄	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 19254 ~ 19259
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202008187	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 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 透過電子顕微鏡による微細構造解析の現状
3. 学会等名 2023年第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 透過電子顕微鏡による材料評価と解析データの取り扱い
3. 学会等名 マテリアル先端リサーチインフラ・マテリアルの高度循環のための技術領域セミナー（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 物質材料研究機構における透過電子顕微鏡を用いた研究
3. 学会等名 第17回 SAT 研究情報交換会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 走査透過電子顕微鏡法(STEM)やEELS/EDSを用いた分析法
3. 学会等名 応用物理学会東海支部基礎セミナー（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 走査透過電子顕微鏡法(STEM)入門
3. 学会等名 第32回(2022)電子顕微鏡大学（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 走査透過電子顕微鏡法(STEM)の基礎
3. 学会等名 第36回分析電子顕微鏡討論会, 日本顕微鏡学会 分析電子顕微鏡討論会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 走査透過電子顕微鏡法(STEM)入門
3. 学会等名 第31回電子顕微鏡大学 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木本 浩司
2. 発表標題 NIMSでの電子顕微鏡による物質・材料評価 (モノクロメーターおよびSTEMを用いた無機材料評価の現状)
3. 学会等名 「次世代電子顕微鏡法」社会連携講座 第6回 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Koji Kimoto, Jun Kikkawa, Ovidiu Cretu
2. 発表標題 Material characterization using advanced transmission electron microscopy
3. 学会等名 The 10th International Workshop on Advanced Materials Science and Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木本 浩司、吉川 純、CRETU Ovidiu、柳澤 圭一、石塚 和夫
2. 発表標題 走査透過電子顕微鏡法(STEM)入門
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 木本浩司
2. 発表標題 複合アニオン化合物の透過電子顕微鏡による評価(14pC1-6)
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 木本 浩司、三石 和貴、三留 正則、原 徹、長井 拓郎	4. 発行年 2020年
2. 出版社 講談社	5. 総ページ数 400
3. 書名 物質・材料研究のための透過電子顕微鏡	

〔産業財産権〕

〔その他〕

電子顕微鏡グループ > 研究 https://www.nims.go.jp/AEMG/index.html AEMG of NIMS > Research https://www.nims.go.jp/AEMG/research_E.html 透過電子顕微鏡のデータ管理とDigitalMicrograph https://www.nims.go.jp/AEMG/recent/DigitalMicrographData_J.html 電子顕微鏡グループ > 研究 https://www.nims.go.jp/AEMG/research_J.html AEMG of NIMS https://www.nims.go.jp/AEMG/research_E.html DigitalMicrograph入門 https://www.nims.go.jp/AEMG/DMindex.html

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
研究分担者	吉川 純 (Kikkawa Jun) (20435754)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・主任研究員 (82108)	
研究分担者	Cretu Ovidiu (Cretu Ovidiu) (60770112)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・研究員 (82108)	

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