

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560036

研究課題名（和文） 2次元検出器による共焦点電子顕微鏡法の実現

研究課題名（英文） Scanning confocal electron microscopy using two dimensional CCD

研究代表者

三石 和貴 (MITSUISHI KAZUTAKA)

独立行政法人物質・材料研究機構・表界面構造・物性ユニット・主幹研究員

研究者番号：40354328

研究成果の概要（和文）：電子顕微鏡では、試料の深さ方向の情報は平均化されており、得ることが難しい。共焦点電子顕微鏡法はこれらの情報を簡便に高分解能で得ることができる方法として期待されているが、現状の方法では装置に大きな改造を施す必要があり、発展と普及に大きな障害となっている。本研究では、顕微鏡に通常備えられている 2 次元 CCD カメラを利用することで共焦点電子顕微鏡法を実現するとともに、理論計算による解釈と併せて高分解能化を目指し研究を行った。

研究成果の概要（英文）：Scanning confocal electron microscopy (SCEM) is a technique that enable to obtain 3D information of a specimen that is usually lost in conventional observation. In this work, SCEM is realized in a conventional microscope by using 2D CCD instead of using a combination of a descana coil and pinhole aperture enabling SCEM in conventional microscopes.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2010 年度	200,000	60,000	260,000
2011 年度	200,000	60,000	260,000
年度			
年度			
総計	3,800,000	1,140,000	4,940,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 薄膜・表界面物性

キーワード：電子顕微鏡

## 1. 研究開始当初の背景

透過型電子顕微鏡は、原子レベルの構造や電子状態を直接見ることができる装置としてすでに確固たる地位を築いている。これまでに電解放出型電子銃や、収差補正技術など

の開発によって、その分解能は 0.05nm 以下に達しようとしており、電子線エネルギー損失分光 (EELS) によって原子種や結合状態も原子レベルで調べることが可能になっている。しかしながら電子顕微鏡では、試料

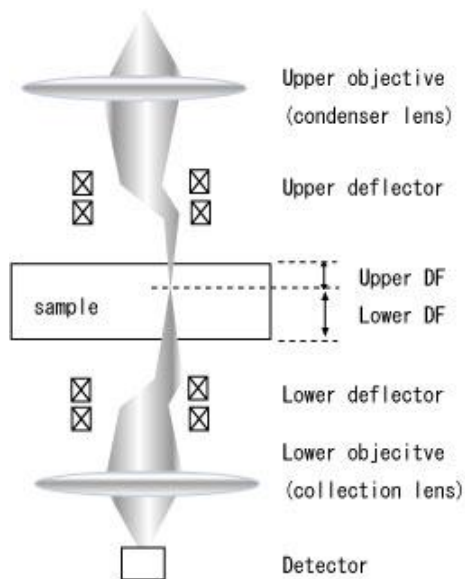


図 1. 共焦点電子顕微鏡法の模式図.

を透過した電子を用いて結像や EELS による分光を行うため、得られる情報は試料の厚さ方向に平均化された影絵のようなものである。一方で、近年のデバイス構造、材料制御の微細化や高密度化によって、試料の 3 次元的情報を得る要求は日増しに高まっているといえる。現在、このような要求にこたえる電子顕微鏡法としては電子線トモグラフィーがあり、精力的な研究が行われている。しかしながら 3 次元トモグラフィーでは、試料を回転させながら多くの像を取得する必要があり、試料形状が円筒に近いものが望ましいほか、強い回折波を励起しないなどの条件が必要であり、より簡便な方法が求められていた。

共焦点電子顕微鏡法(図 1)は、光学顕微鏡で行われている共焦点顕微鏡の電子線版であり、試料の上に配置されたレンズ系(Upper Objective)によって電子線を収束させる。この収束した点に試料下に配置したレンズ系(Lower Objective)の焦点を合わせ、共焦点の状態にすることによって、この収束した点の情報を取得するものである。この焦点位置を 3 次元的にスキャンすることによ

って、断層像を含む 3 次元的情報を得ることができる。この手法は、2003 年にアメリカ・アルゴンヌ国立研究所のグループによって提案され、厚く切り出されたデバイス試料の内部構造を鮮明に映し出せるとの実証から注目を集めたが、当時の分解能は低くマイクロメートルオーダーであった。その後は余り進展がなかったが、昨年頃から、収差補正技術の発展によって上下のレンズ両方に収差補正装置を取り付けた装置が現実的になるにつれて、共焦点電子顕微鏡をより高分解能化する研究が行われ始めている。

しかしながら、共焦点電子顕微鏡の高分解能化には依然、大きく二つの問題がある。

ひとつは、原子レベルまで迫ろうとする場合、電子線では材料との相互作用が強く、多重散乱の影響により光学顕微鏡で用いられているような、一回散乱の近似による像特性の評価が当てはまらない事である。そのため、コントラストの反転などの複雑な振る舞いをする事が予想される。

二つ目は試料より上のレンズ系で収束された電子は、スキャンコイルによって試料上をスキャンするが、これに同期してスキャンした変位量を検出器位置まで振り戻す(デスクャン)事が必要である。これは通常の電子顕微鏡には備えられていないため、装置に大きな改造が必要となる。また、この同期は、位置と角度が分解能と同じレベルで一致していなければならない、原子レベルの共焦点電子顕微鏡を実現する上での最大の障害になっている。

## 2. 研究の目的

本研究ではこれらの問題を解決するため、共焦点電子顕微鏡法での結像のメカニズムを明らかにする。また、スキャン・デスクャンに関わる問題を根本から解決するため

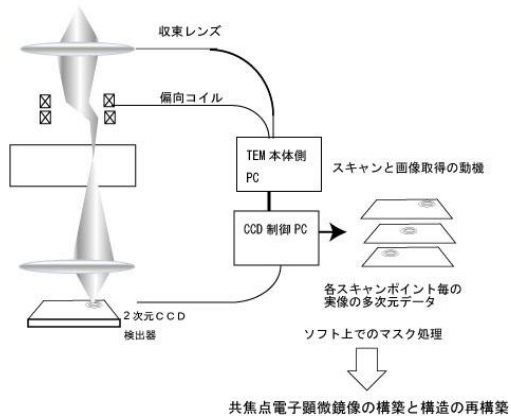


図2 本研究で実現を目指した、2次元検出器を用いた共焦点電子顕微鏡法の模式図。

に、デスキャンすることをやめ、スキャンされた走査プローブ電子をそれぞれのスキャン位置毎に2次元 CCD で記録し、それをあところピンホールマスク処理を行うことにより、共焦点顕微鏡法を実現するという方法を確立する。これにより、スキャン位置ごとに2次元 CCD の画像を同期させて取得することでデスキャンを行うために必要なコイルが不要となり、通常の電子顕微鏡を用いて共焦点光学系を実現することが可能となり、ひろく一般的に使われる可能性が広がる他、高分解能化にむけて大きな障害と考えられる、スキャン・デスキャンの角度を含めた同期・調整が不要となるためより容易に高分解能を達成することが可能となり、本手法の大きな発展が期待される。

### 3. 研究の方法

本研究で、理論的な解析と、実験の二本柱で進めていく。まず、共焦点電子顕微鏡の結像特性をシミュレーションと併せて理解し

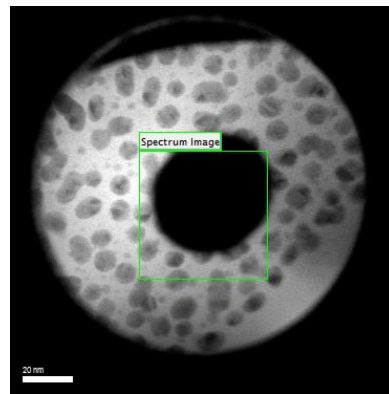


図3 環状暗視野検出器上で観察される、試料のシャドーイメージ。

ていくことでより詳細に明らかにする。

実験においてはまず、2次元検出器を用いることでデスキャンコイルがなくても共焦点電子顕微鏡法が実現可能であることを実験的に示す。結像特性に関しては、多波動力学計算手法にもとづく画像シミュレーションと、Point Spread Function (PSF) にもとづく像解釈から SCEM 像の振る舞いを理解する。

### 4. 研究成果

図は、本研究で実現した2次元 CCD を用いた共焦点電子顕微鏡法のハードウェアの模式図である。制御 PC で発生したスキャン信号によって収束電子線をスキャンすると同時に、CCD 検出器の画像を取得し、スキャン(2次元)と CCD 画像(2次元)の4次元データセットを取得する。得られた CCD 画像からスキャン位置に対応した場所の強度得ることで、共焦点電子顕微鏡画像を得ることができる。

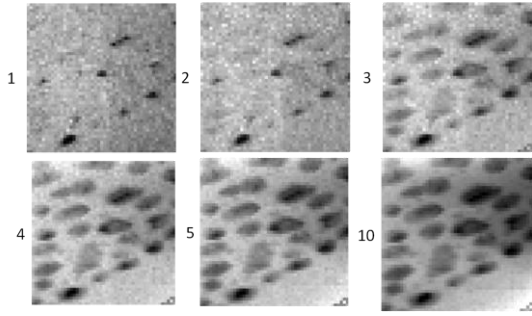


図4 カーボン支持膜状の金微粒子に対する2次元 CCDを用いた SCEM 像。数字はマスク処理した際のマスクサイズ（ピクセル単位）。

まず、2次元 CCD による光学系のセットアップ手順を確立した。SCEM では収束系と結像系、二つのレンズを透過した結果としてのプローブが CCD に映し出されるため、CCD 上でプローブを細く絞られているだけでは、試料上でのプローブ形状が最適化されているかは明らかではない。本研究において走査透過暗視野法 (ADF-STEM) に用いている環状の検出器を用いと試料のシャドーイメージが観察できることが明らかとなった。これは結像系レンズを像モードにしているため、ADF 検出器は回折面上にはない為、プローブ位置と検出器の形状が重畳した像が得られるが、プローブの調整は可能であることが判った。これにより収束系の非点収差などを補正したのちに、CCD 上のプローブが絞られるように結像系の非点収差等を補正する。

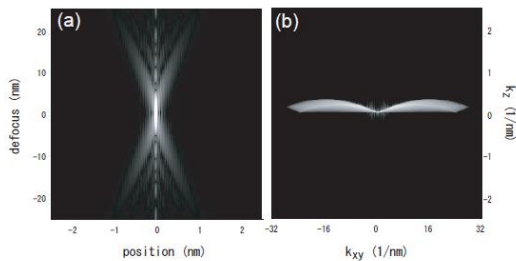


図5 走査透過暗視野法での (a) point spread function (PSF) と (b) コントラスト伝達関数。

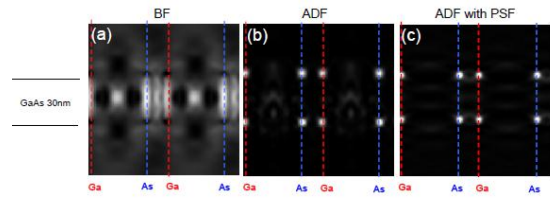


図6 走査透過暗視野法での GaAs 30nm の x-z 断層像の計算結果。BF は通常の明視野 SCEM 法、ADF は暗視野 SCEM 法を多波動力学計算手法により計算した像。(c) は PSF により暗視野 SCEM 像を計算した結果。

図3はカーボン支持膜状に金を少量蒸着し、近微粒子を作製した試料に対する、ADF 検出器で観察された像の様子である。この像が最も高精細に観察されるように収束系のレンズを調整する。

図4は、本手法によって得られた2次元 CCD を用いた SCEM 像の例である。試料は図3と同じ Au の微粒子を用いており、数字はマスク処理をした際のマスクの直径をピクセル単位で表している。マスクサイズを大きくしていくと、通常の TEM と同じ吸収コントラストの像に近づいていくことが判る。

結像特性の研究に関しては、共焦点走査透過暗視野法 (ADF-SCEM) のコントラストの振る舞いを明らかにするために、その PSF を明らかにした。(図5) これによると、PSF は通常の SCEM が実数なのと異なり、複素数で、かつ原点にたいして反対称な形をしているため、界面などで強いコントラストを示すことが明らかとなった。図6は、GaAs 30nm の通常の SCEM (BF), 走査透過暗視野 SCEM (ADF) の多波動力学計算手法を用いた x-z 断面の計算像と、PSF から計算された断面像である。通常の BF-SCEM では材料の中

で広く強度を持ってしまいが、ADF-SCEM では界面の所だけで強い強度を示し、かつその振る舞いはPSFによる計算でも完全に再現されていることから、PSFによって決定されている振る舞いであることが判る。今後、これらが実験的にも観測可能かを明らかにしていきたい。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

1. K. Mitsuishi, et. al., (他 4 名)  
“Imaging properties of bright-field and annular-dark-field scanning confocal microscopy”, Ultramicroscopy (査読有) 112 (2012) 53-60.
2. K. Mitsuishi, et al. (他 4 名) “Imaging properties of bright-field and annular-dark-field scanning confocal microscopy II. point spread function analysis”, (査読有) Ultramicroscopy 111 (2010) 20-26.

[学会発表] (計 3 件)

1. 三石和貴、(他 4 名)、「2次元検出器を用いた共焦点電子顕微鏡法」日本物理学会 2010 年秋季大会、2010/9/23 大阪府立大学
2. 三石和貴、「STEM 像の計算手法の基礎 / STEM 像の計算手法の基礎」日本顕微鏡学会 電顕技術開発若手研究部会研究会 2010/8/23 東京大学 山上会館
3. 三石和貴、(他 4 名) 「共焦点暗視野電子顕微鏡法の結像特性」日本顕微鏡学会 第 66 回学術講演会 2010/5/23 名古屋国際会議場

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

三石和貴 (MITSUISHI KAZUTAKA)  
独立行政法人物質・材料研究機構・表界面構造・物性ユニット・主幹研究員  
研究者番号：40354328

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし