

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04890

研究課題名（和文）電子線タイコグラフィーにおける多重散乱の効果を含めた位相再生法の開発

研究課題名（英文）Reducing the dynamical scattering effect of thick object by multislice electron ptychography

研究代表者

三石 和貴（MITSUISHI, Kazutaka）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・副センター長

研究者番号：40354328

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：電子線タイコグラフィーによる再生方法の一つであるPIE(Ptychographical Iterative Engine)を用いた位相再生において、物体が薄い多層から構成されるとして計算することで多重散乱の影響を取り込んだ位相再生を行い、厚い試料においても位相の定量的な解釈を可能にすることを目的とした。多重散乱の影響が顕著となるモデルとして、GaNの[11-20]入射での6nm厚さの構造モデルを用いて多波動力学計算を行い4DSTEMデータを作成し、4層の物体関数として再生を行った所、それぞれの層では2層を超える事が無く反転の無い物体関数として再生出来る事が確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

試料を透過した電子線の位相は、試料の電場や磁場などの情報を含むため大変有用であるが、像や回折図形などの通常の方法では計測することが出来ない。電子線タイコグラフィーは、位相を計測する手法の一つであり、近年の検出器の高速化・高感度化によって急速に発展している。本研究はその手法の中でも物体が多層からなる事を仮定して再生を行う方法を厚い試料での位相再生に適用することで、厚い試料で問題になる電子の多重散乱による影響を軽減することが出来るかの検討を行った。結果として、通常では位相を正しく求める事が出来ない厚い試料であっても、多層を仮定して計算を行うことで正しく求められる可能性がある事が示された。

研究成果の概要（英文）：To reduce the effect of dynamical scattering upon reconstructing thick object by electron ptychography and enable quantitative interpretation of the phase even in thick samples, multi-slice ptychography was tested for the simulated data sets. A 6 nm thick GaN [11-20] was used as a model system which is known that Ga contrast inversion occur as the thickness increases by dynamical effect, and many-beam dynamics calculations were performed to create 4D STEM data. The reconstruction was performed with single and 4-layer object function. It was confirmed that the object function using 4-layer object function could be reconstructed without phase inversion with each layer never exceeding 2 .

研究分野：電子顕微鏡法

キーワード：電子顕微鏡法 位相回復 電子線タイコグラフィー

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

タイコグラフィーは 1969 年に Hoppe[1]によって提案された電子線の回折強度から電子線の位相を回復するための方法の一つであり、近年ピクセル型 STEM 用高速検出器が実用化され大きな注目を集めている[2]。タイコグラフィーでは走査透過電子顕微鏡法 (STEM) において、22 次元の各スキャン位置での 2 次元の回折パターンを取得することで得られる 4 次元のデータから位相再生を行う。これまでスキャン各点からの透過 Disk 像の取得には CCD カメラが用いられており、取得に時間が掛かっていたため、ドリフトなどの影響で精度のよい再生ができなかったが、近年、高速ピクセル型 STEM 検出器が実用化され、通常の STEM 像観察と同程度の時間で取得することが可能となった。電子線ホログラフィーではバイプリズムの働きによって干渉が起こされていたが、タイコグラフィーでは電子線プローブを作る際の入射方向の広がりによって透過波と回折波が重なることで引き起こされており、そこに情報がエンコードされている。電子線ホログラフィーと異なり観察領域の近くに真空領域がある必要がなく、TEM 試料の形状に、より高い自由度があり、広範な試料への適用が期待されている。しかしながら現在、主に二種類に分類されるタイコグラフィーの位相再生方法は、どちらも電子線の多重散乱の影響を無視する近似の範囲で構築されており、試料が厚く多重散乱が無視できない状況では計測された位相の正当性は担保されていない。一方で電子線では物質との相互作用が強いため、通常の TEM 試料の厚さでも多重散乱の影響を無視することは出来ず、適用の妨げとなっていた。

2. 研究の目的

本研究では電子線タイコグラフィーによる再生方法の一つである PIE (Ptychographical Iterative Engine)[2]を用いた位相再生において、物体が薄い多層から構成されるとして計算することで多重散乱の影響を取り込んだ位相再生を行うことで、多重散乱の影響が無視できない一般の試料でのタイコグラフィーによる位相再生の正当性を担保し、位相の定量的な解釈を可能にすることを目的とした。PIE は、回折顕微法 (Diffractive Imaging) と類似のプロセスにより位相を再生する手法である。回折顕微法は、試料周りにサポートとよばれるマスクを配置した状態で回折図形を取得し、その回折図形の情報 (逆空間の振幅) と実空間のマスク領域は透過波 (物体関数) がゼロであるという拘束条件から、再帰的に計算を行い位相を回復する。PIE によるタイコグラフィーでは、STEM の電子線プローブをデフォーカスすることで実空間でのスキャン点毎のプローブが重なるようにした状態で回折図形を取得し、実空間のマスクの代わりに重なる領域が矛盾なくつながることを拘束条件として再生を行う。この際、物体関数が薄い複数の層から構成されるとし、それぞれの層では一回散乱で近似されるとすると、多重散乱を矛盾なく計算に取り込むことが出来ると期待される。物体関数を複数の層から構成されるとして計算すること自体は、タイコグラフィーによって 3 次元再構成することを目的として光学顕微鏡の場合に対して既に行われている[3]。また、本提案後に電子線においてドーパントの深さを決定した例が報告された[4]。本研究ではこれを 3 次元構造観察のためではなく、多重散乱の影響を取り込み、得られる位相の定量性を担保することを目的として利用する。本手法により、各層で散乱された電子は次の層への入射電子となり、多重散乱を無理のない形で計算に取り込むことが可能となる。これにより、試料中の電位分布や磁場分布などの情報を定量性をもって計測することが可能となり、幅広い応用が期待される。

3. 研究の方法

研究は PIE による位相回復を行うコード開発とシミュレーションデータを用いたテスト、実験データの取得を実施した。計算機環境では、PIE の計算には大量のフーリエ変換が必要となるため、GPU を備えた計算機を導入し、CPU にくらべて高速に計算できる環境を構築した。また、計算コードの開発を行い、多波動力学計算によるシミュレーションデータに対する処理を行う事でデバック作業を行うと共に、多層による計算によって多重散乱の影響を軽減可能かを評価した。シミュレーションデータの作成には abTEM[5]を用いた。

4. 研究成果

多重散乱の影響が顕著となるモデルとして、GaN の[11-20]入射での 6nm 厚さの構造モデルを用いて多波動力学計算を行い、4 DSTEM データを作成した。この厚さは Ga 原子位置での位相が 2 を超えてしまうため、原子がドーナツ状のコントラストとして観察されることが報告されている[5]。このデータからタイコグラフィーを用いて、1 層の物体として位相回復を実行した結果が図 1 である。図 1 (a) は GaN の位相像、(b) は破線位置でのプロファイル、(c) は同時に回復されたプローブの強度である。既に報告されているとおり、Ga 位置でコントラストが反転しており、これは位相の unwrap 処理を行っても正しく再生することは出来なかった。また、同時に回復されたプローブは強度にむらがあり、正しく再生されていないことが判る。これは一層として計算すると透過関数が物体と入射波との積で表されるという仮定が破綻しているた

めで、多重散乱の影響が含まれた回折図形を、多重散乱の影響を考慮せず再現しようとしたためであると考えられる。図2はPIEにおいて4層の物体関数を仮定して再生した場合のそれぞれの物体の位相および破線位置でのプロファイルである。イタレーションの回数は200回とした。4層の物体を仮定することでそれぞれの層では位相が2を超えことなく、ドーナツ状のコントラストとなってしまう事が回避されている事が判る。また、図3に示すように、再生されたプローブも図1(c)と異なり、滑らかな関数として得られている。これらの事から、多層を仮定して再生することで多重散乱の影響を軽減できることが示された。一方で得られた各層の物体関数は同じではなく、層毎に異なる物体関数として再生されている。これは、収束が十分でない、多層化が十分でなく、多重散乱の影響を完全に排除していない、などの原因が考えられる。本来、GaNの[11-20]投影方向の原子面は40層であり、4層での計算はそれよりも遥かに少なく、多重散乱の影響を完全に除くにはより多くの層が必要であると考えられる。一方で多層にするとその分だけ未知数が増えるため収束性が問題になるほか、収束角から決まる深さ分解能の制約もあるため、最適な層の数や安定的に最適解を求める方法の探求は今後の課題である。

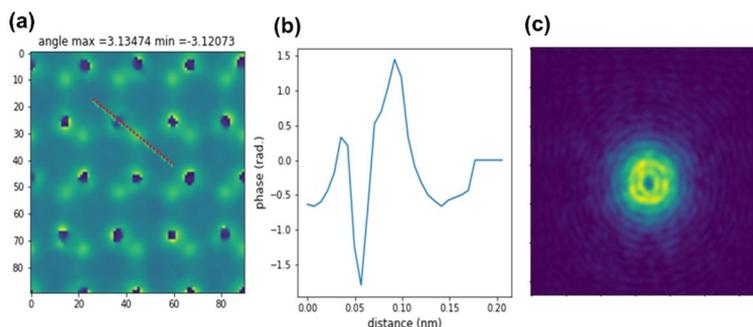


図1 6nm厚さのGaNを一層として位相再生した時の(a)位相像、(b)破線位置でのプロファイル、(c)同時に再生されたプローブの強度

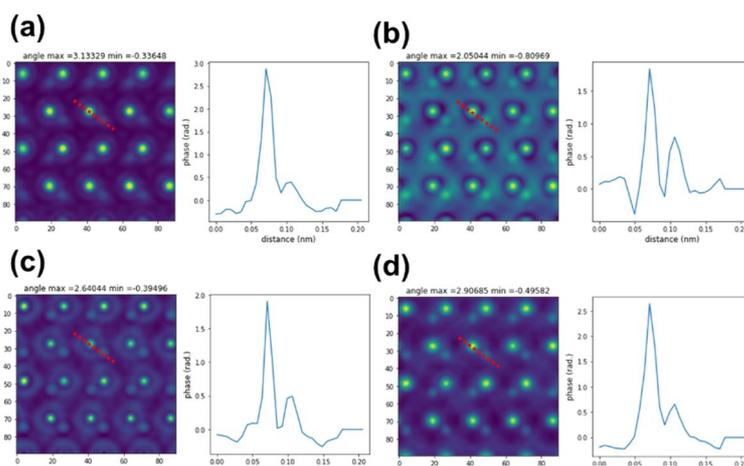


図2 6nm厚さのGaNを4層として位相再生した時の各層の物体の位相像と破線位置でのプロファイル

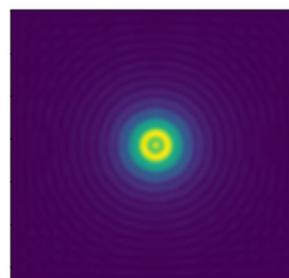


図3 6nm厚さのGaNを4層として位相再生した時の同時に回復されたプローブの強度

[1] W. Hoppe, (1969a). "Diffraction in inhomogeneous primary wave fields. 1. Principle of phase determination from electron diffraction interference". Acta Crystallogr. A 25, 495–501.

[2] J.M. Rodenberg, "Ptychography and Related Diffractive Imaging Methods", ADVANCES IN IMAGING AND ELECTRON PHYSICS, VOL. 150, 87 (2008).

[3] A.M. Maiden, et. al., J. Opt. Soc. Am. A 29 (2012) 1606.

[4] Z. Chen, et. al., Science 372 (2021) 826.

[5] Jacob Madsen and Toma Susi. The abTEM code: transmission electron microscopy from first principles. Open Research Europe 1:24, 2021. doi:10.12688/openreseurope.13015.1.

[6] L. Clark, et. al., Microscopy & Microanalysis (2023) 29, 384-394.
<https://doi.org/10.1093/micmic/ozac022>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nakazawa Katsuaki, Mitsuishi Kazutaka	4. 巻 -
2. 論文標題 Development of temporal series 4D-STEM and application to relaxation time measurement	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/jmicro/dfad006	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 Mitsuishi Kazutaka, Nakazawa Katsuaki, Sagawa Ryusuke, Shimizu Masahiko, Matsumoto Hajime, Shima Hisashi, Takewaki Takahiko	4. 巻 13
2. 論文標題 Direct observation of Cu in high-silica chabazite zeolite by electron ptychography using Wigner distribution deconvolution	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 316-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-023-27452-3	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 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 2件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 三石 和貴, 中澤 克昭, 佐川隆亮
2. 発表標題 電子線タイコグラフィーによる環境関連材料の観察
3. 学会等名 電子顕微鏡学会第37回分析討論会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三石和貴、中澤克昭、佐川隆亮、清水雅彦、松本 創、嶋 寿、武脇隆彦
2. 発表標題 電子線タイコグラフィーによるゼオライト中の銅原子の直接観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第79回学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazutaka Mitsuishi, Katsuaki Nakazawa, Ryusuke Sagawa, Masahiko Shimizu, Hajime Matsumoto, Hisashi Shima & Takahiko Takewaki
2. 発表標題 Direct observation of Cu in high silica chabazite zeolite by electron ptychography
3. 学会等名 International Workshop on Advanced and In-situ Microscopies of Functional Nanomaterials and Device (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中澤克昭、三石和貴、佐川隆介
2. 発表標題 デフォーカスを活用した電子線効率の高いタイコグラフィー法の開発
3. 学会等名 第78回日本顕微鏡学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三石和貴、中澤克昭
2. 発表標題 タイコグラフィーによるロードーズ、高分解能観察
3. 学会等名 2023年度日本顕微鏡学会超高分解能分科会研究討論会 (招待講演)
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

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
---------	---------