

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600042

研究課題名(和文)電子線小角散乱からの新規位相イメージング法によるナノスケール電磁場の定量的可視化

研究課題名(英文)Quantitative visualization of nanometer-scaled electromagnetic fields by a novel phase-imaging method based on small-angle electron scattering patterns

研究代表者

山崎 順 (Yamasaki, Jun)

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・准教授

研究者番号：40335071

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：物質による電子線の小角散乱パターン(電子回折パターン)を用いた全く新しい位相イメージング法を開発した。これまで定量的な位相計測の妨げとなっていた様々な要素を洗い出して対処法を考案し、物質を透過した電子波動関数の位相分布を約0.1ラジアン精度で結像する手法の確立に成功した。既存の位相計測手法(電子線ホログラフィー法)と比べての優位性と有効性、汎用性を明確に示すことに成功し、本位相イメージング法を通じたナノスケール電磁場観測への応用展開を示すデータを取得することに成功した。

研究成果の概要(英文)：We developed a novel electron phase-imaging method based on a small-angle scattering pattern from a material. We devised each processing method to cope with various factors preventing quantitative phase measurements, and thus succeeded in establishing the phase-imaging method which enables mapping of phase distributions of electron wave functions after passing through materials to an accuracy of about 0.1 radian. We also succeeded in demonstrating availability and versatility of our method, and superiority to the existing phase-imaging method (off-axis electron holography). We showed great capabilities for applications to quantitative measurements of electromagnetic fields in and around nanometer-scaled materials.

研究分野：電子顕微鏡を用いたイメージング手法の研究開発

キーワード：回折顕微法 位相イメージング 小角散乱 電子線

1. 研究開始当初の背景

本課題研究で取り組んだ「回折顕微法」では、フーリエ変換を含むイタレーション演算を通じて回折パターン強度から試料構造が再構成される。入射電子波が試料を透過した際の実空間複素波動場が対物レンズの影響を受けずに再構成されるため、これまでは一部の例外を除き、10nm 程度の視野内での原子配列の再構成に研究者の興味は限定されていた。荷電粒子である電子は、試料中の構成原子や試料周辺の電磁場を通過する際に波動関数の位相変調を受ける。回折顕微法では試料下面の複素波動関数を再構成するため、この位相変調が視覚化される。したがって上述の原子分解能観察に拘ることなく、より広い視野にわたってのイメージングを追求することにより、TEM 像では見ることのできないナノスケールの電磁場分布をサブミクロンサイズの視野範囲にわたって可視化できるはずである。

この着眼点に基づいた研究開始点として、ナノスケール電磁場の最もシンプルな形態として物質内の原子の集合が形成する静電ポテンシャル(平均内部ポテンシャルと呼ばれる)の可視化に既に成功している(図1)[1]。このように従来よりもかなり広い視野の位相像を得るには小角散乱パターンを計測する必要があるが、そのための実験条件や装置構成などについても、基本的な部分については判明していた(次節)。このように見通しが大きく開けたところではあったが、定量性のある計測手法としての実用化までには課題山積という状況であった。

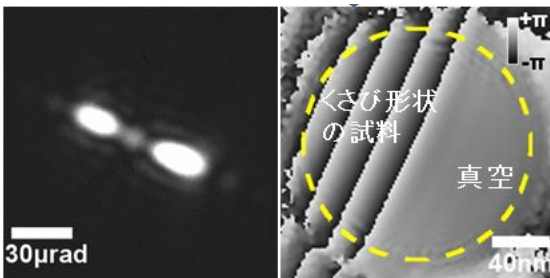


図1 小角散乱パターン(左)からくさび形状試料の透過電子位相像を再構成[1]

2. 研究の目的

電子線小角散乱を用いた全く新しい位相イメージング法を確立することを第一の目的とした。データ定量性の確保、汎用性の増強、データ処理作業の簡素化と自動化、の3つを達成することにより、手法の実用化を成し遂げる。また、同じく電子線位相を観察する手法として定着している電子線ホログラフィーは幾つかの難点を抱えており、本手法

の優位性を明らかに示すデータの取得を第二の目的とした。これらによってナノスケールの電磁場を定量的に解析できる新しい計測分野を立ち上げることを目指した。

3. 研究の方法

本手法の利点の一つは、電子線バイプリズムなどの高額な器具を取り付けることなく、現在透過型電子顕微鏡の標準的な装置構成として普及している、エネルギーフィルター装備の電界放出型 200kVTEM で実験を行える点である。本手法の原理が実空間波動場と逆空間波動場のフーリエ変換に立脚しているため、高い電子ビーム干渉性を実現するための電界放出型電子銃が必要である。またこれまでの研究により、物質を透過した電子線から非弾性散乱した成分を除去する重要性が判明しているため、エネルギーフィルターを用いたこれらの除去が必要である。特にポストコラムタイプのフィルターを用いることにより、電子顕微鏡に標準設定されているカメラ長(一般に 2m 程度)では十分には拡大記録できない小角散乱成分を、10-20 倍程度拡大して詳細に記録できることが重要である。

4. 研究成果

(1)再構成位相像の定量性の達成

再構成結果の定量性を妨げる要因を徹底的に洗い出し、下記の3つに分類されることを明らかとした後、それぞれの対処法を考案した。

回折パターン強度記録の非定量性

CCD カメラで記録する際のリードアウトノイズや、強いビームを記録した際の残光に起因すると思われる不均一なバックグラウンド強度が発生してしまうことが判明した。これらの問題に対し、短時間露光での連続撮影(50枚程度)を行い、事後に位置合わせをして足し合わせる解決法を開発した。またこの手法は、記録時間中の回折パターンのドリフトの影響を極小化することにも効果を発揮した。

制限視野領域のズレ

本手法で使用する電子回折パターンは透過型電子顕微鏡における「制限視野回折法」を用いて取得し、制限視野絞りの入った拡大像を拘束条件として位相像を求める。しかし実験時に、電子回折パターン取得時の絞り位置と拡大像記録時の絞り位置にズレが発生していることが判明した。この影響をシミュレーションを用いて具体的に検証した結果、再構成位相像の定量性を確保する上で無視できない影響を及ぼすことが判明した。

このズレの生じる原因として、電子回折パターン記録時間中の試料ドリフト、および電子顕微鏡の拡大像モードから電子回折モードへの切り替え時に発生するレンズ漏れ磁

場の変化が大きく作用していることを解明した。前者への対策としては、試料移動後に十分ドリフトが止まってから電子回折パターンを取得することで回避可能と判明し、後者に関してはエッジを持つ試料を用いた像シフト量の計測方法を編み出した。さらに再構成波動場と電子回折パターン実験データとの矛盾量を最小化するようにピクセル単位で位置合わせを達成する方法を確立した。

記録した回折パターンのボケ

電子顕微鏡の制限視野絞り（円形開口）を用いた回折パターン（いわゆる Airy パターン）を計測したところ、理想的なフーリエ変換パターンと比べてボケ（点拡がり関数）を含んでいた。このボケの要因として、電子ビームの不完全な空間干渉性、集束レンズと中間レンズ群の収差、CCD カメラ記録時の「にじみ」、などを特定した。これらの影響を定量的に計測するために、点拡がり関数の標準偏差とレンズ収差係数（2 次収差まで）をパラメータとして、上記の Airy パターンの記録強度にフィッティングする手法を開発した。図 2 にその一例を示す。電子顕微鏡の分野では、ビーム干渉性を定量的に計測するのは一般に困難であり、電子線バイプリズムを用いた注意深い実験と解析が必要とされるが、図 3 に示したようにビーム径の拡大に比例した干渉長の増大を精度良く捉えることに成功しており、本課題研究の主目的からは外れるものの新しい干渉性計測の手法を提示することに成功した。

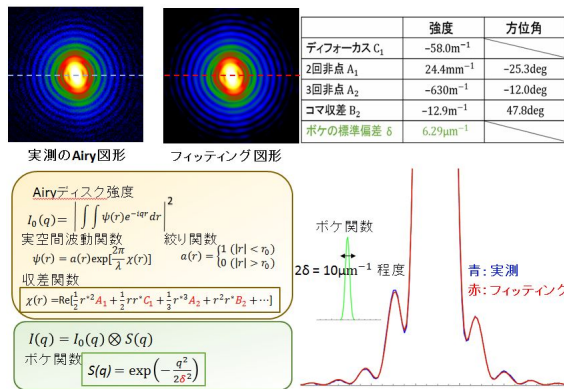


図 2 Airy パターンへのフィッティング計算による点拡がり関数とレンズ収差係数の決定

このようにして精密に決定した点拡がり関数を使って、計測した回折パターンをデコンボリューション処理（ボケを取り除く処理）し、さらに各収差係数から合成したレンズによる位相変調を差し引くことによって、回折図形のボケの影響をほぼ完全に除去する手法を確立することに成功した。その手順の模式図を図 4 に示す。

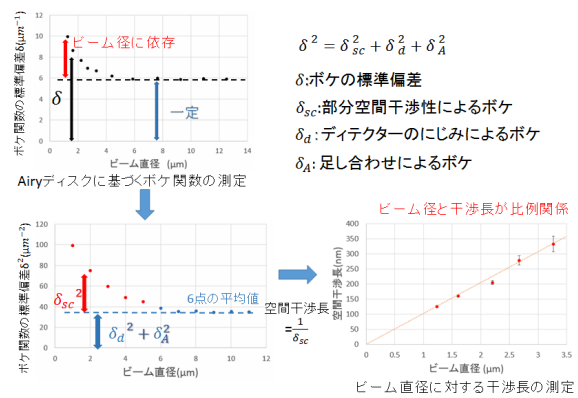


図 3 ビーム直径と点拡がり関数標準偏差の関係

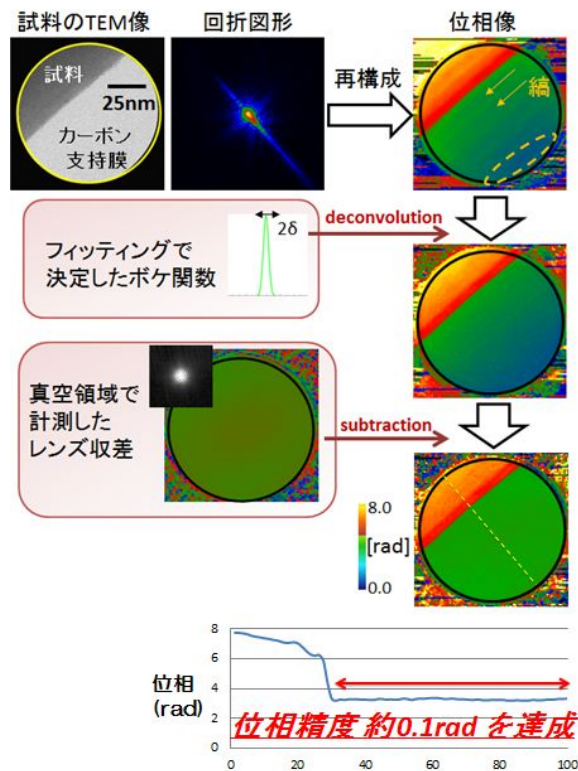


図 4 ボケ関数とレンズ収差の影響除去手順

上述の様々な処理手法の開発とその適用の結果、図 4 下段に示したように、一般的な電子線ホログラフィーでの計測結果と同等以上の約 0.1 ラジアン位の位相計測精度を達成することに成功した。またこれらの処理手順を確立する過程で、様々なツール開発による作業の簡素化と自動化を増進した。

(2) 電子線ホログラフィー法に対する優位性の検証

既存の位相イメージング手法である電子線ホログラフィーの最大の難点は、観察領域に近接した真空領域が必要とされる点であり、試料形態の自由度の点でしばしば大きな制約となっている。本課題研究で開発した手

法の利点は、この隣接真空領域を必要としない点である。このため試料エッジから遙かに遠く離れた試料領域の位相像を問題なく取得することが可能である。この利点を明示するためのデモンストレーションデータを図5に示すように取得することに成功した。

また電子線ホログラフィーではたとえ隣接真空領域があっても、その空間に電磁場が存在すると正しい計測が行えないことも大きな問題点として知られている。この点でも本手法は威力を発揮し、図6に示すように帯電したナノ粒子近傍に広がる電磁場分布を明瞭に可視化することにも成功した。

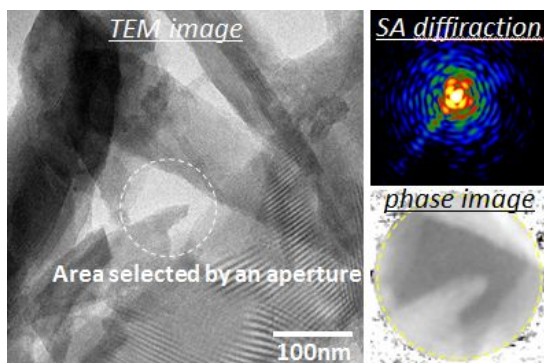


図5 近接真空領域を必要としない位相イメージング

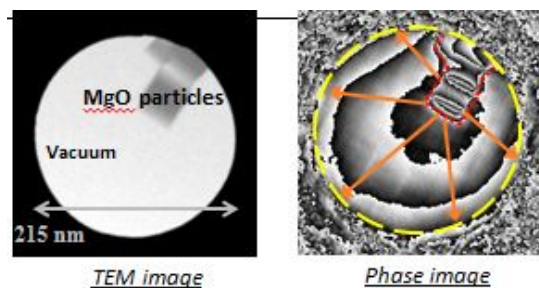


図6 帯電した絶縁体ナノ粒子周囲に広がる電場の計測

これらのデータを通じて、本手法の優位性と有効性、汎用性を明らかに示すことに成功し、新たなナノ電磁場イメージング法を確立できたと言える。今後の応用的観点からは、半導体デバイスのドーパント分布計測、磁性ナノ材料のドメイン構造や漏洩磁場の精密測定、ナノデバイス材料中の結晶歪みマッピング、低エネルギー電子線によるバイオマテリアルの高感度結像やトモグラフィー観察などに可能性が広がり、計測科学の新しい分野としての展開に期待が膨らむ。またレンズ結像を直接用いない点において電子顕微鏡学におけるパラダイム転換を誘起するものであり、学会に与えるインパクトは大きいものと期待される。

<引用文献>

[1] J.Yamasaki, K. Ohta, S. Morishita,

and N. Tanaka, Appl. Phys. Lett. 101 (2012) 234105.

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0件)

[学会発表](計13件)

1. 島岡 勇記, 山崎 順「電子線小角散乱を用いた回折位相イメージングの高精度化」日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16-19 日、関西大学千里山キャンパス(大阪府・吹田市)一般講演

2. Hirokazu Sasaki, Shinya Otomo, Ryuichiro Minato, Kazuo Yamamoto, Tsukasa Hirayama, Jun Yamasaki and Naoya Shibata, "Analysis of GaAs compound semiconductors and the semiconductor laser diode using off-axis electron holography, Lorentz microscopy, electron diffraction microscopy and differential phase contrast", Microscopy and Microanalysis 2015 Meeting, 2-6 Aug. 2015, ポートランド(アメリカ)一般講演

3. Jun Yamasaki, "Reconstruction of Atomic Structures and Electric Fields of Nano Materials Using Electron Diffractive Imaging", International Conference on Electron Microscopy and XXXVI Annual Meeting of the Electron Microscope Society of India (EMSI-2015), 8-10 July 2015, ムンバイ(インド)基調講演

4. 島岡 勇記, 山崎 順「Airy ディスクを用いた電子線空間干渉性の計測と回折顕微鏡」3D 活性サイト科学 春の学校、2015 年 5 月 30-31 日、奈良春日野国際フォーラム 麓〜I・RA・KA〜(奈良県・奈良市)一般講演

5. 佐々木宏和, 大友晋哉, 山本和生, 平山司, 山崎 順, 柴田直哉「各種電子顕微鏡法による半導体中の電位分布解析」日本顕微鏡学会 第 71 回記念学術講演会、2015 年 5 月 13-15 日、京都国際会館(京都府・京都市)一般講演

6. 島岡 勇記, 山崎 順「Airy ディスクを用いた電子線空間干渉性の計測と回折顕微鏡」日本顕微鏡学会 第 71 回記念学術講演会、2015 年 5 月 13-15 日、京都国際会館(京都府・京都市)一般講演

7. Jun Yamasaki, "Electron Diffractive Imaging of Crystalline Structures and Electric Fields in/around Nano Materials", the 18th SANKEN International Symposium,

10-11 December, 2014, Knowledge Capital
Congres Convention Center (大阪府・大阪
市) 招待講演

8. 山崎 順 「電子回折図形に基づくナノイ
メージング」 第1回「3D 活性サイト科学」
公開ワークショップ、2014年11月21,22日、
CIVI 研修センター新大阪東(大阪府・大阪市)
一般講演

9. J. Yamasaki, K. Ohta, H. Sasaki, and N.
Tanaka, "Observation of electric field
using electron diffractive imaging", 18th
International Microscopy Congress (IMC
2014) 7-12 September 2014, プラハ(チェ
コ) 一般講演

10. Jun Yamasaki, "Electron Diffractive
Imaging of Crystalline Structures and
Electric Fields of Nano Materials", The
15th International Union of Materials
Research Society - International
Conference in Asia (IUMRS-ICA), 24-30
August, 2014, Fukuoka University(福岡県・
福岡市) 招待講演

11. 山崎 順 「電子線の空間コヒーレンス
測定と電子線回折イメージング」日本放射光
学会第6回若手研究会「コヒーレントX線が
拓く構造可視化の新しい世界」、2014年8月
21,22日、理研播磨SPRING-8(兵庫県・佐用
町) 招待講演

12. Jun Yamasaki, "Phase Imaging by
Electron Diffractive Imaging", Holo
Workshop, 10-12 June 2014, ドレスデン(ド
イツ) 一般講演

13. 佐々木宏和, 大友晋哉, 山本和生, 平
山 司, 山崎 順, 谷垣俊明, 明石哲也 「位
相回復法を用いた半導体解析」日本顕微鏡
学会 第70回学術講演会、2014年5月11-13
日、幕張メッセ(千葉県・千葉市) 一般講演

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.uhvm.osaka-u.ac.jp/ele/cust
om2.html](http://www.uhvm.osaka-u.ac.jp/ele/custom2.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山崎 順 (YAMASAKI JUN)

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・准

教授

研究者番号：40335071

(2) 研究分担者

佐々木 宏和 (SASAKI HIROKAZU)

古河電気工業株式会社・研究開発本部横浜
研究所・その他

研究者番号：70649821

(3) 連携研究者

田中 信夫 (TANAKA NOBUO)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・
特任教授

研究者番号：40126876