

報告番号	※ 甲 第 11070 号
------	---------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 走査透過電子顕微鏡における環状照明及び環状検出器を用いた位相再生法に関する研究

氏 名 石田 高史

論 文 内 容 の 要 旨

走査透過電子顕微鏡 (STEM) は、透過電子顕微鏡 (TEM) と走査電子顕微鏡 (SEM) どちらの特徴も併せ持ち、原子分解能で像を観察することが出来る強力な装置である。さらに、現在では原理的には提唱されながら長年実現されなかった収差補正器が開発され、様々な STEM 結像法で原子分解能が達成されつつある。特に高分解能観察では環状暗視野 (HAADF) 法がよく用いられてきた。これは、分解能が良く、また像のコントラストが試料との電子線の散乱強度に依存し、そのコントラストを直感的に理解できるためである。一方、TEM ではよく用いられている明視野像は、STEM では HAADF 像に比べて、波の干渉がコントラストに寄与し、像解釈が複雑となるため高分解能観察の主流ではなかった。しかし、近年、STEM の透過ディスク内に環状検出器を置いて像を取る環状明視野 (ABF) 法により HAADF 像では難しかった軽い元素も重い元素と同時に見えることがわかった。しかしながら、このように通常の STEM 結像法では電子の強度を検出し像を作るため、試料を構成する原子が形成するポテンシャル分布を含む電子波の位相は失われてしまう。TEM においては、明視野像をもちいて電子波の位相を再生する手法がいくつか考案され実用化されてきたが、1960 年代に始まった STEM の開発は TEM よりも約 30 年遅く、STEM における電子波の位相の再生はあまり注目を集めてこなかった。このように、長年の課題であった球面収差補正が実現された現在でも STEM 像における位相再生に関しては、まだ十分にその手法が確立しているとは言い難い。

本論文は、STEM での位相再生法に関する研究、特に複数枚の STEM 像を用いて画像処理により位相を再生する新たな手法の実現と、その定量評価についてまとめたもので、以下の 6 章から成り立っている。

まず、第 1 章では、収差補正走査透過電子顕微鏡の概要と STEM 特有の結像法である HAADF 法・ABF 法について研究の現状を述べた。続いて、収差補正後も残る位相回復問題について説明し、TEM と STEM の相反性について述べた。さらに、TEM および STEM で行われてきた電子波の位相再生法についての現状とその課題を明らかにすることで本研究を位

置づけ、本論文の目的を記した。

第2章では、TEMの3次元結像理論で説明されてきた新たな位相再生法である環状明視野位相法をSTEMの2次元結像理論で記述した。まず完全コヒーレントな電子線を用いた場合に得られる強度像について述べ、正焦点面で観察される強度像では試料を直接透過する電子で構成される透過ディスク内の光軸外のポジションに検出器を置くことで、試料の透過関数の虚部が強度像に含まれることを示した。この虚部は光軸上に置く検出器で得られた像中には含まれなかった。さらに、電子源の大きさに起因する部分コヒーレント状態に理論を拡張した。有限な光源サイズを持つ場合にはその影響は試料面上での大きさに換算されてから像強度に畳み込むことで組み込まれ、デフォーカス拡がりには像強度にデフォーカスの影響を受けた像を重畳することで反映できることを述べた。

第3章では、環状明視野位相法の原理について説明した。さらに軸外検出器による像のスペクトルから、試料下面の波面に対応する線形結像成分が検出器の位置と絞りの形状に依存することを示した。また、透過関数の実部と虚部の伝達関数が異なるためにフィルター係数を変化させるだけで試料下面の波面を再生可能であることを示した。本手法で重要な役割を果たす円環絞りの再生像に対する影響を議論し、8の字フィルタリングだけでは取り除くことが出来ない非線形結像成分の除去が可能であり、さらに焦点深度が拡大することによりデフォーカス拡がりの影響を無視できることを示した。最後に、8の字フィルターの最適化について検討した。

第4章では、環状明視野位相法のために開発した環状照明・環状検出器・並列信号処理システムの詳細について述べた。円環絞りは、タンタル板を最新の集束イオンビーム加工技術により高精度に加工することで作製し、シンチレータ・光ファイバー・光電子増倍管からなる環状アレイベンチル検出器及びその信号を並列に処理するシステムの開発について述べた。次に、開発したシステムにより結晶性の試料を用いて本手法の原理検証実験を行い、その有効性を確認した。さらに、本手法により高分解能位相像が取得可能であり、試料の光軸方向の位置情報の推定が可能であることを示した。一方で、単結晶の原子分解能観察ではダメージ層がない試料作製と高い装置の安定性が求められることがわかった。また、像の低い空間周波数成分は正焦点の状態ではほぼ消えることを原理検証実験により明らかにした。これはバックグラウンドの像成分を失うことになるので、電子線ホログラフィーのように真空レベルからの位相差を知ることが出来ないことになるが、高周波数成分は残るために格子像や原子カラムなどの位相像観察は可能であると結論した。

第5章では、第4章の結果から、環状明視野位相法が特に高分解能での試料構造の定量解析に適用できるので、本手法により再生した位相差が結晶性の試料の投影ポテンシャルをどこまで定量化できるのかをイメージ・シミュレーションにより検証した結果について述べた。まず、再生した位相像と原子番号の関係を調べ、再生した位相差が原子番号 Z の0.6乗に比例し、結晶中の相対的に軽い原子の観察に適していることがわかった。さらに、単結晶であるチタン酸ストロンチウムをモデルにし、試料厚さを考慮したシミュレーションを行い、環状明視野位相法は既存のABF法よりも2倍の厚さまですべてのカラムが線形に比例することがわかった。これに加えて酸素カラムに空孔を含むモデルを用いて酸素濃度の測定についての検討した結果、環状明視野位相法は試料厚さ6 nmまでは酸素原子1つを計数することが出来ることを示した。一方で、本手法の限界も示され、動力学的散乱の

影響が強くなる厚い試料には定量的な評価に用いるのが難しいことも述べた。

そして、第6章では、本研究によって得られた結果を総括し、今後の課題と展望を述べた。本研究により確立した環状明視野位相法は、収差補正走査透過電子顕微鏡による単なる像観察では得ることが出来ない位相の情報を知ることができ、コントラストの定量化が難しかった結晶中の軽い原子を取り扱える。そのため、それらが重要な役割を果たすリチウム電池や固体燃料電池などの原子構造解析の応用に期待ができる。走査透過電子顕微鏡では、他の解析手法を組み合わせることが可能なので、電子線回折法・電子線分光法・HAADF法などを環状明視野位相法に加えることで、試料厚さや原子の種類、原子配列、そして原子の量が同時に得られることになり総合的に試料を解析できる。

本論文は、走査透過電子顕微鏡を用いた新たな位相再生法である環状明視野位相法を実現し、理論・実験の両面から本手法の有効性を示したものである。