

Through-focus TEM 像の 3 次元 Fourier 変換による TEM 分解能の定量評価

表界面構造・物性ユニット 電子顕微鏡グループ 木本浩司

1. シーズ育成研究の背景と位置づけ

新規物質や実用材料の物性・機能を左右する微量添加元素の効果を明らかにするためには、「高感度」計測手法が必須である。NIMS 第三期中期計画における先端計測プロジェクトにおいて、電子顕微鏡サブテーマでは微小領域の結晶構造解析を目的とし、「高感度分析的」「3 次元的」観察法の開発と材料展開を目指した。筆者は、単原子分析電子顕微鏡技術を核とした高感度化のための研究開発と実用材料への展開を担当した。

他方、シーズ育成研究では、次期中長期計画でコアコンピタンスとなる電子顕微鏡要素技術の開発に努めた。電子顕微鏡法は単なる空間分解能やエネルギー分解能を向上させるだけでは材料評価手法として不十分であり、今後は高精度化や高感度化がますます要求されると予想される。第三期中期計画の中にシーズ育成研究としていくつかの要素技術を開発したが、本稿では、電子光学の基本に立ち返り、透過電子顕微鏡像の空間分解能の評価法について検討した結果の概要を述べる。

2. 研究成果

2.1. シーズ育成研究の背景と概要

透過電子顕微鏡法(Transmission Electron Microscopy; TEM)の空間分解能は、球面収差係数 C_s と波長 λ より規定される Scherzer 分解能(点分解能)で、これまでは議論されてきた。一方、球面収差補正装置が実用化された現在では、Scherzer 分解能ではない他の分解能制限因子が顕在化している。その主たる因子の一つが、色収差により規定される情報限界 (information limit) である。本研究では、この情報限界を定量的に計測する手法について検討した。

焦点を変えながら撮影した TEM 画像群(through-focus TEM 像)に対して 3 次元 Fourier 変換することにより、情報限界を正しく計測できる。本研究では、実験のためのソフトウェアを開発すると共に、同ソフトウェアを使って、NIMS の電子顕微鏡や JST-CREST/研究加速(AIST 末永和知責任者, JEOL, NIMS 参画) で開発された低加速電子顕微鏡装置の分解能評価に展開した。

2.2. 3 次元 Fourier 変換による高分解能 TEM 像の空間分解能評価の原理

色収差により規定される情報限界は、実験においてどれほどの焦点広がり(defocus spread)があるかに依存する。言い換えれば、defocus spread を実測することにより、情報限界を決定することができる。

ここではまず焦点を変えなが

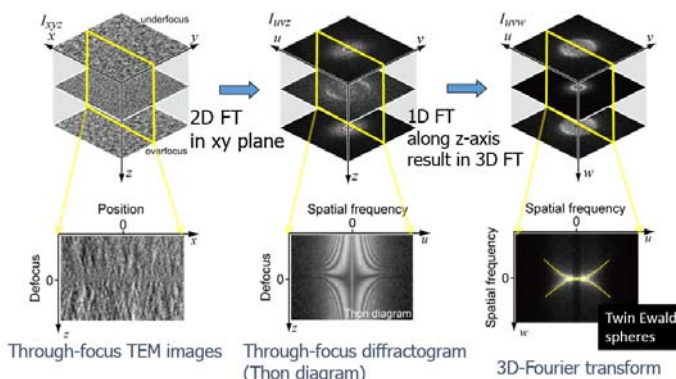


図1 Through-focus 像とその2および3次元 Fourier 変換の模式図。

ら撮影した TEM 像 I_{xy} を、焦点 z を第 3 の軸として積み重ねた 3 次元データ I_{xyz} を考える (図 1 参照)。広く行われている 2 次元 Fourier 変換は、 I_{xy} の 2 次元データに対してなされる (diffractogram, I_{uv}) もので、それを焦点 z に対して積み重ねた 3 次元データ I_{uvw} は、いわゆる Thon diagram となる。一方、本研究で行う 3 次元 Fourier 変換は z 軸に対しても Fourier 変換をするもので、得られる 3 次元 Fourier 変換データ I_{uvw} は、 I_{uvw} とは異なる。連続的な空間周波数を含む試料 (アモルファス) を 3 次元 Fourier 変換した図形には、Ewald 球と呼ばれる原点で接した二つの球が現れる。これは透過波と回折波が干渉した線形結像成分で、結晶構造を正しく反映したコントラストに相当する。線形結像成分が $1/e^2$ (13.5%) まで減衰した空間周波数が、情報限界として定義される。

次に 3 次元 Fourier 変換の物理的な意味を述べる (図 2)。まず実験において through-focus TEM 像 I_{xy} を焦点 z を第 3 の軸として積み重ねた 3 次元データ I_{xyz} を考える。実験ではそれぞれの TEM 像が全て同じ量の defocus spread の影響を受けていると考えられる。いま仮に、defocus spread が全くない理想的な TEM 像 J_{xy} とその through-focus 像データ J_{xyz} を考える。Defocus spread を $f(z)$ とすれば、実験結果 I_{xyz} は理想的な 3 次元データ J_{xyz} に対して defocus spread $f(z)$ を重畳 (convolution) したものと考えられるので、 $I_{xyz} = J_{xyz} * f(z)$ である。Convolution は Fourier 変換により乗算となるため両辺を Fourier 変換すれば $I_{uvw} = J_{uvw} \times F(w)$ であり defocus spread のフーリエ変換 $F(w)$ は、理想的な Ewald 球に対する包絡関数となる。この包絡関数 $F(w)$ を実験から求めることができるので、その逆 Fourier 変換関数である $f(z)$ を求める事ができ、情報限界を求める事ができる。なお、through-focus 像の 3D Fourier 変換は、既に Ikuta あるいは van Dyck らにより報告があり、本研究は空間分解能の評価にそれらの手法を展開したものである。

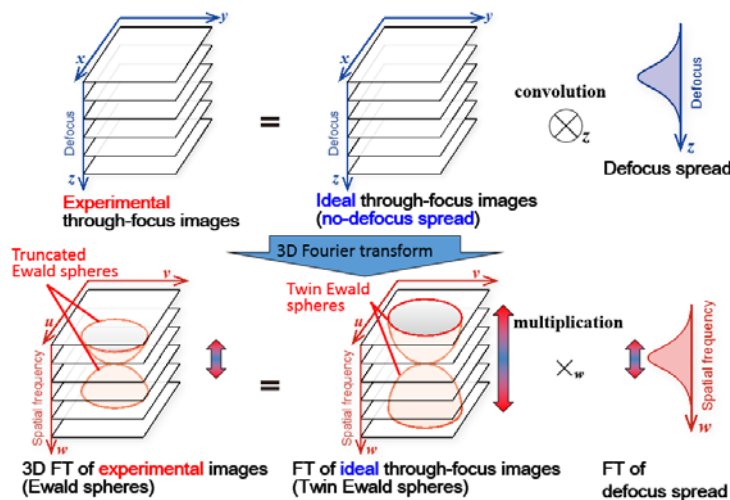


図 2 3D-Fourier 変換による分解能計測の概念図。

2.3. 実験方法

本手法で必要となる through focus 像の取得は、Gatan 社の DigitalMicrograph 用のスクリプトとして自作した。3 次元 Fourier 変換は一般的なデータ処理だが上述のソフトウェア環境には当初用意されていなかったため、2 次元 Fourier 変換と 1 次元 Fourier 変換を組み合わせで計算した。実験中に発生した試料ドリフトを補正するソフトウェア等のデータ処理についても用意した。

実験には、NIMS 設置のモノクロメーターと球面収差補正装置を備えた FEI 社製 Titan³ のほか、NIMS 既設の日立製 HF-3000、JST-CREST/研究加速で開発された低加速電子顕微鏡 (JEOL 製) を用いた。電子顕微鏡メーカーを問わず解析可能であるのも本手法の利点の一つである。

2.4. 実験結果

本研究では、情報限界が特に顕著な問題となる低加速電子顕微鏡に適用した。図3に NIMS 設置の電子顕微鏡を用いて実験した結果を示す。加速電圧 80 kV の場合、球面収差補正装置により改善され、情報限界は約 0.2 nm であるが、モノクロメーターを使ってエネルギー広がりを 0.9 から 0.1 eV にすることにより、情報限界は 0.1 nm まで向上する[1]。

図4は冷陰極電界放出型電子銃(cold field-emission gun; CFEG)を備えた低加速電子顕微鏡像を解析した例である[2]。加速電圧は 60 kV および 30 kV であり、波長の 24 倍の空間分解能まで実現できていることがわかる。なお、ここでは示さないが、NIMS 設置装置のモノクロメーターと収差補正装置を用いて、加速電圧 80kV および 40 kV で情報限界 90 pm および 111 pm を報告していることを報告している[3]。

これらの実験結果に見られる Ewald 球の強度は、(1)色収差による減衰(情報限界)、(2)収束角による減衰、(3)画像検出器の特性(modulation transfer function; MTF)による減衰、などに加え、(4)試料の散乱振幅の減衰による効果が混在している。それらを分離して、(1)の情報限界のみを抽出できるのが、3次元 Fourier 変換による空間分解能評価の特徴である。詳細な議論は既報[3]にゆずるが、入射電子を傾斜させて計測することにより、(3)と(4)の効果を相殺することが可能で、さらに(2)の効果は Ewald 球の断面強度を積分することにより考慮できる。これまでの TEM 像における部分可干渉性コントラストの議論では、(1)と(2)はそれぞれ chromatic envelope function および spatial envelope function として定式化され、位相コントラスト伝達関数(phase contrast transfer function; PCTF)の2つの包絡関数として表現される。3次元 Fourier 変換図形においては、それぞれ w 軸方向の包絡関数と Ewald 球に対する包絡関数となっており、物理的に見通しの良い物理的描像になっていることに注目して頂きたい。

3. 展望

2次元 Fourier 変換による diffractogram は装置の安定度を計測する優れた手法であるが、非線形

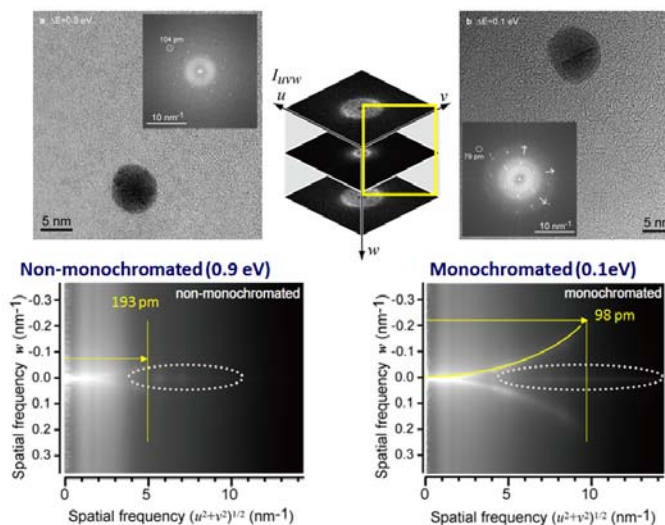


図3 3D-Fourier 変換により計測した低加速(80 kV)電子顕微鏡像の空間分解能のモノクロメーターによる向上

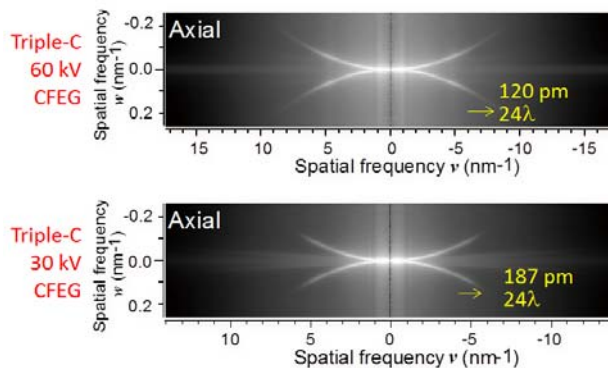


図4 3D-Fourier 変換により計測した低加速(60kV および 30kV)電子顕微鏡像の空間分解能。

結像成分の影響が無視できないため、実際の空間分解よりも分解能が良いように評価されてしまう恐れがある。空間分解能が高い球面収差補正装置を備えた装置の評価や、電子と物質との相互作用が大きな低加速電子顕微鏡法の場合には、非線形成分と線形成分を分離して評価できる3次元 Fourier 変換による評価法を用いるべきである。JEOL の最新の装置では、線形結像成分と非線形結像成分の空間分解能を分けて表記しており、本手法は今後普及していくことが期待される。空間分解能を制限する因子として、本稿では色収差による defocus spread を述べたが、3次元 Fourier 変換による方法では収束角による分解能の制限(spatial coherence)や image spread と呼ばれる熱的磁気ノイズもそれぞれ個別に評価することができることも指摘しておきたい[3]。

分解能の評価は電子顕微鏡学としては基本的項目であるが、この研究から分解能を制限している因子を解明して改良をすすめ、さらなる高精度・高感度顕微鏡法を開発することができる。本シーズ育成研究で開発した手法は、次期中長期計画の電子顕微鏡研究のコアコンピタンスの一つとして展開していく所存である。

参考文献

- 1) Koji Kimoto, Keiji Kurashima, Takuro Nagai, Megumi Ohwada, Kazuo Ishizuka, "Assessment of lower-voltage TEM performance using 3D Fourier transform of through-focus series", Ultramicroscopy Vol. 121, pp. 31-37 (2012).
- 2) Koji Kimoto, Hidetaka Sawada, Takeo Sasaki, Yuta Sato, Takuro Nagai, Megumi Ohwada, Kazuo Suenaga, Kazuo Ishizuka, "Quantitative evaluation of temporal partial coherence using 3D Fourier transforms of through-focus TEM images", Ultramicroscopy Vol. 134, pp. 86-93 (2013): open access.
- 3) Koji Kimoto, "Practical aspects of monochromators developed for transmission electron microscopy", Microscopy vol. 63, pp. 337-344 (2014): open access.