

# 透過電子顕微鏡における斜め照射超高分解能化手法の 像シミュレーションによる検討

篠 政行 相川 武宏\*  
山田 俊明\* 馬場 則男\*

A Study on the Method of Making a Transmission Electron Microscope into an Ultra-High Resolution Microscope with the Tilted Illumination Technique

Masayuki Shino, Takehiro Aikawa, Toshiaki Yamada, Norio Baba

## 1. はじめに

通常、軸上照射法による透過電子顕微鏡において、分解能は原理的には電子レンズの性能によって決定してしまう。これは、レンズの持つ球面収差を完全に取り去ることができないからである。

そこで本報告では、上記の理由を改善する方法として軸上照射法ではなく、斜め照射 (Tilted Illumination) 法を用いることによって、軸上照射法では取り込めなかった高周波成分をも有効レンズ径内にシフトさせ、情報量の多い像を得ることを考えた。同様な操作で、数方向に方位を変えた連続する像をコンピュータにオンライン入力し、画像合成及び画像処理を行うことによって分解能の向上を目指す手法を検討することとした。

従来から、こうした手法はよく知られていたものであり、最近の報告では Saxton<sup>1)</sup>らのものがある。ところが、高分解能を得るという利点に反し、装置の実用化には高い精度が要求されるために製品化がなされていなかった。しかしながら近年の急速な技術向上に伴う周辺装置をも含めた性能向上をふまえ、この手法を検討した。例えば、スロースキャンCCDカメラによるオンラインシステムが実用化され、この手法を実用化するに充分と思われる感度 (入射電子2個)、ダイナミックレンジ (4000以上) が実現している。また、電子光学系の制御についても制御に必要な電子レンズ系や、偏向系その他が精度よく安定してデジタル及びコンピュータ制御出来るようになってきたことを考慮した。そこで、本報告では本手法の検証及び理論的境界、また最適条件等を検

討した。

## 2. 斜め照射法におけるディフラクトグラムとその位相

本報告で述べる斜め照射法を用いることにより、回折面上では軸上照射法に比べ電子顕微鏡像は高周波成分まで広く取り込むことが出来、より情報量の多い像を得られる。これに伴って作られるディフラクトグラムも周波数面上で広がることになる。つまり、原子オーダーを意味する超高分解能化した透過電子顕微鏡像の実現である。図1. に軸上照射法と

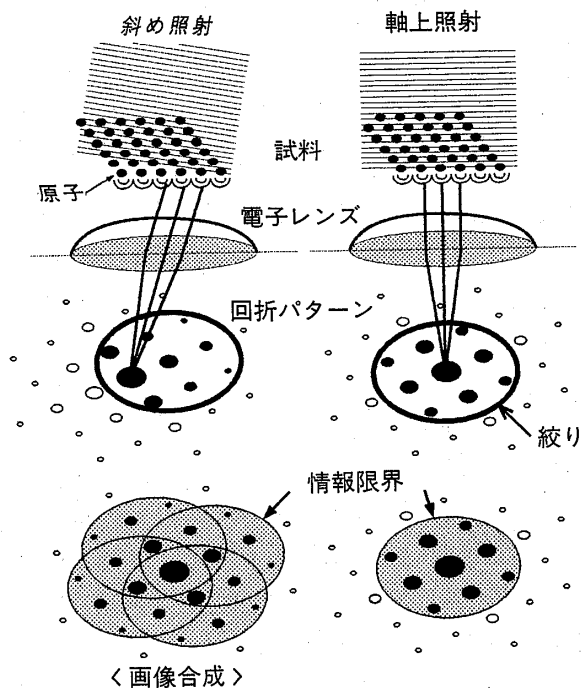


図1 従来手法との比較

(\*は工学院大学・電気工学科)

斜め照射法との違いを模式的に表した。情報限界が広がり、より高次の情報までもが取り込まれることがわかる。ところが、斜め照射をすることによって位相が乱されてしまうという欠点がある。さらに、数方向に連続して電子線を振った斜め照射によるディフラクトグラムを合成して高周波成分を取り込んだ場合、一層位相は大きく乱れ、きちんとした像を再生しない。

そこで、この位相の乱れを再生フィルターを施すことによって除去することを考えた。ここでの再生フィルターは、Schiske<sup>2)</sup>らの考えに基づく最小二乗近似を用いた最適化フィルターである。このフィルターを通すことにより位相の乱れを補正し、斜め照射法を使った電子顕微鏡像の画像再生が可能となる。

なお、今回のコンピュータシミュレーションに用いた各種のパラメータは以下の通りである。

電子線の波長：	0.025 Å
実効電子源の大きさ：	0.015 Å <sup>-1</sup>
球面収差係数：	0.7mm
焦点のぼけ：	100 Å
軸上照射した場合のデフォーカス：	418 Å
斜め照射した場合のデフォーカス：	627 Å

また、使用した数式に関しては全て Saxton<sup>1)</sup>及び堀内<sup>3)</sup>らに準じた。

### 3. アモルファスタングステンをを用いた本手法によるシミュレーション

#### A. 実験

実験には、理想状態を実現するために、実際の装置を使つての実験材料として比較的入手しやすいアモルファスタングステンをモデルにとり、これをコンピュータシミュレーションすることにより得られた像での比較検討を行った。ここで敢えて結晶性の材料とせずにアモルファスタングステンをを用いたかであるが、従来法の軸上照射法と斜め照射法との違いを明確にするためである。つまり、結晶性の材料であればかなりの悪い条件でも原子レベルの像は得られてしまうからである。

まず、縦24 Å×横24 Å×高さ30 Åの直方体のモデルを考え、タングステン原子3608個をこの直方体内にランダムに最接近間隔が2 Å以上になるように配

置したアモルファスタングステン薄膜の原子座標を作る。図2. は、この直方体のモデルを真上(X軸方向、Y軸方向、Z軸方向の回転はしていない)から見た原子位置(白点)を表している。なおスケールは1 nmを示す。



図2

また、コンピュータシミュレーションは次の過程を踏むことになる。

1. 上述のモデルから原子座標を決定する。
2. 原子座標に基づいて、フーリエ変換 (FFT) を行う。
3. アモルファスタングステンの原子散乱因子を掛ける。
4. 斜め照射に対するコントラスト伝達関数を掛ける。(軸上照射の場合は行わない)
5. 再生フィルターを掛ける。
6. 逆フーリエ変換 (RFFT) を行う。

ここで行ったシミュレーションは大きく分けて二つのものからなっている。

ひとつは、直方体の原子モデルを真上(X軸、Y軸、Z軸方向の回転無し)から見た座標位置の像について、電子ビームの傾斜角を2.5mrad毎に、2.5mradから15.0mradまで変化させた場合のシミュレーション像の比較を行ったものである。

もうひとつは、原子モデルをY軸方向に3° 毎

に、 $-15^\circ$  から  $+15^\circ$  まで回転させて得られた像について、従来通りの軸上照射法に乗っ取ったシミュレーションと本報告の斜め照射法に乗っ取ったシミュレーションとの比較を行ったものである。

## B. 結果

先ず、斜め照射法の分解能向上の限界を検討するために、電子ビームの傾斜角を変化させた。その結果を図3. に示す。図中の a. から f. は原子位置の回転は行わずに真上から見た座標位置で、電子ビームの傾斜角のみを、それぞれ、a.  $2.5\text{mrad}$ 、b.  $5.0\text{mrad}$ 、c.  $7.5\text{mrad}$ 、d.  $10.0\text{mrad}$ 、e.  $12.5\text{mrad}$ 、f.  $15.0\text{mrad}$ と変化させて得られた原子像である。A. から F. は、上の a. から f. に相当するディフラクトグラムである。なお、原子像のスケールは  $1\text{nm}$ を示し、ディフラクトグラムは  $(0.05\text{nm})^{-1}$ を示している。

A. から F. に向かうに従い、ディフラクトグラムの高周波成分が多くなることが認められる。つまり、分解能の向上が見られるわけだが、F. は、中味に鬆が入ったような状態となっている。これは、アーティファクト（人工副産物）であり、正確な情報を伝えていないことになる。これらの結果からこの実験のアモルファスタングステンに関しては、電子ビームの傾斜角をD. の  $10.0\text{mrad}$ 付近が最適であると考えられる。

つまり、電子ビームの傾斜角をむやみに増やしただけでは分解能の向上は見られず、ある一定の限界を越えると逆にそれが落ちてしまうことが認められた。また、ここでの比較でもそうだが、単に電子顕微鏡像の比較だけでは分解能を一概には論じえない。例えば、c. から f. までの比較は難しい。そこで、分解能を論ずるときは、ディフラクトグラムを使うことが必要となる。

次に、アモルファスタングステン薄膜像の軸上照射法によるものと斜め照射法によるシミュレーションの結果を図4. と図5. に示す。なお、図中の a. から k. は、原子座標をY軸方向に回転してあるので、それぞれ、a.  $-15^\circ$ 、b.  $-12^\circ$ 、c.  $-9^\circ$ 、d.  $-6^\circ$ 、e.  $-3^\circ$ 、f.  $0^\circ$ 、g.  $3^\circ$ 、h.  $6^\circ$ 、i.  $9^\circ$ 、j.  $12^\circ$ 、k.  $15^\circ$ 、に相当し、l. は、ディフラクトグラムを表している。なお、原子像のスケールは  $1\text{nm}$ を示し、ディフラクト

グラムは  $(0.05\text{nm})^{-1}$ を示している。また、このときの斜め照射の量は上述の結果を得て、 $10.0\text{mrad}$ 固定とした。

図4. と図5. の l. のディフラクトグラムを比較すると、点分解能で約1.7倍程度斜め照射法が優位であり、各原子位置が従来法よりも明らかに分離できることが確認できる。例えば、原子モデルを真上（X軸、Y軸、Z軸の回転無し）から見た座標位置（図2.、図4-f.、図5-f.）について、比較してみると、図5-f. の矢印の白点は図2. の矢印（原子位置）とよい対応を見ているが、図4-f. では、不明瞭である。このことにより、定量的に本手法が透過電子顕微鏡像の分解能向上に有効であることが証明された。

また、ここで実験した原子モデルの回転による像の変化を追うことによって、いままで単なる2次元情報であった透過電子顕微鏡像が、本来あるべき3次元の姿となって捕らえられる可能性もでてきた。つまり、これら連続した角度変化の像を3次元的に再構築できれば、元々のアモルファス原子そのものの位置を特定することが出来ることになる。

## 4. まとめ

- 1) 斜め照射法の分解能には限界があり、ビームの傾斜角の最適値が存在することが確認された。（本報告では、 $10.0\text{mrad}$ ）
- 2) 本手法によるコンピュータシミュレーションの結果から、理論的に分解能が向上し、位相の揃った原子像を得られることが確認された。また、原子座標の回転による連続像を用いて、3次元再構築の可能性を提案した。

しかし、これらの結果は全て理想状態下であり、なおかつ線形の結像系が保たれている場合に限ったシミュレーション像である。よって、今後は、実際の装置を使った実験と非線形の結像系に対するシミュレーション等の検討が必要となる。

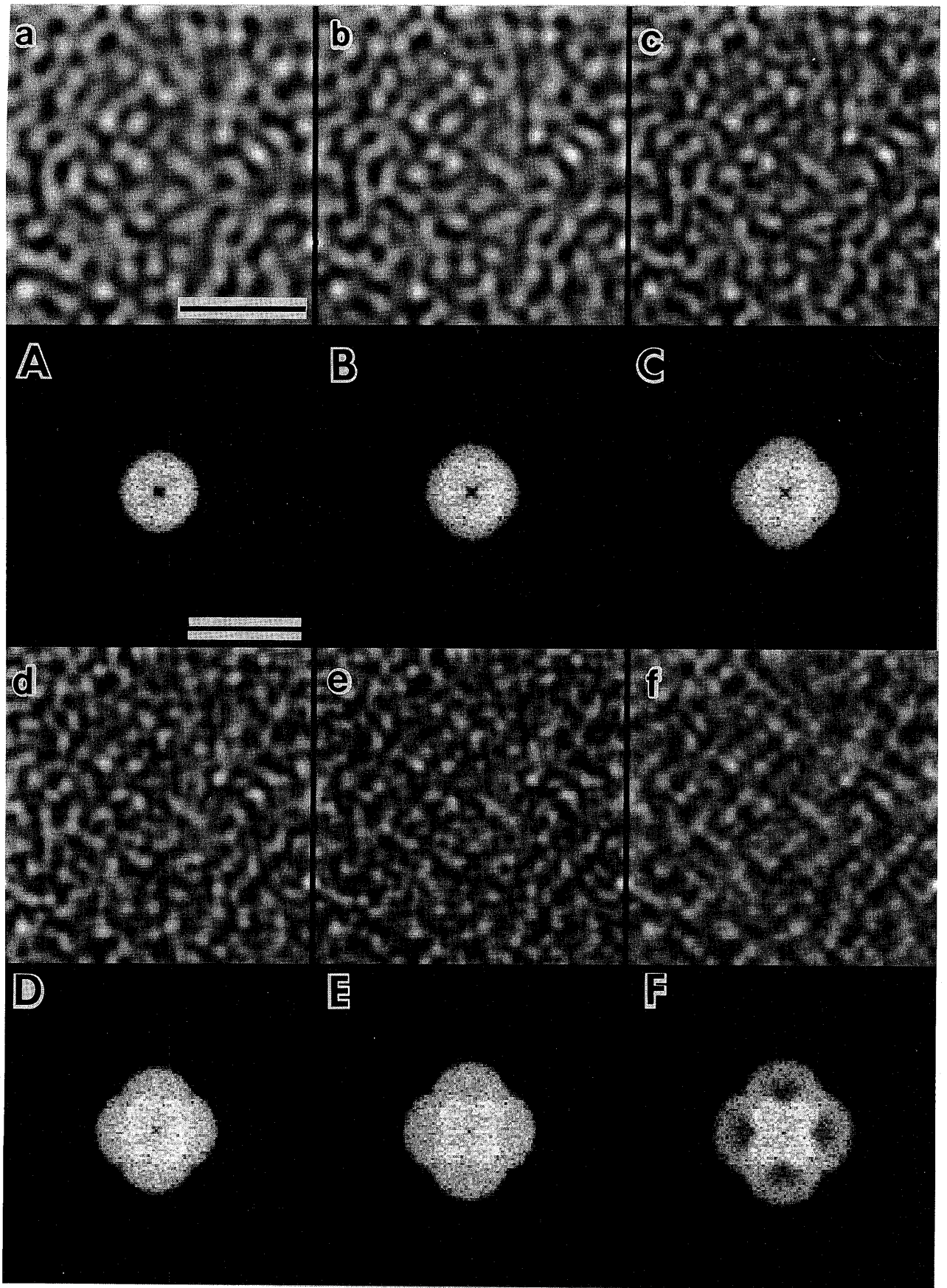


图 3

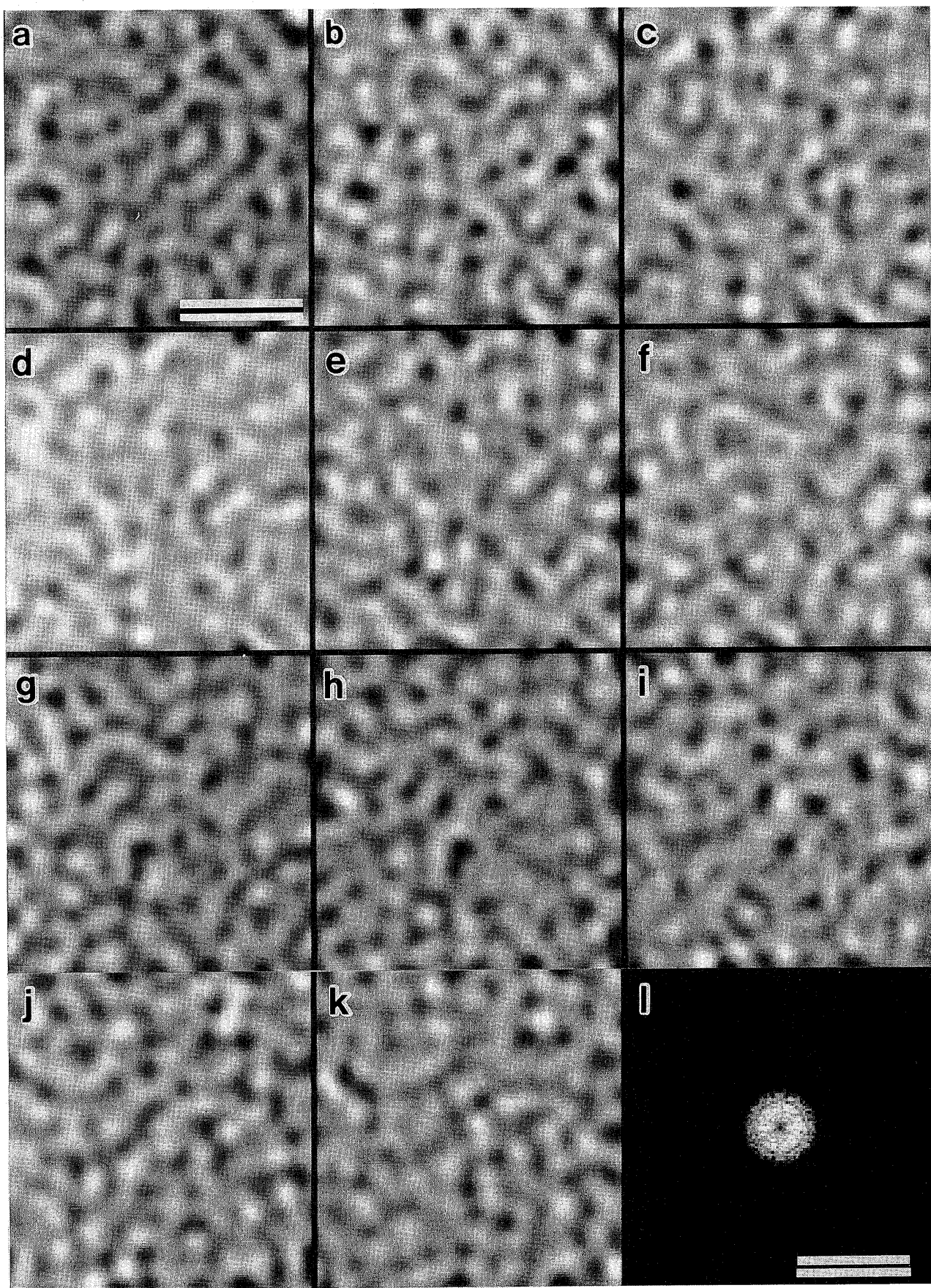


图 4

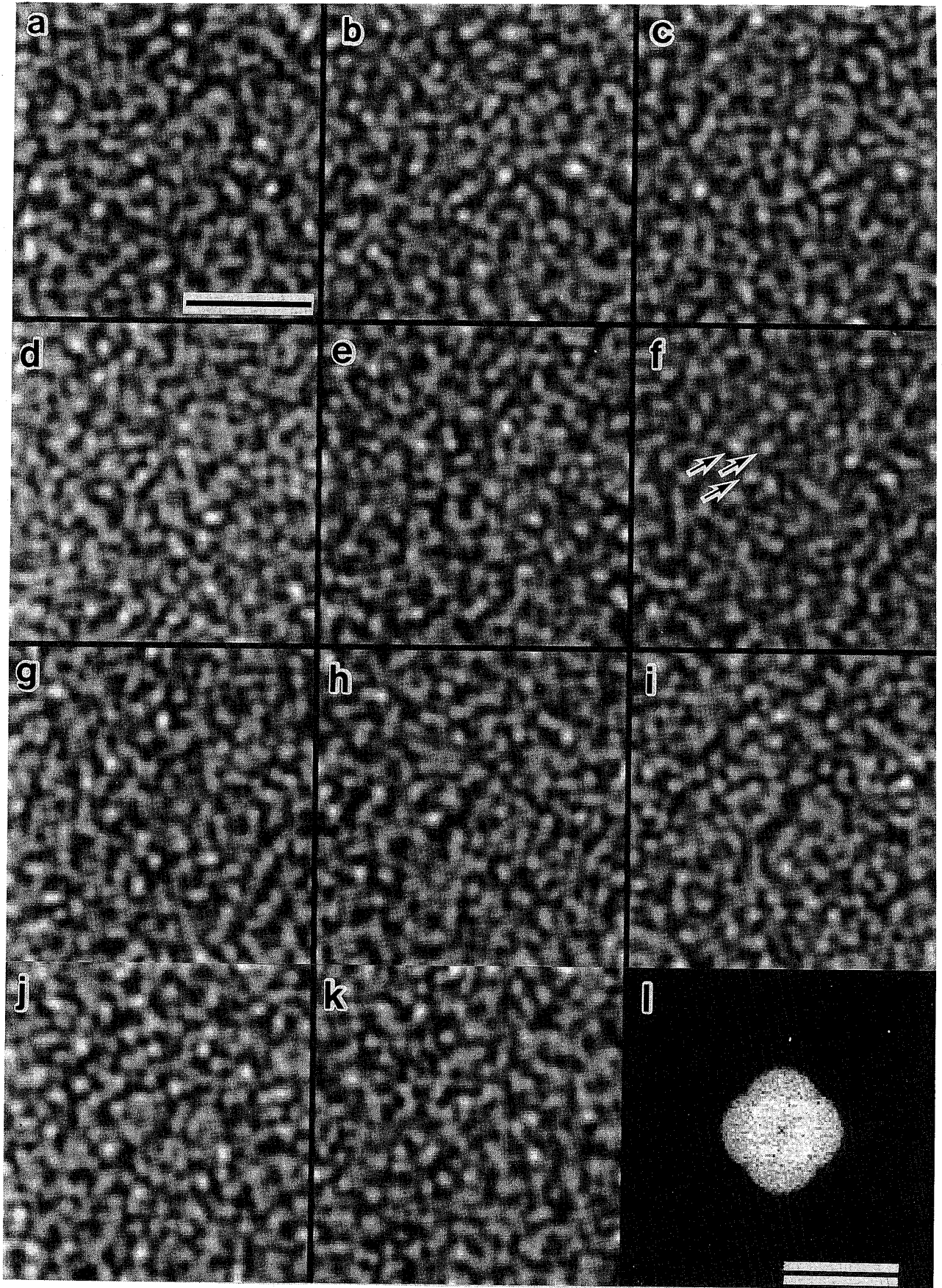


图 5

### 【参考文献】

- 1) Saxton, W.O. : Scan. Microsc., Suppl. 2, 213 ~224, (1988).
- 2) Schiske, P. : in Hawkes, P.W.(Ed.), Image Processing and Computer-Aided Design in Electron Optics, Academic Press, London, PP. 82,(1973).
- 3) 堀内繁雄：高分解能電子顕微鏡—原理と利用法一、共立出版、PP.173~175, (1991).

### 【図の説明】

- 図1. 従来手法（軸上照射）との比較
- 図2. 原子モデルを真上（X軸、Y軸、Z軸方向の回転はしていない）から見た原子位置（白点）の表示（図中の矢印は図5-f. の矢印と対応関係にある）
- 図3. 原子モデルを真上（X軸、Y軸、Z軸方向の回転はしていない）から見た原子座標を基に、斜め照射法によるビーム傾斜角を変化させたときのアモルファスタングステン薄膜像とそのディフラクトグラム（図は順に a. A. 2.5mrad、b. B. 5.0mrad、c. C. 7.5mrad、d. D. 10.0mrad、e. E. 12.5mrad、f. F. 15.0mradの時である）
- 図4. 原子モデルをY軸方向に回転させたときの原子座標を基に、軸上照射法によるアモルファスタングステン薄膜像とそのディフラクトグラム（図は回転させた順に a.  $-15^\circ$ 、b.  $-12^\circ$ 、c.  $-9^\circ$ 、d.  $-6^\circ$ 、e.  $-3^\circ$ 、f.  $0^\circ$ 、g.  $3^\circ$ 、h.  $6^\circ$ 、i.  $9^\circ$ 、j.  $12^\circ$ 、k.  $15^\circ$  に相当し、l. は、ディフラクトグラムを表している）
- 図5. 原子モデルをY軸方向に回転させたときの原子座標を基に、斜め照射法（ビームの傾斜角10.0mrad固定）によるアモルファスタングステン薄膜像とそのディフラクトグラム（図は回転させた順に a.  $-15^\circ$ 、b.  $-12^\circ$ 、c.  $-9^\circ$ 、d.  $-6^\circ$ 、e.  $-3^\circ$ 、f.  $0^\circ$ 、g.  $3^\circ$ 、h.  $6^\circ$ 、i.  $9^\circ$ 、j.  $12^\circ$ 、k.  $15^\circ$  に相当し、l. は、ディフラクトグラムを表している）
- なお、図5-f. の矢印は図2の矢印と対応関係にある。