

二国間交流事業 共同研究報告書

平成23年04月26日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

共同研究代表者所属・部局 (独)物質・材料研究機構・ナノ計測センター

職・氏名 (ふりがな) 主幹研究員 竹口 雅樹
たけぐち まさき

1. 事業名 相手国 (英国) との共同研究 振興会対応機関 (王立協会 (RS))

2. 研究課題名 共焦点走査型透過電子顕微鏡法による原子分解能断層像取得に関する研究

3. 全採用期間

平成 21 年 4 月 1 日 ~ 平成 23 年 3 月 31 日 (2 年 ヶ月)

4. 研究経費総額

(1) 本事業により交付された研究経費総額 4,960 千円

初年度経費 2,480 千円、 2年度経費 2,480 千円、 3年度経費 千円

(2) 本事業による経費以外の国内研究経費総額 6,860 千円

5. 研究組織

(1) 日本側参加者

| 氏名 <small>(ふりがな)</small> | 所属・職名 | 研究協力テーマ |
|-----------------------------|---------------------|--|
| たけぐちまさき 竹口雅樹 | (独) 物質・材料研究機構・主幹研究員 | 共焦点走査型透過電子顕微鏡法の高分解能化技術の開発 |
| はしもとあやこ 橋本綾子 | (独) 物質・材料研究機構・研究員 | 円環暗視野型共焦点走査型透過電子顕微鏡法による3次元解析手法の開発 |
| みついかずたか 三石和貴 | (独) 物質・材料研究機構・主幹研究員 | 共焦点走査型透過電子顕微鏡法の高分解能像の理論計算に関する研究 |
| しもじょうまさゆき 下条雅幸 | 埼玉工業大学・教授 | 共焦点走査型透過電子顕微鏡法の像取得システムの開発 |
| しゃおびん ちゃん Xiaobin Zhang | 埼玉工業大学・博士課程学生 | 共焦点走査型透過電子顕微鏡像のデコンボリューション法による深さ分解能改善に関する研究 |

(2) 相手国側研究代表者

所属・職名・氏名 University of Oxford, Department of Materials・Professor・Angus Kirkland

(3) 相手国参加者（代表者の氏名の前に○印を付すこと）

| 氏名 | 所属・職名（国名） | 研究協力テーマ |
|-----------------|-------------------------------|--|
| ○Angus Kirkland | University of Oxford・教授 | 共焦点走査型透過電子顕微鏡の開発に関する研究 |
| Peter Nellist | University of Oxford・講師 | エネルギーフィルター共焦点走査型透過電子顕微鏡法に関する研究 |
| Peng Wang | University of Oxford・リサーチフェロー | エネルギーフィルター共焦点走査型透過電子顕微鏡法による高分解能観察技術の研究 |

6. 研究概要（研究の目的・内容・成果等の概要を簡潔に記載してください。）

研究の目的：

本共同研究では、世界に先駆けて、試料の3次元断層像を高分解能で取得可能な共焦点STEMの開発および共焦点STEMシミュレーションによる像解釈技術の開発を行い、世界初の原子分解能断層像イメージングによる材料内部の異種原子観察を目指す。

研究の内容：

物質・材料研究機構(日本)と埼玉工大のグループでは、試料3次元走査システム、共焦点断層観察技術、共焦点像計算アルゴリズムを開発するなど、試料走査タイプ共焦点STEMのイニシアチブを有している。試料3次元走査システムにおいては、試料はピエゾ駆動によって高精度に3次元走査することが可能である。これまで、透過型電子顕微鏡に、STM-TEM試料ホルダーを改造した試料走査ステージを装着し、共焦点STEM像取得に成功している。ただし、通常の透過型電子顕微鏡では電子レンズの球面収差が存在するため、横分解能こそ0.2nmが実現されているが、深さ分解能は100nm程度となってしまう。

一方、Oxford大(英国)のグループでは、世界に先駆けて照射・結像系レンズ収差補正透過型電子顕微鏡(以下、ダブルコレクター電頭)における共焦点光学系を実現し、また原子分解能共焦点STEM像のシミュレーション技術を開発して、ダブルコレクター電頭において非弾性散乱電子を用いた共焦点STEMを行うことにより試料面内分解能0.1nm、深さ分解能1-2nmを実現できることを提案している。しかしながら試料3次元走査システム、共焦点断層観察技術を有しておらず、実際の実験データを取得することができない。そこで、本共同研究では、両国のグループの持つ技術である試料3次元走査システムによる共焦点断層観察技術とダブルコレクター電頭による共焦点電子光学系技術を持ち寄り、「共焦点STEMによる原子分解能断層像の取得技術」を実現するための研究および実証実験を行った。

具体的には、物質・材料研究機構側では、(1)結晶試料を方位合わせして観察が可能な2軸傾斜ピエゾ駆動3次元走査試料ホルダーに対して共焦点STEM像の観察と3次元高精度制御が可能のようにXYZ駆動の調整、キャリブレーション、パラメータ設定、(2)ソフトウェアの最適化・改造等による走査像取得の高速化、(3)共焦点STEM像の断層像取得原理の理論および円環暗視野共焦点STEMの結像理論の確立、(4)高分解能共焦点STEM像のシミュレーションプログラムの開発、(5)デコンボリューション法による共焦点STEM像の深さ分解能の向上法の開発、(6)観察試料の準備および予備観察、を実施した。一方、Oxford大(英国)側では、(1)ダブルコレクター・エネルギーフィルターモードの実現と最適化、(2)エネルギーフィルター共焦点STEMの結像理論の確立と像計算を行った。

成果：

(1)2軸傾斜ピエゾ駆動3次元走査試料ホルダーによって高分解能共焦点STEM像を初めて取得した(AMTC Letter 2(2010)110)。これをOxford大のダブルコレクター電頭に組み込み、Si<110>の深さ分解高分解能共焦点STEM像を得ることに成功した(論文準備予定)。(2)ダブルコレクター共焦点STEMによってPtナノ粒子分散カーボンナノホーン集合体の共焦点STEM観察を行い、深さ分解能20nm以下でPtナノ粒子の分散の様子やカーボンナノホーンの内部微細構造の様子を3次元的に解析することができた(顕微鏡学会第66回学術講演会(2011))。(3)ダブルコレクター共焦点STEMによってシリカコアシェル粒子の観察を行い、シリカシェル内のコア粒子の断層観察することで構造をナノスケールで明らかにした(Microscopy and Microanalysis 16(suppl2)(2010)1836)。(4)共焦点STEMの明視野モードと暗視野モードの像解釈原理を明らかにした(Ultramicroscopy 111(2010)20)。(5)ダブルコレクターエネルギーフィルター共焦点STEMによって炭素膜試料に対し、深さ分解能15nmが得られることを実験的に実証した(Physical Review Letters 104(2010)200801)。(6)デコンボリューション法による共焦点STEM像の深さ分解能の向上法を開発し、深さ方向に50%程度の改善を行った(Materials Science and Forum, accepted)。またこの深さ分解能向上は主に色収差による分解能低下を改善するものであることを見出した(論文準備中)。