

焦点位置変調型実時間位相再生透過型電子顕微鏡



技術解説

木村吉秀*

Development of a Real-Time Wave Field Reconstruction System for TEM

Key Words : TEM, Aberration free, Wave field reconstruction, Real time phase image

はじめに

透過型電子顕微鏡が開発されてから 100 年近く経ち、その高い空間分解能により様々な分野で用いられている。長年の問題であった電磁レンズに残存する球面収差についても、H. Rose による収差補正器により大幅に改善されることとなった。この補正器により $\text{\AA}$ を下回るファインビームが形成でき、走査型透過電子顕微鏡 (STEM) に搭載されている。ところが、試料による位相変化を見るためには、デフォーカスをかけて合焦点位置からずらして観察する必要がある。合焦点位置で位相差をみる方法として電子線ホログラフィーという技術がある。これは観察試料の近辺に参照波を形成する領域を用意し、電子線バイプリズムで電子線を重ねることで干渉縞を形成する方法である。一方、焦点位置を変調することにより元の波動場を再生できる方法が生田により開発された¹⁾。この手法を TEM に適用し、球面収差を補正して位相像を実時間で得ることができる焦点位置変調型実時間位相再生透過型電子顕微鏡について述べる。

TEM における像形成

試料に電子線を照射してその拡大像を得るものが TEM であり、その結像は光学顕微鏡によるものと同じである。図 1 にこれを示した。(a) は照射され

た電子波が試料を透過する透過波と試料構造により回折を起こした回折波に分かれ、電磁レンズにより収束結像する様子を示したものである。本来は回折波が焦点面でスポットを形成し、球面波として空間を伝わるのであるが、試料構造や電子波の波長が電磁レンズの焦点距離に比べ極めて小さいため平面波として描いている。回折波は基本の ± 1 次のみを考えており、これと透過波との 3 波による干渉を考えることにする。これは線形結像成分と呼ばれるもので、TEM 像ではこれが主に像を形成する。図では線で電子波の波面を表しているため少々見にくい。ジャストフォーカス位置ではコントラストが消失している。ここより上下にずれた位置では試料構造に対応したコントラストが現れており、上側と下側でコントラストが反転しており、フォーカス方向 (上下方向) に位置を変えると周期的に像コントラストが変わっているのがわかる。試料構造の空間周波数成分でみると (b) に示したように、フォーカス方向での像コントラストの周期は高空間周波数になるほど早くなっている。ここまでは理想的な結像系で観察した場合で、電磁レンズに残存する球面収差を考慮すると、(c) のように高い空間周波数の像ほどフォーカス位置がずれてくることになる。また、透過波との位相関係もずれてくるため、フォーカスの合っている位置でもコントラストが現れてくることになる。これを横軸にデフォーカス量、縦軸にコントラスト伝達関数をコントラストとして空間周波数毎にプロットしたものが (d) になる。各空間周波数毎にコントラストが 0 となる位置が徐々に右にずれており、これが球面収差の影響となる。すなわち、各空間周波数毎にフォーカス方向に補正を加え、正しい位置にコントラスト 0 となるように位相補正をする事で本来の位相像を得ることができる。この方法が 3 次元フーリエフィルタリング法^{2,3)}で、



* Yoshihide KIMURA

1959年10月生まれ
大阪大学大学院 工学研究科 応用物理学専攻 博士後期課程 (1988年中退)
現在、大阪大学大学院 工学研究科 物理学系専攻 応用物理学コース
准教授 工学博士
専門/電子顕微鏡学
TEL : 06-6879-7841
FAX : 06-6879-7843
E-mail : kimura@ap.eng.osaka-u.ac.jp

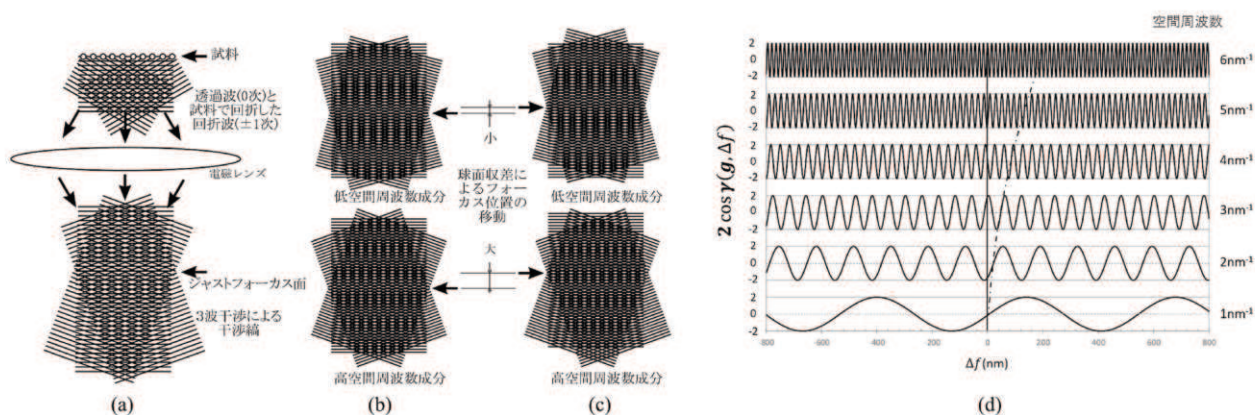


図1 (a) 3波干渉による像形成。(b)(c) 空間周波数の違いによるコントラスト反転の様子。(b)は球面収差なし、(c)は球面収差ありの場合。(d) デフォーカス量に対するコントラスト反転の様子。

図2のような処理過程になる。まず、(a) フォーカスを変えながら一連の画像シリーズを撮影する。(b) これを3次元フーリエ変換する。各空間周波数毎にコントラストが振動していたが、これがフーリエ空間では上下対称的にエバルト球対上に線形結像成分として現れてくる。これの上側をフィルタリングし、さらに球面収差の影響による位相変化を補正する補正関数(c)を掛け、フーリエ空間での処理結果(d)を得ることができる。これを3次元フーリエ逆変換することで、球面収差を補正した位相像が得られることになる(e)。しかしながら、元画像にフ

ォーカスシリーズの画像が必要なため、実時間での処理とはならない。

実時間収差補正位相像

図1(d)のデフォーカス量に対する一つの空間周波数に対して見直すと、正弦波状にコントラストが変化していることがわかる。これは、この正弦波振動に対して同様の正弦波を掛けることにより、ロックイン検出法が適用できることを示している。すなわち、フォーカスを変化させながら正弦波を掛け、積算することにより特定の空間周波数成分が抽出で

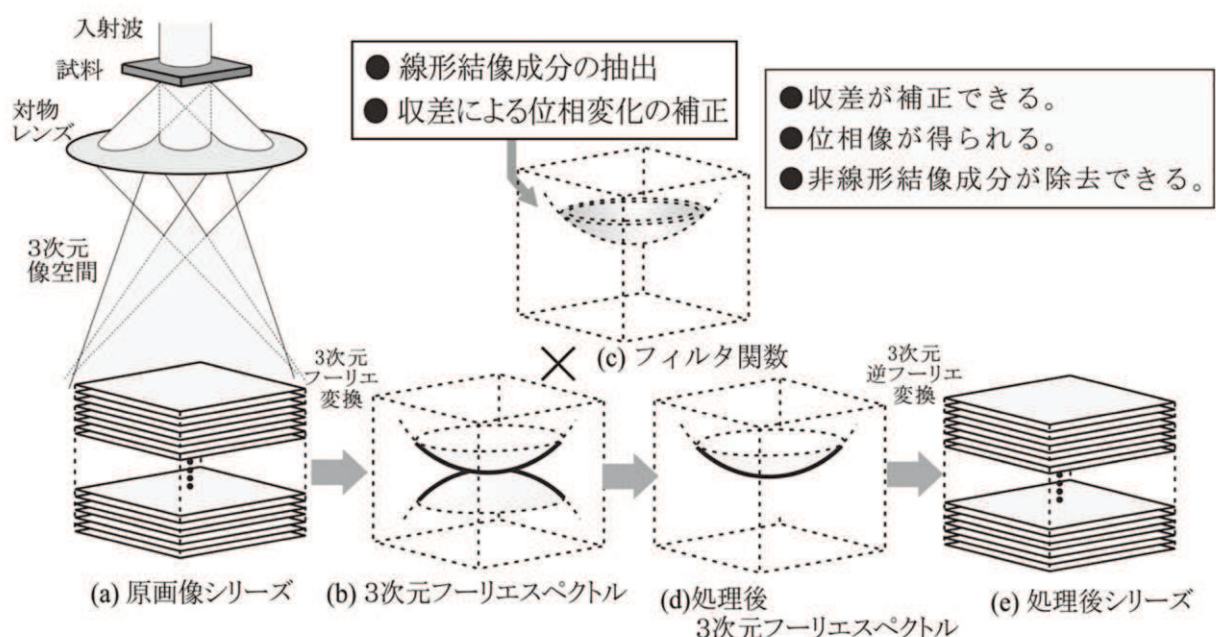


図2 3次元フーリエフィルタリング法による収差補正法。(a) 原画像シリーズの撮影。(b) 3次元フーリエスペクトル。エバルト球対上に線形結像成分が現れる。(c) 球面収差補正関数。(d) フーリエ空間での処理結果。(e) 補正されたデフォーカスシリーズ画像。

きることになる。また、特定の空間周波数のコントラスト振動強度はデフォーカス値に対して一様ではなく、球面収差による原点移動の2倍のデフォーカス値の部分で最大となる分布を示す。そのため、図3(a)に示したようなコントラスト透過曲線を実現するためには、振幅成分用には(b)、位相成分用には(c)のようなデフォーカス値に対する重み関数を掛けながら積算することにより球面収差補正された像を得ることができる。一般に呼ばれている位相成分が $\sin$ 成分、振幅成分は $\cos$ 成分となる。ただ、撮像装置はすべて強度の加算しかできないため、これらの重み関数を正の部分と負の部分に分けて処理する必要があるため、試料が位相変化しか与えない場合でも2フレームは撮影する必要がある。通常の毎秒30フレームの撮影では半分のフレームレートになるが、毎秒15枚の位相像を得ることができる。

滞在時間変調法

デフォーカス値に対して必要な重み関数の荷重を掛ける方法に滞在時間法がある。これは、図4に示したように、時間に対してデフォーカス量を図のように変化させる方法で、絶対値の大きな荷重が必要なところはゆっくりとフォーカスを変化させ、不要なところは急激に変化させることで撮影像に入らないようにするものである。これを重み関数の正の部分用のフォーカス変化と負の部分用のフォーカス変化を撮影フレーム毎に切り替え、この2つの画像を減算することで必要な重み関数の掛かった画像を得ることができる。このようにフォーカスを早く変化をさせるために電子顕微鏡の加速電圧の変調を行う浮遊型加速電圧変調法を採用している。図5はそのシステム全中で、加速電圧電源、高圧ケーブルおよび電子銃部のグラウンドを切り離し、TEMの接地電位との間に変調電源を設置し、その上に切り離れたグラウンドを接続することで実現しており、加速電圧電源の安定性を維持したまま正確で高速な加速電圧変調を行うことができる⁴⁾。

実時間位相像再生

滞在時間法と浮遊型加速電圧電源を用いることで、球面収差の影響を除去した位相像が実時間で得ることができる。図6にそのシステムの概略図を示した。変調電源により滞在時間法による正側と負側のフォ

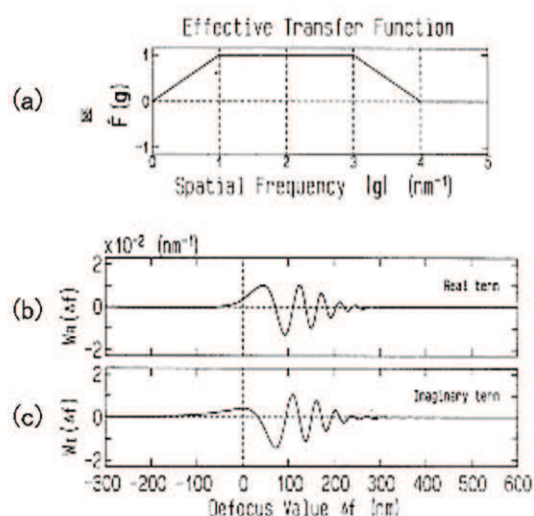


図3 (a) 希望するコントラスト伝達関数。(b) 振幅成分用重み関数。(c) 位相成分用重み関数。

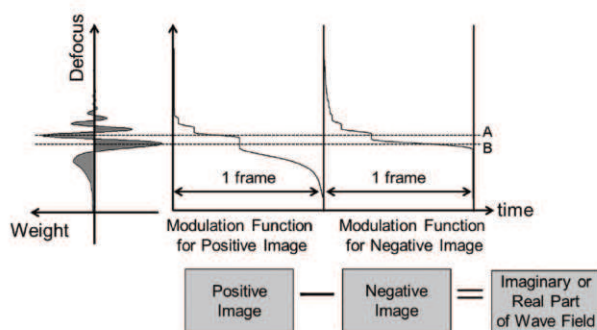


図4 滞在時間法による重み関数の実現。

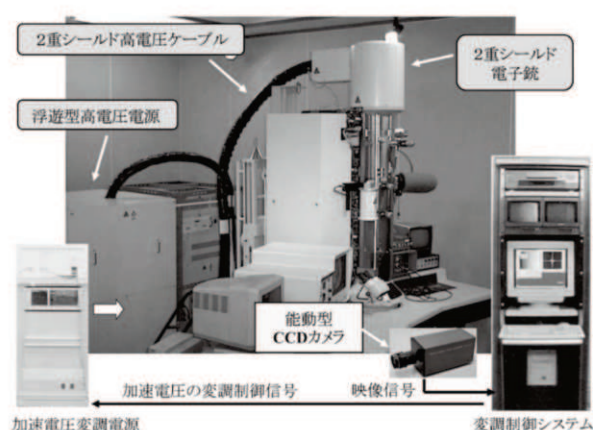


図5 浮遊型加速電圧電源による変調システム。

ーカス変調を行い、TVカメラにより各画像を取得する。正画像と負画像を減算して処理像とすることで、無球面収差の位相像を得ることができる。その際、正画像のA1と負画像のB1を減算した結果を得た

後に、次の正画像 A2 からすでに得ている負画像 B1 を引くことで次の処理像を得ることができる。これにより実時間で球面収差の影響を除去した位相像を得ることができる。

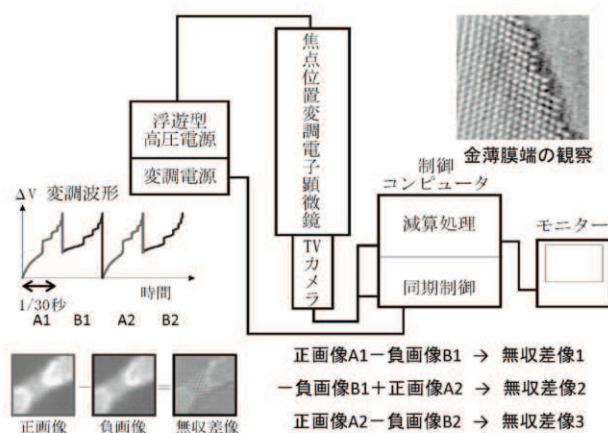


図6 実時間無収差位相像再生システム。

波動場再生

これまで試料が平坦で電子波に位相変化を与える場合を想定して像再生を議論してきたが、試料が平坦でなく三次元構造を持っている場合には、フォーカスの合った位置という定義ができなくなる。試料に高低差がある場合、低い場所の試料にとってフォーカスの合った合焦点位置は高い場所の試料にとってはフォーカスのずれた位置となり、試料が位相変化のみを与えるとしてもコントラストが現れてくる。すなわち、コントラストの変動起点がずれてい

ることになる。そこで、sin 関数に従った成分だけではなく、cos 関数に従った成分も得ることができれば、試料直下の波動場を収差を除去した状態で得ることができる⁵⁾。この波動場が求まればその波動場を伝播させることで自由にフォーカスを変えた像を得ることができ、試料の高さ情報を得ることができるようになる。この cos 成分を得るための重み関数が図 3(b) の振幅成分用の重み関数となる。そこで図 7 に示したようにデフォーカス変調を、sin 関数の正部分用、cos 関数の正部分用、sin 関数の負部分用、cos 関数の負部分用の 4 パターンの変調を繰り返し、sin 関数の正負部分を用いて sin 成分の像、cos 関数の正負部分を用いて cos 成分の像を連続して得る。この sin 成分と cos 成分の像から波動場を求められる。次の波動場には、同じ cos 成分の像と次の sin 成分の像から求めることで、撮影フレームレートと同じレートで連続して波動場を求めることができる。4 コマの撮影期間中に試料の移動等が入ると得られる波動場が乱れるが、実時間での波動場再生が可能になる。

試料高さの推定

波動場は cos 成分および sin 成分の補正画像から求まるが、これを指数関数の実数部と虚数部に当てはめることで、撮影像の波動場とする事ができる。試料を電子波の位相変化しか与えない試料と考えると、フォーカスが合っている場合は虚数部分が位相像になり、実数部分には何も現れてこない像となる。

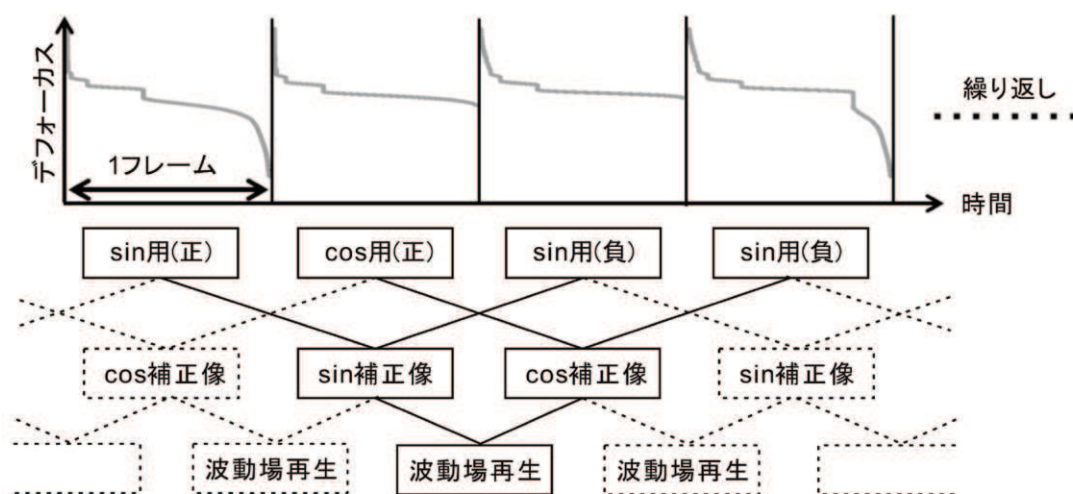


図7 実時間波動場再生法。

しかし、フォーカスがずれている場合は、実数部分にもコントラストが現われてしまう。すなわち、実数部分のコントラストが消失するフォーカス位置に合わせれば、フォーカスの合った位相像を得ることができることになるが、薄膜試料などにおいては、電子線照射による熱ドリフトが高さ方向にも生じるため合わせるのは困難である。しかしながら、本手法においては、フォーカスがずれている場合でもその波動場を得ることができるため、演算により求めた波動場を進行あるいは後退させた波動場を算出することができる。フォーカス位置をずらした時の像を算出することができるのである。すなわち、フォーカスの合った像を後で得られることになる。波動場を求めるまでは、単なる2次元の画像の減算処理のみであるため容易に行うことができるが、波動場を進行や後退させるためには、フーリエ変換をした後、空間周波数に対応させて位相を回転し、逆フーリエ変換をする必要がある。また、フォーカス位置の推定のためには、必要なフォーカス位置精度で前後の像を得たのち実数画像のコントラストが最小のものを求める必要があるため、演算量は大幅に増えてくる。これを可能にするのが近年発展のめざましいGPUによる並列演算である。NVIDIAのGeForceGTX970を用いて実時間でフォーカスの合った像を得ることができている。図8に金薄膜の観察結果を示した。試料が薄いため、観察時間に伴い膜の高さが変動する。観察開始の0秒時点でフォーカスを合わせているが、5.9秒や7.0秒後には膜の高さが変わってしまい、 $\cos$ 成分に相当する実数像でコントラストが現われており、位相像に相当する虚数像でもフォーカスがずれてしまっている。一方、実時間での波動場再生像を元に実数部分のコントラストが最小となるフォーカス位置を求め、そのフォーカスでの次数像と虚数像を下側に示している。こちらでは時間によらず、実数像ではコントラストがほとんどなく、ジャストフォーカスの位相像を得ることができている。

おわりに

浮遊型加速電圧変調システムで加速電圧を変調し、滞在時間による重み関数を掛けた像を元に、実時間で波動場を再生できる焦点位置変調型実時間位相再生透過型電子顕微鏡について述べた。この手法は、

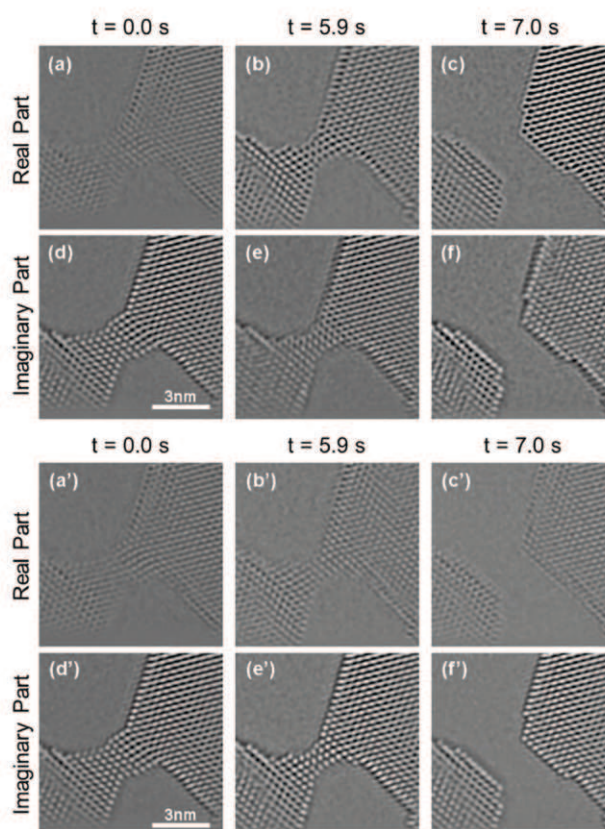


図8 金薄膜の観察結果。(a)-(f): 観察フォーカスでの画像、(a')-(f'): フォーカスを合わせた画像。上段では試料高さの変動により実数部の画像にコントラストが現れている。下段のフォーカス探索後の画像では試料高さの変動によらず、フォーカスの合った像が得られている。

試料透過後の電子波の波動場を再生することが実時間で再生できるもので、通常の観察では得ることのできない、フォーカスの合った位置での位相像を得ることができる。GPUの進化により、これを実時間で処理できるようになったが、まだ問題点もある。一つは、低空間周波数の再生ができないことである。これはフォーカスの変調幅を大きくすれば良いのであるが、数kVの加速電圧変調が必要となり、これを100kHz程度の応答まで広げることは困難である。何か新しいフォーカス変調方法の開発が待たれる。また、加速電圧電源や高圧ケーブル、電子銃の改造が必要であることも本手法が他の研究機関で採用されない要因にもなっている。しかしながら、実時間でフォーカスの合った位置を求められる機能は、TEMにオートフォーカス機能を持ち込めることになるため、この方向での開発も今後行われる予定である。

参考文献

1. 生田孝: 生産と技術、第46巻、第3号、12 (1994).
2. T. Kawasaki, Y. Takai, T. Ikuta, and R. Shimizu: Ultramicroscopy, 90, 47 (2001).
3. T. Nomaguchi, Y. Kimura, and Y. Takai: Ultramicroscopy, 108, 1520 (2008).
4. Y. Kimura, Y. Takai, T. Kawasaki, R. Shimizu, T. Ikuta, S. Isakozawa, Y. Sato and M. Ichihashi: J. Electron Microsc., 48, 873 (1999).
5. T. Tamura, Y. Kimura and Y. Takai: Microscopy, 67, 37-45 (2018).

