

企画セッション | 部会・連絡会セッション：放射線工学部会

■ 2019年3月21日(木) 13:00 ~ 14:30 | ■ F会場 共通教育棟2号館 2F 23番

[2F_PL] 電子顕微鏡の現状と将来展望

座長:高橋 浩之(東大)

[2F_PL01] 先進原子分解能電子顕微鏡による材料局所電磁場解析

*柴田 直哉¹ (1. 東大)

[2F_PL02] 走査透過電子顕微鏡および電子エネルギー損失分光法による材料評価

*木本 浩司¹ (1. 物材機構)

[2F_PL03] 電子線ホログラフィーによる材料解析

*谷垣 俊明¹ (1. 日立)

先進原子分解能電子顕微鏡による材料局所電磁場解析

Direct electromagnetic field imaging in materials by advanced atomic-resolution electron microscopy

*柴田 直哉

東京大学

収差補正走査透過型電子顕微鏡法（aberration-corrected STEM）は、原子サイズにまで絞った電子線を用いて、材料内部の原子構造を実空間直接観察する手法である。現在、40.5pm の空間分解能が達成されており、水素やリチウムなどの軽元素原子の直接観察も可能である。近年、我々のグループでは原子分解能観察に対応可能な多分割型 STEM 検出器を独自開発し、検出面上の位置や角度に敏感な原子分解能 STEM 像を 16 画像同時に取得可能なシステムを構築した。現在、この分割型検出器を用いて走査型透過電子顕微鏡法（STEM）の一手法である微分位相コントラスト法（Differential Phase Contrast: DPC）の開発に注力している。この手法は、材料内部の電場・磁場構造を直接観察できることから、材料・デバイスの超微細構造解析の分野において大きな注目を集めている。この DPC STEM 法を原子分解能 STEM に応用することによって、原子内部の電場を直接観察することに世界で初めて成功している[1,2]。Fig.1 に SrTiO_3 の原子分解能 DPC STEM 像を示す。(A)は同時取得した HAADF 像、(B)(C)はそれぞれ電場ベクトルカラーマップ及び電場強度マップを示す。電場像から、原子中心の原子核から電場が放射状に湧き出す様子を実空間で直接観察できていることがわかる。つまり、原子分解能 DPC STEM は原子の存在だけでなく、その内部構造の直接観察をも可能にする手法であると言える。その他、材料中の磁場観察への応用例(磁区、磁気スキルミオン観察) [3,4]なども報告する。更に、現在開発中の原子分解能磁場フリー電子顕微鏡について、その進捗状況及び将来展望について紹介する。

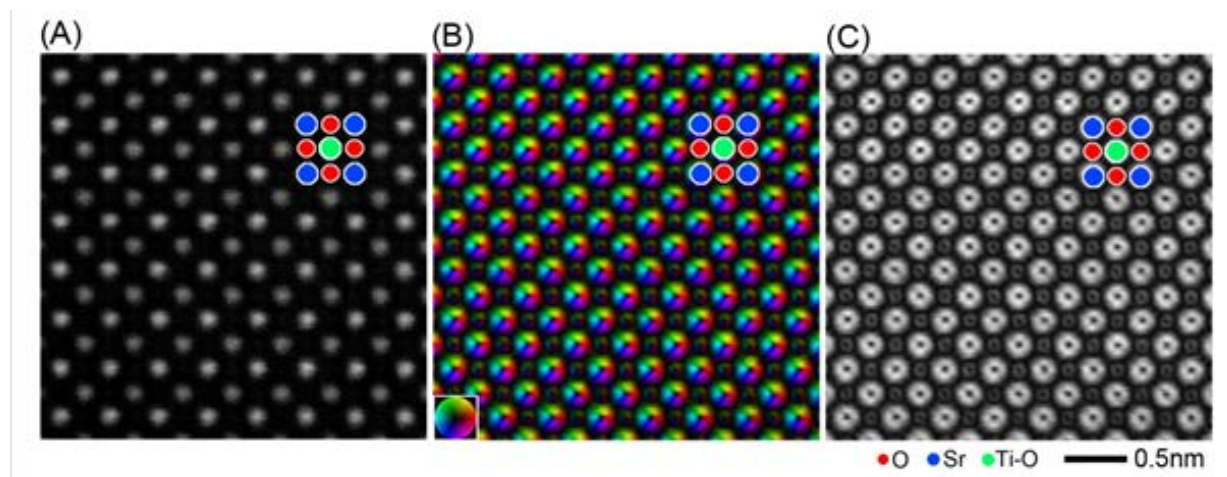


Fig. 1: SrTiO_3 [001]の原子分解能 DPC STEM 観察結果[2]. (A) ADF 像. (B)DPC STEM による原子電場ベクトルマップ. (C) DPC STEM による原子電場強度マップ.

[1] N. Shibata *et al.*, *Nature Phys.*, **8**, 611-615 (2012).

[2] N. Shibata *et al.*, *Nature comm.* **8**, 15631 (2017).

[3] T. Matsumoto *et al.*, *Sci. Adv.* **2**, e1501280 (2016).

[4] N. Shibata *et al.*, *Acc. Chem. Res.*, **50**, 1502-1512 (2017).

*Naoya Shibata

UTokyo

放射線工学部会セッション

電子顕微鏡の現状と将来展望

Current status and future trends in electron microscopy

走査透過電子顕微鏡および電子エネルギー損失分光法による材料評価

Material characterization using scanning transmission electron microscopy
and electron energy-loss spectroscopy*木本浩司¹¹物質・材料研究機構

走査透過電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscopy; STEM)と電子エネルギー損失分光法(Electron Energy-Loss Spectroscopy; EELS)を組み合わせることにより、局所領域で結晶構造解析や元素分析が可能になる。本発表では、STEM および EELS を使って現状どういった解析ができるのか紹介したい。

STEM 像観察による結晶構造解析

STEM を用いると投影した原子配列を直接観察できる。空間分解能は収束した電子のプローブ径に依存し、収差補正装置を備えた装置では 50 pm 以下まで向上している。透過電子を環状暗視野(Annular Dark-Field; ADF)検出器や環状明視野(Annular Bright-Field; ABF)検出器を使って、原子配列を可視化できる(図 1)。ADF 像では Ga が輝点として、ABF 像では Ga と N が暗点として観察でき、原子位置をピコメートルオーダーで決定できる[1]。ADF 像強度は定量的に解析して、原子数に変換することも可能であり、ドーパントの検出などにも利用されている[2]。ADF 散乱強度は軽元素では原子番号のべき乗(1.5~2.0)に比例するため元素の識別も可能である[3]。現在はセグメント化された検出器を使って回折図形を取得してデータを解析する 4D-STEM が実用化されつつある[4]。

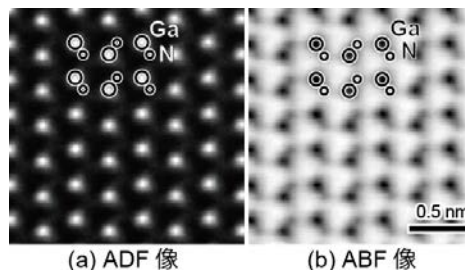


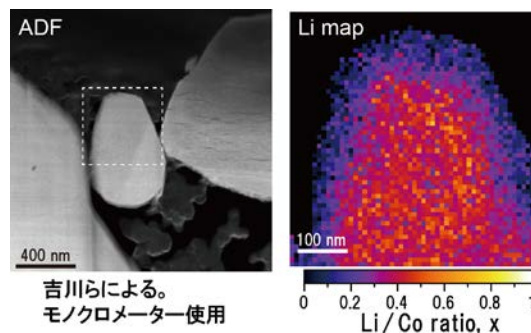
図 1 GaN の STEM 像観(加速電圧 300kV)。

STEM-EELS による原子配列の可視化

試料の内殻電子を励起した EEL スペクトルから、元素毎に原子配列を可視化できる[5]。プローブ径を微小にするだけでは不十分で、非弾性散乱過程が原子レベルで局在している必要があり、よりエネルギー損失の大きな(より内殻の電子励起)非弾性散乱過程を捉える必要がある。さらにスペクトルの微細構造(ELNES)を利用すれば、化学結合状態の異なる元素を可視化する事も出来る[6]。EELS は軽元素のマッピングに特に適しており、Li 電池正極材料中の Li マッピングにも利用している(図 2)[7]。モノクロメーターを使うことにより放射光の X 線吸収スペクトル(XANES)と同様のエネルギー分解能(<0.1eV)が実現できる[8]。材料研究者のニーズを正しく捉え、材料開発と計測手法の開発双方の発展に寄与したい。

- 1) Kimoto et al. *Ultramicroscopy* **110** (2010) 778.
- 2) Kimoto et al. *App. Phys. Lett.* **94** (2009) 041908.
- 3) Yamashita, Kimoto et al. *Sci. Rep.* **8** (2018) 12325.
- 4) Kimoto & Ishizuka *Ultramicroscopy* **111** (2011) 1111.
- 5) Kimoto et al. *Nature* **450** (2007) 702.
- 6) Haruta, Kimoto et al. *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012) 163107.
- 7) Kikkawa, Kimoto et al. *J. Phys. Chem. C* **119** (2015) 15823.
- 8) Kimoto *Microscopy* **63** (2014) 337.

本研究の一部は、元素連略拠点(東工大細野教授)、新学術領域(複合アニオン JP16H06440)によるものです。

*Koji Kimoto¹¹National Institute for Materials Science図 2 STEM-ADF 像と STEM-EELS による Li_xCoO_2 ($x \sim 0.4$) の Li マップ[7]。

放射光工学部会セッション

電子顕微鏡の現状と将来展望

Current status and future trends in electron microscopy

電子線ホログラフィーによる材料解析

Material Analysis by Electron Holography

*谷垣 俊明¹¹日立製作所 研究開発グループ

電子線ホログラフィーは電子波の干渉を用い、観察対象の電場・磁場を高い分解能で観察することができる手法である。さらに回折波を干渉させる方法により、材料内部の歪みも観察することができる。これらの基本的な電子線ホログラフィーの観察機能は次世代の材料開発に有用な知見を与えると期待されるが、従来の手法では観察可能な領域が薄片試料のエッジに限られており、電子線ホログラフィーの適用範囲は限られていた。この問題を解決するため、電子波を電子線バイプリズムで分離し、観察したい領域を狙って電子波を照射する分離照射電子線ホログラフィーを開発した[1]。また、電子線ホログラフィーとトモグラフィーを組み合わせることで、電磁場を三次元的に観察することができる。1MV 超高压電子顕微鏡を用いると比較的厚い試料が観察できる。その高い透過能を利用し、磁気渦を三次元的に観察することに成功している[2]。一方、電磁場を高い分解能で観察する点でも、超高压電子顕微鏡は威力を発揮している。世界唯一の収差補正器を搭載した、1.2MV 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡は電場観察用のモードで 43 pm、磁場観察用の試料に磁場が印加されないモードで 0.24 nm の TEM 分解能を有する。近年、磁場観察のため電場情報と磁場情報を分離するパルス磁場印加システムを開発し、0.67 nm 分解能での磁場観察に成功している[3]。

Reference

[1] T. Tanigaki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 101 (2012) 043101.[2] T. Tanigaki *et al.*, *Nano Lett.* 15 (2015) 1309.[3] T. Tanigaki *et al.*, *Sci. Rep.* 7 (2017) 16598.

謝辞：本研究は内閣府最先端プロジェクトの支援を受けず総合科学技術会議により制度設計された最先端研究開発支援プログラムにより、日本学術振興会を通して助成されたものです。また、本研究の一部は JST CREST (JPMJCR1664)の支援を受けたものである。

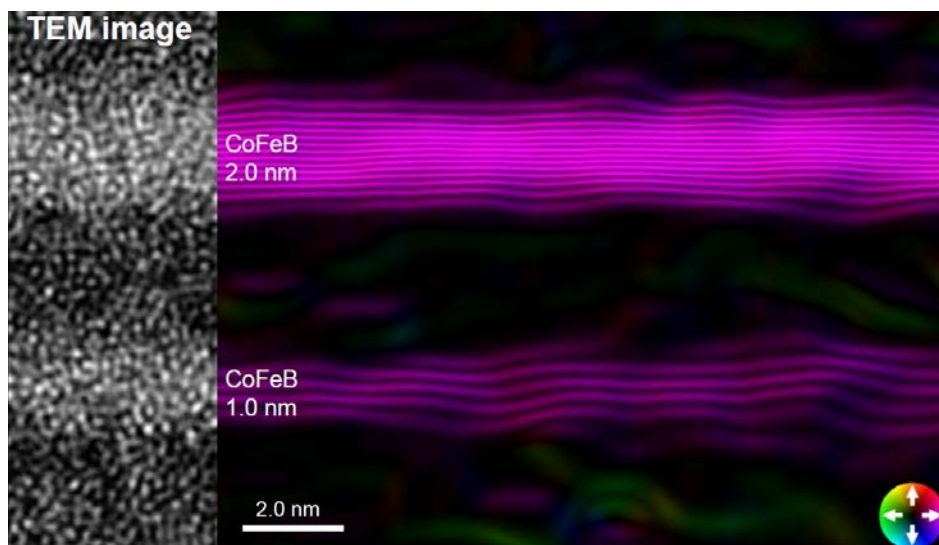


図1 サブナノメートル分解能で観察した CoFeB/Ta 多層膜内の磁束線分布

*Toshiaki Tanigaki¹¹Research & Development Group, Hitachi, Ltd.