

氏名	たに やま あきら 谷 山 明
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成9年10月8日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第2項
最終学歴	平成3年3月 大阪大学大学院基礎工学研究科博士前期課程物理系専攻 修了
学位論文題目	イメージングプレートの特性評価と高分解能電子顕微鏡像の 定量解析への応用
論文審査委員	主査 東北大学教授 進藤 大輔 東北大学教授 早稲田 嘉夫 東北大学教授 平賀 賢二

論文内容要旨

透過型電子顕微鏡の発明から約半世紀が経過し、その間に顕微鏡の性能や観察法はめざましい発達を遂げてきた。加速電圧の高圧化やレンズ性能の向上により電子顕微鏡の分解能が向上し、現在では、高分解能電子顕微鏡法を用いて原子配列を直接反映する結晶構造像を得ることが可能になっている。また、これまで写真フィルムが利用されてきた電子顕微鏡像の記録も、新しい記録媒体の開発により急速に進歩した。電子顕微鏡の新しい記録媒体であるイメージングプレートは、入射電子量と画像強度が直線関係を示すことや、電子線に対する感度がフィルムに比べて非常に高いこと、さらに画像データがデジタル形式で記録される等の特性を持っている。したがって、イメージングプレートは、従来の写真フィルムを用いた高分解能電子顕微鏡観察では困難であった顕微鏡像の定量的な解析に対して非常に有効な記録媒体であるといえる。しかしながら、最近開発された画素サイズが $25\mu\text{m}\times 25\mu\text{m}$ のイメージングプレート（以下、 $25\mu\text{m}$ IP）についてはその特性が十分に把握されておらず、また画像解析システムについても十分な状態とはいえない。本研究では、 $25\mu\text{m}$ IPを電子顕微鏡の記録媒体として適切に利用し、その画像を用いた定量解析法を確立するために、入射電子に対する $25\mu\text{m}$ IPの特性を評価し、その最適使用条件を把握することを目的とした。さらに、イメージングプレートによる画像データの解析システムを整備し、高分解能電子顕微鏡像の定量解析に応用することを目的とした。特に定量解析への応用では、超高圧電子顕微鏡を用いた高分解能電子顕微鏡観察に $25\mu\text{m}$ IPを適用し、得られた高分解能電子顕微鏡像から結晶構造の詳細な定量解析を行った。本論文はこれらの研究経緯をまとめたもので、全5章からなる。

第1章 序論

本章では、本研究の背景を述べ、本研究の目的を明確にした。

第2章 イメージングプレートによる画像データの解析システムの構築

本章では、イメージングプレートの原理とイメージングプレートによる画像データの解析システムの概要について説明した。イメージングプレートの画像記録の原理は、輝尽発光現象、すなわち発光体が電子線や放射線による刺激を受けた後に可視光などの励起光を照射されると発光する現象を利用している。イメージングプレートに記録された画像は、専用のデータ読み取り装置（以下、IPリーダー）と高性能プリンター及びその支援コンピュータからなるIPシステムを用いて出力される。IPシステムには簡単な画像処理ソフトが付属されているが、精密な画像解析を行うには不十分であったため、独自に解析システムの構築を行った。解析システムは、エンジニアリングワークステーション (EWS)、パーソナルコンピュータ (PC)とスーパーコンピュータやACOSなどの大型計算機をコンピュータネットワークによって接続したもので、大容量の画像データの解析は、このシステムを用いて円滑にかつ迅速に行うことが可能になった。さらにイメージングプレートやその他の画像入力装置を用いて得られたデジタル画像データの利用研究の一環として、コンピュータネットワークを利用した電子顕微鏡画像データベース「えみりあ」を構築した。「えみりあ」ではWorld Wide Webのインターフェースを利用しているため、非常に簡単な操作で顕微鏡画像を閲覧することができ、インターネットにも接続されているため遠隔地からの利用も可能となるなど、新しい形態のデータベースとして今後の発展が期待される。

第3章 イメージングプレートの特性評価

本章では、25 μ m IPについて入射電子に対する種々の特性を評価した。25 μ m IPのダイナミックレンジは、IPリーダーの仕様により1つの読み取りゲインモードでは4桁の範囲に制限されているが、25 μ m IP自身は5桁のダイナミックレンジを持ち、この範囲で入射電子量と25 μ m IPに記録された画像強度は良い直線関係を示した。しかしながら、600kVや1250kVの加速電圧下では、入射電子量の少ない領域において入射電子量と画像強度の関係が直線関係から外れる傾向を示した。これは、加速電圧の増加に伴って電子顕微鏡内で発生するX線の量が増加し、画像上へのX線の「かぶり」の影響が顕著になったことによると考えられた。また、25 μ m IPの感度特性は入射電子の加速電圧に依存し、100kV付近で最も高感度となった。

画像記録後の経過時間による画像強度の減衰（フェーディング）は入射電子量、すなわち記録されている画像の強度に依存せず、25 μ m IPに記録された画像は記録後の時間経過に伴って一様に減衰することが明らかになった。また、時間経過に伴う画像強度の減衰は緩やかで、100時間経過後でも約75%の

画像強度を保っており、画像強度を長時間保持できることが明らかになった。25 μ m IP に記録された画像は IP リーダーで読み取りを行った後でも残存しており、読み取りを何度も繰り返した場合、読み取り毎に画像強度は減衰していったが、10 回の読み取りを行った後も画像は残存していた。読み取りによる画像強度の減衰は記録されている画像の強度に依存せず、25 μ m IP に記録された画像は IP リーダーでの読み取りによって一様に減衰することが明らかになった。しかしながら、画像強度の減衰度は読み取り毎に一定値を示さなかった。

25 μ m IP の出力画像の S/N は入射電子量の増加に伴って増加し、一定の照射量を超えると飽和する傾向を示した。同一照射量で比較すると、S/N は IP リーダーのゲインモードを最高感度に設定した場合の方が最低感度に設定した場合よりも大きな値を示した。また、加速電圧の増加に伴って S/N は減少する傾向を示した。しかしながら、S/N の飽和値は、IP リーダーのゲインモードや加速電圧に関係なく、ほぼ同じ値を示した。25 μ m IP の検出量子効率を示す DQE (Detective quantum efficiency) は、入射電子量に対して上に凸の曲線を示し、低照射量領域及び高照射量領域で低い値を示した。また DQE は加速電圧やゲインモードに依存しており、その最大値は、IP リーダーのゲインモードを最高感度に設定した場合、加速電圧が 100kV 及び 200kV では入射電子量 2×10^1 e/pixel でそれぞれ 70% と 45% を、600kV の場合は 1×10^2 e/pixel で 30% を、1250kV の場合は 2×10^2 e/pixel で 5% を示した。また、最低感度に設定した場合、加速電圧が 100kV 及び 200kV では入射電子量 2×10^2 e/pixel でそれぞれ 20% と 10% を示した。

さらに、S/N 特性と DQE 特性の測定結果を考慮して、加速電圧 100kV, 200kV, 600kV, 1250kV の場合について、電子顕微鏡像を撮影する際の最適照射量を求めた。

第 4 章 イメージングプレートを用いた高分解能電子顕微鏡法による α -AlB₁₂ の精密構造解析

本章では、25 μ m IP を高分解能電子顕微鏡観察に応用した例として、 α -AlB₁₂ の精密構造解析への適用を行った。観察には、東北大学百万ボルト電子顕微鏡室に設置された JEM-ARM1250 超高压電子顕微鏡を用い、1250kV の超高加速電圧下で観察を行った。このような加速電圧下で 25 μ m IP を用いた例はなかったが、第 3 章で行ったイメージングプレートの特性評価の結果を参考にして、照射量を 200 e/pixel から 600 e/pixel に設定して、直接倍率 80 万倍で撮影することにより、 α -AlB₁₂ 結晶の鮮明な結晶構造像を得ることに成功した。観察された高分解能電子顕微鏡像は、X 線回折を用いた解析によって得られた結晶構造モデルを定性的に良く反映していた。さらに、撮影された高分解能電子顕微鏡像に対して計算機シミュレーションを用いた定量解析を行った。 α -AlB₁₂ 結晶の高分解能電子顕微鏡像を並進操作して得られた平均化画像と、結晶構造モデルに基づいたシミュレーション像を残差因子を用いて定量的に比較したところ、残差因子は、[001]入射の高分解能電子顕微鏡像の場合 7.25%、[111]入射の高分解能電子顕微鏡像の場合 5.76% の最小値を示し、平均化画像が X 線回折を用いた解析によって得られた結晶構

造モデルを良く反映していることが定量的に示された。

一方，[111]入射で観察された高分解能電子顕微鏡像中には，部分的に明るいコントラストを示す領域が不規則に存在した。この明るいコントラストには Al 原子の存在量が関与していると考え，Al 原子の占有率を様々に変化させた構造モデルを用いてシミュレーション計算を行い，シミュレーション像と観察像を残差因子を用いて定量的に比較した。その結果，Al 原子の占有率を $Al(3)=50\%$ ， $Al(1)=Al(2)=Al(4)=Al(5)=0\%$ とした場合に残差因子が最小となり，観察像で見られた明るいコントラストがシミュレーション像上で良く再現された。したがって，不規則に存在した明るいコントラストには Al 原子の存在量が関与しており，その部分で Al 原子が局所的に減少していることが明らかになった。

また，高分解能電子顕微鏡像の定量解析で用いた，画像ノイズの除去法やシミュレーション計算法，観察像とシミュレーション像の定量的な比較法などの解析手法についても詳しく説明した。

第5章 総括

本研究では，電子顕微鏡の新しい記録媒体である $25\mu\text{m}$ IP についてその特性を明らかにした。 $25\mu\text{m}$ IP は電子顕微鏡の記録媒体として優れた性能を持っており，電子回折図形の記録や高分解能電子顕微鏡像の記録への応用が期待できる。また，超高压電子顕微鏡を用いた高分解能電子顕微鏡観察に， $25\mu\text{m}$ IP を適用した結果，複雑な結晶構造を持つ $\alpha\text{-AlB}_{12}$ の鮮明な結晶構造像を得ることに成功した。さらに，これまで定性的な解釈に留まっていた高分解能電子顕微鏡像とシミュレーション像の対応関係を残差因子を用いて定量的に解析することにより，結晶構造モデルの精密化を図ることができ，X線回折や中性子回折による解析では困難であった局所領域での結晶構造に関する定量的な解析が可能であることを実証した。

審査結果の要旨

電子顕微鏡の新しい記録媒体であるイメージングプレートは、写真フィルムの特性を超える優れた特性を持ち、電子顕微鏡像の定量的な解析に対する有効な記録媒体として期待されている。本論文は、最近開発された画素サイズが $25\mu\text{m}\times 25\mu\text{m}$ のイメージングプレートを用いて得られた高分解能電子顕微鏡像の定量解析法を確立するために、入射電子に対するイメージングプレートの特性評価により最適使用条件を把握し、超高圧電子顕微鏡を用いた高分解能電子顕微鏡像の定量解析に応用した結果をまとめたもので、全編5章よりなる。

第1章は序論である。

第2章では、イメージングプレートの原理とイメージングプレートによる画像データの解析システムの概要について説明している。

第3章では、入射電子に対するイメージングプレートの種々の特性を評価し、入射電子量と画像強度の関係、感度特性の加速電圧依存性、画像記録後の時間経過に伴う画像強度の減衰などの特性について明らかにしている。また、出力画像の S/N や検出量子効率を示す DQE についても評価しており、従来用いられている写真フィルムに比べて優れた検出効率を持つことを明らかにしている。さらに、S/N 特性と DQE 特性の測定結果を考慮して、電子顕微鏡像を撮影する際の最適照射量を求めている。

第4章では、超高圧電子顕微鏡を用いた $\alpha\text{-AlB}_{12}$ の高分解能電子顕微鏡観察にイメージングプレートを適用し、鮮明な結晶構造像を得ることに成功している。これまで定性的な解釈に留まっていた高分解能電子顕微鏡像とシミュレーション像の対応関係を残差因子を用いて定量的に解析することにより、結晶構造モデルの精密化を図ることができ、X線回折や中性子回折による解析では困難であった局所領域での結晶構造に関する定量的な解析が可能であることを実証している。

第5章は総括である。

以上要するに本論文は、電子顕微鏡用イメージングプレートの特性評価を行い、超高圧電子顕微鏡を用いた $\alpha\text{-AlB}_{12}$ の高分解能電子顕微鏡観察に適用し、X線回折や中性子回折による解析では困難であった局所領域での結晶構造に関する新たな知見を与えたものであり、材料物性及び材料加工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。