講座

TEM 像の解釈(Ⅱ) Principles of TEM Image Formation (II)

今 野 豊 彦

Toyohiko Konno

^a東北大学金属材料研究所

要旨 透過電子顕微鏡(TEM)はいくつものレンズが組み合わさることにより、ビームを収束させたり回折パターンを得るという観察者にとっては必須の自由度を有している。まず本稿では前回述べた幾何光学に基づいたレンズ作用を2レンズ系に発展させることによりその動作原理を理解するとともに、それによってもたらされるいくつかの簡単な応用例に触れる。次に対物レンズの収差補正が可能になった結果、前回述べた位相コントラストトランスファー関数が与える分解能に対して、色収差によって定まる情報限界そのものが分解能を定めること、さらに今後は適切なディフォーカス量の選択がコントラストと分解能の両立という観点から必要になることに触れる。

キーワード:透過電子顕微鏡 (TEM), 2 レンズ系, 収束電子回折, 収差補正

1. はじめに

透過電子顕微鏡(TEM)が有するポテンシャルを最大限 に引き出すためには試料と電子の相互作用に関する知識と電 子光学系に関する知識とが必要である.前回は基本的な散乱 過程から動力学的効果までを概観したのち,幾何光学と波動 光学の基本的な事柄によりTEMが与える種々のコントラス トをどのように解釈するかを述べた.実際のTEMには多段 のレンズが組み合わさって構成されており,それが単に自由 度が増えたという言葉では言い尽くされない光学系の本質的 な制御手段とそれを応用した解析手法を我々に与えている. そして,その根幹となるのは2レンズ系である.したがって 本稿ではまず,2レンズを幾何光学の立場から復習し,それ が照射系においてどのように用いられているかを述べ,応用 例としては収束電子回折の基本的な事柄に触れる.また位相 コントラストという観点からは対物レンズに対する球面収差 補正が分解能とコントラストに与える効果に簡単に触れる.

2. 2レンズ系

2.1 光線図

電子顕微鏡の一つ一つのレンズの倍率は高々数十倍であ り、実際の電顕ではそれが巧みに組み合わされて光学系を成 している.それらは単に高い倍率を得るだけでなく、試料上 にビームを絞ったり、回折パターンと実像の間を行き来する という自由度を与えている.このことがまた、他の装置には ない多様性に満ちた特徴を電子顕微鏡に与えている.した がって複数のレンズがどういった関係にあり,前回述べたレ ンズ間の共役な面の間の関係を知ることは電顕の動作原理を 理解する上で必須であると同時に,実際的な見地からも電顕 のアラインメントを行うときに必要となる.その基礎となる のがここで述べる2レンズ系である.

図1に示すように試料が第1レンズの物体面に存在し、さ らにそのレンズの下に第2レンズが存在している状況を考え よう.(以下,ここでの議論は、ガウス光学系という近似の もとで進める.) この図からわかるように系全体としての物 体面、二つのレンズ、そして像面(スクリーンの位置)は固 定されている. さらに第1レンズの焦点距離も固定されてお り、我々に与えられた自由度は第2レンズの焦点距離f2の みである.たったこれだけの組み合わせで我々は試料が呈す る回折パターンと試料の像をスクリーン上に投影することが 可能である. すなわち第2レンズにとっての物体面を第1レ ンズの(a) 像面にあわせることにより実像が投影され,(b) 後焦点面にあわせることによりスクリーンには回折パターン が投影される.これらの操作は実際の電顕ではボタン一つで 行われる.それぞれの場合の焦点距離をf2, をf2,とおけば, 図からもわかるようにf2a <f2b である.言い換えると第2レン ズの電流値を変えることにより、スクリーンと共役な面を第 1レンズの後焦点面あるいは像面とすることができる. そし てそれぞれの条件下での拡大率、すなわちカメラ長や倍率は さらにこれ以降の複数のレンズにより変えることができる.

2.2 照射系

上記の二レンズ系は対物レンズから中間・結像レンズ系に 至るまでの,いわば試料の情報を抽出するための光学系の動 作原理の基礎となるばかりでなく,試料に電子を照射系する

^a〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1 TEL: 022-215-2125; FAX: 022-215-2126 E-mail: tjkonno@imr.tohoku.ac.jp 2008 年 7 月 29 日受付



図1 2レンズ系における光線図(細線は第2レンズにおける共役な位置関係を示すための補助線),(a)実像をスクリーンに 投影する場合(1次像面とスクリーンが共役),(b)回折パターンを投影する場合(第一レンズの後焦点面とスクリーンが共役). $f_{ha} < f_{ab}$ であることに注意.

ための自由度を与える手段としても用いられている. 熱電子 放出型の通常の電子顕微鏡では二つの収束レンズが働くこと により,電子源から出た電子を試料上に広げて照射したり, 試料上の一点に絞って局所領域からの分析等を実現してい る. また走査型透過電子顕微鏡 (STEM) においてビームを 絞る原理も基本的には同じである (実際には対物レンズの前 方磁界を巧みに用いている).

図2に第1収束(C1)レンズおよび第2収束(C2)レン ズがどのようにして機能しているかを模式的に示す.C1レ ンズの役割は電子銃の像(実際にはウェーネルト直下のクロ スオーバー)を縮小することである.すなわち前回も述べた ように、レンズを挟んで物体面からの発散角(半角)をa、 像面への入射角を β とすれば、そのレンズの倍率Mは $M=a/\beta$ で表されるから、このレンズの電流値を大きくすれ ば焦点距離が短くなることから、 β が大きくなり、結果とし てC1レンズが与える電子銃の像は縮小される.多くの電顕 で「スポットサイズ」と呼ばれているノブがこのC1レンズ に流れる電流を制御している.また図からわかるように多く の電子がC2絞りにより遮られ、結局、試料上のスポットサ イズを小さくすることは試料に向う電子量の減少という結果 を導く.

また実際にはβが大きくなるとC1 レンズにとっての物体 面がレンズ側に移動するので,試料上に与えられたC1 レン ズの条件で最小のスポットを投映しようとすると前項で述べ たのと同じ理由でC2 レンズの電流も連動して動かなくては ならない.このようなことは電顕に組み込まれ,通常,オペ レータにとってすべてが自動的になされるが,一方で,たと



図2 照射系(ビームを試料上に絞った場合)の光線図.電子 銃から発生した電子がクロスオーバーを作り,それが第1収束 (C1) レンズにより縮小され,さらに第2収束(C2) レンズに より試料上に絞られる.(この図ではクロスオーバーが $d_0 \rightarrow d_1$ → d_2 と縮小される様子も灰色の線を用いて誇張して示してい る.)また対物レンズの前後で試料面と1次像面とは共役の関 係にあるから,試料上に絞られたスポットは拡大されて1次像 面に投影される.

えば STEM においてビームを適切に絞るためにはレンズ間 のピボットポイントを正しく調整することが必須である. い ずれにしてもこのように電子銃直下のクロスオーバーと試料 上のスポットとが共役な関係となり,かつその大きさを自由 に変化させるためには二つのレンズの組み合わせが必須であ り,また最終倍率は二つのレンズにから見た光線の角度を図 のように $\alpha_1, \beta_1, \alpha_2, \beta_2$ とおいて次のように与えられる.

$$M = \frac{\alpha_1}{\beta_1} \cdot \frac{\alpha_2}{\beta_2} \tag{1}$$

原理的には以上のようにしてビームが試料面上に絞られる. 図2にはさらに対物レンズの一次像面まで光線図を描いている. そしてこの図には光源(クロスオーバー)が $d_0 \rightarrow d_1 \rightarrow d_2$ の順に照射系により縮小され、次にそれが対物レンズにより d_3 と拡大される状況も重ねて示している. さらにこの条件で、通常は図からもわかるように C2 絞りの像が後焦点面に現れる.

3. 電子回折

3.1 高次ラウェゾーン

前回,結晶からの回折が起こる条件は散乱ベクトル*q*が逆 格子ベクトル*g*に一致することであることを述べた.

 $\vec{q} = \vec{g}$

(2)

3次元結晶の逆格子点は3次元をなし、逆格子点の間隔は 結晶の単位胞定数(0.1 nmのオーダー)の逆数程度である. 一方,200 kV に加速された電子の波長は約2.5 pm であるか ら,波長と原子間距離とがほぼ等しいX線回折とは異なり、 エバルド球の半径は逆格子点間の距離に比べ非常に大きくな る.その結果、回折条件を近似的に満たす逆格子点が多くな り晶帯軸入射でもスクリーン上には回折スポットが多数現れ る.(電顕試料は薄く、実際の散乱強度は各逆格子点を中心 に上下にロッド状に広がる.)このとき、逆格子の原点を含 みエバルド球に接している平面上の一群の逆格子をZeroth Order Laue Zone: ZOLZ(ゾルツ)と呼ぶ.

エバルド球が一定の曲率を有しているため、回折パターン を縮小していくとスクリーンの端の方に ZOLZ よりも上にあ る逆格子の断面の一部が観察される.この状況を図3に示 した.それぞれの断面は FOLZ, SOLZ (それぞれ First, Second Order Laue Zone (フォルツ,ソルツ))といい、これらを総 称して高次ラウエゾーン (Higer Order Laue Zone, HOLZ (ホ ルツ)) と呼ぶ.この HOLZ を利用すると、簡単な幾何学的 考察から入射電子線の方向(晶帯軸の方向)の面間隔に関す る情報を得ることができる.すなわち図3(a)において三 角形 OPQ を考えると次式が成立し、

$$(1/\lambda)^{2} = (1/\lambda - nH)^{2} + G_{n}^{2}$$
(3)

HOLZ 間の間隔 H は次式で与えられる.

$$G_n^2 = \frac{2nH}{\lambda} - (nH)^2 \cong \frac{2nH}{\lambda} \tag{4}$$



図3 高次ラウエゾーン (HOLZ) の説明. エバルド球と第0 ラウエゾーン (ZOLZ),第1ラウエゾーン (FOLZ),第2ラウ エゾーン (SOLZ) が接する位置から入射電子に垂直な方向へ の逆格子距離を求めることが可能.

3.2 収束電子回折

2.2 節で見たように試料に対して平行ビームではなく,ス ポットとなるように電子を入射すると,そのときのC2 絞り の大きさによって定まる照射角(半角で a としよう)で電子 は入射し,図4に示すように後焦点面にはスポットではな くディスクが現れる.このとき試料が回折条件を満たしてい れば回折パターンがディスクにより置き換えられる.このと き比較的小さなC2 絞りを用いるとディスクも小さくなるが これは通常マイクロディフラクション(micro-diffraction)と 呼ばれ,局所的な領域からの回折パターンが必要な場合によ く用いられる.

一方,試料に対する照射角 2 α が試料中の hkl 面が与える ブラッグ角度 2 θ_{hkl} より十分大きい場合,ブラッグ条件が満 たされ回折が起こる.そして HOLZ 上には図5(a) に示す ように明るい HOLZ ラインパターンが現れ,逆に透過ディ スクの中にはその分だけ電子を失った部分に暗いラインパ ターンが現れる(図5(b)).実際の例を図6に示した.重



図4 収束電子回折の光線図. 太線(平行照射)が通常の電子 回折の光線図. それに対し試料のそれぞれの部位に2αの入射 角度でビームを絞って入射することにより後焦点面にはディス クが現れる.

要なことは HOLZ には ZOLZ では観察できない結晶の対称 性が現れるということ,そしてその情報が"裏返されて"透 過ディスクの中に暗い HOLZ ラインパターンとしてすべて 現れるということである.このような高次の反射はわずかの 面間隔の変動に敏感なので試料中の歪みの検出にもこの手法 は利用でき,応用上重要である.

3.3 動力学的効果

上記のようにビームを収束させて得た回折ディスク内には 角度の情報が含まれている.したがって試料が厚ければ試料 のその位置における動力学的効果がフリンジとして回折ディ スクの中に現れる(図7(a)).これは原理的には試料が曲っ たことに起因するベンドコントゥアーと同じ理由で発生し, それから試料の厚さを推定することができる.今,試料の厚 さをtとすればディスク内の強度の弱い位置に対し,励起誤 差sは次の関係を満たしている(n:整数, ζ_e:消衰距離).



図5 HOLZ線の形成. (a) ZOLZおよびFOLZの回折ディス クとHOLZ線. 回折ディスクの対称性がZOLZとFOLZで異 なることに注意. (b) 結晶の有する対称性が暗いHOLZ ライ ンパターンとなって透過ディスクに現れる.

$$\left(\frac{s_n}{n}\right)^2 = \frac{1}{t^2} - \frac{1}{n^2 \zeta_g^2}$$
(5)

一方、ブラッグ条件からのずれを $\Delta\theta$ と置くと、エバルドの作図から $s=g_{hkl}$: $\Delta\theta$ となる. さらに回折条件より $\lambda \approx d \cdot 2\theta_B$ であるから、結局 s_n は $\Delta\theta$ を用いて($2\theta_B$ で規格化して)次のように書ける.

$$s_n = \lambda \frac{\Delta \theta_n}{2\theta_B d^2} \tag{6}$$

ここでdはhkl面の面間隔で,(5)をプロットすることに より $t \ge \zeta_g$ が求まる(図7(b)).(実際にはnに任意性があ り,(5)が直線となる一連のnを選ぶ.たとえば図7(b) はAlの200反射の例で, $n=3, 4, 5, \cdots$ を用いることができる.)

以上のように二つ以上のレンズを巧みに組みあわせること により単にビームを絞れるだけでなく、そのことを利用して 後焦点面上の回折ディスクには高次ラウエゾーンといった逆 格子の幾何学的情報や動力学的効果が現れ、我々に材料に関 する様々な情報を与えてくれる.



図6 HOLZ ラインパターンの例 (Sill1 入射の場合).



図7 回折ディスクに現れるフリンジの例.電子の入射角に依存する動力学的効果が回折ディスク内の濃淡となって現れ、試料の厚さや消衰距離を知ることができる.

4. 位相コントラストと球面収差

4.1 位相コントラスト伝達関数

電子顕微鏡のレンズが本質的に有する球面収差の効果とは 一口で言えば物体面から発散角 α でレンズに向い光軸からよ り離れてレンズを通る電子はより強く曲げられということで ある. つまり、ガウス光学系が与える焦点距離 f に対し、 近似の精度を高めるとそのような電子に対する焦点距離fは $f=f_0-C_{\alpha}\alpha^2$ で与えられることは前回述べた. ここで C_{α} は球面 収差係数である、要するに物体面の同一の点から発散された 電子であってもレンズのどこを通るかによって焦点距離が異 なるわけであるが、結像という観点からこの焦点距離のバラ つき補償するために一般に用いられる方法がディフォーカス Afを大きくとることにより意図的に焦点距離を長くするこ とである. 一般に光軸から離れる波ほど散乱ベクトル q が大 きく、より高周波の情報を有しているわけであるが、光路長 に対し球面収差はqの4乗で変化を与える一方、ディフォー カスはqの2乗で変化を及ぼすため完全に相殺することはで きず、伝わる情報は a に応じて変化することになる、これが 位相コントラスト伝達関数(CTF)であることは前回説明し た.

$$\sin(2\pi\chi(q)) = \sin\left\{\pi\left(\Delta f\lambda q^2 - \frac{1}{2}C_s\lambda^3 q^4\right)\right\}$$
(7)

それでは球面収差が補正できるようになり, C_s が小さく なると情報はどのように伝わるのであろうか.この場合,(7) からもわかるように C_s に起因する位相変化は C_s そのものが 小さくなることにより,CTFは全体としてqに対してゆっ くりと変化することが予想される.計算してみると,実際 CTFの変動は押さえられ位相の反転が起こらない領域が包 絡関数で与えられる領域まで拡がることがわかる.すなわち 球面収差補正後は色収差や電子顕微鏡の安定性,さらには外 部からの振動といった機械的な要因が TEM の分解能を直接 左右するようになる.ここで先に進む前に前回簡単にしか述 べなかった包絡関数について触れる.

4.2 包絡関数

多くの電顕では熱電子型電子銃が搭載されており、フィラ

メントは高温に加熱されている. さらに加速部も完ぺきでは ないので試料に照射される電子のエネルギーには1~2 eV の広がりがある. 室温で電子を放出する冷陰極型電界放射型 電子銃でこの量は 0.3 eV 程度まで下がるが、拡がりがある ことには変わりがない. 電子の軌道をローレンツ力で変化さ せるという磁界レンズの動作原理からすれば、個々の電子の エネルギーが異なるということは、たとえレンズが完璧で あっても焦点距離がある程度の広がりを持つということを意 味する. さらに、対物レンズのコイル電流もある程度のバラ つきを持ち、レンズそのものの焦点距離の拡がりをもたらす. 結局,磁界レンズの焦点距離fは電子のエネルギーのばらつ き AE/E およびコイル電流のばらつき AJ/J に起因するある程 度の拡がりδφが存在する. このδf/fは焦点距離が電子のエ ネルギーに対しては線形に、コイル電流(ポールピースの磁 東密度)に対しては2乗に変化することにより、次のように 書ける.

$$\frac{\delta f}{f} \propto \frac{\Delta E}{E} - 2\frac{\Delta J}{J} \tag{8}$$

通常はこれら 4E や 4J の変化は系統的なものではなくゼ ロを中心にある幅でランダムに変化すると考え,我々が指定 するディフォーカス量を $4f_0$ としたとき,現実のディフォー カス量 4f はその値を中心にガウス関数 W(4f) に従って分布 すると考える.

$$W(\Delta f) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(\frac{-(\Delta f - \Delta f_0)^2}{2\sigma^2}\right)$$
(9)

ここで標準偏差 σ は、上に述べた考察から次のように ΔE と ΔJ に依存する.

$$\sigma = C_c \left[\left(\frac{\Delta E}{E} \right)^2 + \left(2 \frac{\Delta J}{J} \right)^2 \right]^{1/2} \tag{10}$$

ここに現れた C_e は色収差係数(chromatic aberration constant)と呼ばれる量である. コントラスト伝達関数は Δf_0 の 関数(前回の(15)式では Δf に相当)であるから, スクリー ン上のコントラストは $W(\Delta f)$ として表される Δf そのものの 分布に大きく左右される. 具体的にはガウス関数的に分布し ている "個々の" Δf_0 の値ごとにコントラスト伝達関数を評 価し, それを積分したものがレンズ系を全体がスクリーン上 に与えるコントラストということになる. 今, このスクリー ン上のコントラストを*I(r)*とおけば, (ガウス関数のフーリ エ変換はガウス関数であることから), 我々が観察するコン トラストは次のように書かれる.

 $I(\vec{r}) = \sin(2\pi\chi(q,\Delta f_0))\exp(-\pi^2\lambda^2 q^4 \sigma^4)$ (11)

すなわち形式的には我々が指定したディフォーカス量 Δf₀ で決まるコントラスト伝達関数に,さらに右辺に現れた指数 関数がかけられるという結論を得る.その結果,コントラス ト伝達関数の高い周波数領域の情報は急激にダンピングされ



図8 包絡関数との積として与えられる実効的なコントラスト 伝達関数の例. (a) 一般的な電子顕微鏡の場合. コントラスト 伝達関数が包絡関数に包みこまれ, シェルツァーディフォー カスにより分解能を定義することができる(矢印の位置). (b) 球面収差補正された場合. CTF がゼロとなる点が包絡関数が 与える情報限界より遠い位置に現れることに注意. また CTF が反転しても分解能は情報限界で決るので大きく変化しない. (c) ディフォーカス量を大きくとることにより分解能は下がる が CTF の値を大きくでき, コントラストが得られる.

てしまう.(具体的な例は前回の図 11 に示した.)このよう に実際に伝わる情報は位相コントラスト伝達関数と上記のガ ウス関数の積であるので、後者は包絡関数(Envelope function)と呼ばれる.以上をまとめると電子の波長およびレン ズ電流のバラつきはレンズ系の焦点距離に有限の広がりをも たらし、分解能を得るために必要な高周波領域でその効果は 顕著となり、レンズ系全体としてのみかけ上の干渉性を大き く制限することになる.そしてこの包絡関数がゼロとなる点 を越えた領域では実際はコントラストは得られないのでこれ を情報限界(information limit)と呼ぶ.

4.3 球面収差補正がコントラストに及ぼす効果

前回は位相コントラスト伝達関数においてフラットな領域 をできるだけ広く確保するためにシェルツァーディフォーカ スと呼ばれる Δf_0 の値をとることで電子顕微鏡の分解能を高 めると述べた. この状況を Cc=1 mm, $\Delta E/E = \Delta J/J = 10^{-6}$ の場 合の包絡関数とともに示したのが図8(a) である(図中の 矢印がシェルツァー分解能に相当).

一方、収差補正器を装着することにより球面収差が非常に 小さくなると位相コントラスト伝達関数自体がフラットなも のとなる. 具体例として図8(b)に Cs=1 μ m, Δf =1 nmの 場合を2種類の包絡関数に対して示した. 包絡関数としては 上述の $\Delta E/E = \Delta J/J = 10^{-6}$ の場合を ENV-1, 色収差係数は変わ らないが電子源やレンズ電源が安定し、 $\Delta E/E = 0.25 \times 10^{-6}$, $\Delta J/$



図9 球面収差補正後の位相コントラストの例 (TiO₂). $C_{S \approx 1 \mu m.}$ (a) $\Delta f = 1 nm$ ($\tau \sim \vec{x} - \tau + \pi , \pi$), (b) $\Delta f \approx 0 nm$, $\exists \nu \vdash \neg \neg \neg \neg \neg \neg$), (c) $\Delta f = -1 nm$ ($\tau - \vec{\tau} - \tau + \pi, \pi$).

J=0.5×10⁻⁶となった場合を ENV-2 として図示している. こ のように球面収差が問題とならないほど小さくなるとコント ラストがフラットな領域は CTF ではなく包絡関数によって 決ってしまう. すなわち情報限界そのものにより電子顕微鏡 の分解能が左右される状況が出現する. またこの図中に $\Delta f=0$ の場合を細線で示したのが,この場合,コントラスト が逆転しているが分解能としては $\Delta f=1$ nm と同等のレベル である. (実際には収差補正器を用いて負の球面収差補正係 数を得ることも可能である. さらに収差そのものは近軸理論 (ガウス光学系) という0次の近似を上げることにより本来 的に生じるものであり,厳密な理論を構築するためには高次 の補正項を考えることが必要である.)

このように球面収差補正により分解能が情報限界に達し、 すべてがよいように見えるが現実には必ずしもそうではな い. たとえば仮に *Cs* と *Af* がゼロとなってしまうと CTF の 値そのものがゼロとなってしまい情報が伝わらないことにな ることが予想されるが、このような状況は現実に観察されて いる. たとえば図9に *Cs*=1 μ m の場合(現実にはこのよう な小さな *Cs* を判定するときの誤差そのものが大きい)にディ フォーカスを *Af*=0 nm 前後で変かさせたときに得た位相コ ントラスト像を示す. このように *Af*=0 の近傍はコントラス トが消滅することがわかる.

CTF はコントラストを伝達するからこそ意味があるもの であり、いたずらに分解能を情報限界近くまで上げてもコン トラストそのものが消滅しては意味がない. したがって対物 系の球面収差係数を制御できるようになったあとは逆空間に おけるどの範囲の情報を用いて像を形成するかということも 応用上,一つのポイントとなる.たとえば図8(c)には分 解能を多少犠牲にしても 0.8 nm⁻¹付近の情報がコントラスト として現れるようにディフォーカス量を *df*=3 nm と設定し た場合の CTF ならびに包絡関数との積(太線)を示す.こ のように対物レンズ系の球面収差係数の値を自由に選べるよ うになると分解能だけではなくコントラストそのものがディ フォーカス量の選択基準となってくる.また我々がスクリー ン上に得るものは結局のところ高度に制御されたレンズ系を 通して出てきた電子の干渉パターンであり,最終的には電子 に対する試料内のポテンシャルそのものを位相の変化として 得ることが必要である.そのためにはスルーフォーカス条件 で得た一連の位相コントラストに基づき,試料直下の波面を 再構築することが必要であり,今後,位相コントラスト方が 進むべき一つの道であると考える.

文 献

- 進藤大輔,平賀狠二:材料評価のための高分解能電子顕微鏡法,共立出版 (1996)
- 2) 坂 公恭:結晶電子顕微鏡学,内田老鶴圃(1997)
- 3) 田中通義, 寺内正巳, 津田健治:やさしい電子回折と初等結晶 学, 共立出版 (1997)
- 進藤大輔,及川哲夫:材料評価のための分析電子顕微鏡法,共 立出版(1999)
- 5) 今野豊彦:物質からの回折と結像,共立出版(2003)
- 6) 宝野和博, 弘津禎彦(編著):金属ナノ組織解析法, アグネ技術センター (2006)