

格子像を用いた情報伝達限界の検証

原田 研^{a*, b}, 外村 彰^{a, b},
明石 哲也^{a, c}, 松田 強^{b, d}

^a 日立基礎研究所, ^b 理化学研究所,

^c 日立ハイテクフィールドイング, ^d 日立ハイテクノロジー

キーワード: 情報伝達限界, 格子像, 伝達関数, 空間周波数,
1MV 電界放出形電子顕微鏡

1. はじめに

電子顕微鏡における結像性能の評価には、一般的にディフラクトグラムによる方法が用いられてきた。これはアモルファス薄膜の像を撮影し、フーリエ変換を施すことにより、記録されている画像データの空間周波数分布から対物レンズ等結像光学系の諸特性パラメータ（球面収差係数 C_s , フォーカスはずれ量 Δf , 点分解能 q_0 , 解像限界（情報伝達限界） q_1 等）を求める方法である¹⁾。この評価方法は Scherzer によって与えられた電子光学系における情報伝達理論（結像理論）²⁾ に基づいており、透過波と散乱波の線形結像の観察に基礎を置いている。このディフラクトグラムによる評価方法は、実験的にはカーボンなどのアモルファス薄膜による電子線の散乱が全ての空間周波数に渡って均一かつ十分な強度を持っていることを仮定しており、数 nm^{-1} までの空間周波数域では問題なく用いられてきた。

しかし、超高電圧電子顕微鏡や多極子収差補正装置を導入した 200kV, 300kV の電子顕微鏡により、 10nm^{-1} を越える高空間周波数域までの情報伝達が報告されるようになってくると³⁾、ディフラクトグラムによる評価方法には限界が見られ始めた。すなわち、カーボン蒸着薄膜では高空間周波数域での電子線散乱強度が不足しているのである。そのため、シリコン酸化膜、ゲルマニウム膜³⁾、タングステン膜⁴⁾ などが試みられるようになった。しかし、どのような物質であっても高空間周波数域では急速にその強度が減衰するため、ディフラクトグラムによる 10nm^{-1} を越える空間

周波数域での結像性能の測定・評価には困難さと不明瞭さがつきまわっている。

本稿は従来から用いられてきたアモルファス薄膜に代わって結晶性試料を用い、その Bragg 反射による回折波と透過波の線形結像による干涉縞を実空間で格子像として観察することによって結像系の情報伝達の評価を行う方法を提案するものである⁵⁾。1MV 電界放出形電子顕微鏡⁶⁾ を用いて行った実験結果と共に紹介する。

2. 情報伝達の限界

電子顕微鏡の結像特性を大きく左右するものは球面収差、およびフォーカスはずれによる収差であり、よく知られているように波面収差関数 $\chi(q)$ として式 (1) で表される²⁾。

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

ここで q は空間周波数、 λ は電子線の波長であり、1MV の加速電圧の場合 $\lambda = 0.872\text{pm}$ である。 C_s は球面収差係数、 Δf はフォーカスはずれ量である。結像系の伝達関数 $T(q)$ は、この波面収差関数に 2 種類の減衰関数 $E_s(q)$ 項と $E_c(q)$ 項を乗じたものとして表される。

$$T(q) = E_s(q) \cdot E_c(q) \cdot \exp[-i\chi(q)] \quad (2)$$

この減衰関数は、球面収差と照射電子線の開き角 β に依存した項 $E_s(q)$ と色収差と加速電圧やレンズ電流など装置全体の安定度に依存した項 $E_c(q)$ であり、それぞれを書き下すと、

$$E_s(q) = \exp \left[-\frac{1}{4 \ln 2} \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \beta^2 (C_s \lambda^3 q^3 - \Delta f \lambda q)^2 \right], \quad (3)$$

$$E_c(q) = \exp \left[-\frac{1}{64 \ln 2} \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \Delta^2 \lambda^4 q^4 \right], \quad (4)$$

$$\Delta = C_s f_r \sqrt{\left(\frac{\Delta V}{V_0} \right)^2 + 4 \left(\frac{\Delta I}{I_0} \right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E_0} \right)^2}, \quad (5)$$

である。式 (5) で表される Δ は、装置全体の安定度を示す偏差であり、その中の f_r は電子の静止エネルギーを E_0 ($=511\text{keV}$) としたときの相対論補正項 $f_r = (1 + eV_0/E_0) / (1 + eV_0/(2E_0))$ である⁷⁾。また、 V_0 は加速電圧、 ΔV は加速電圧のゆらぎ、 E_0 は加速された電子のエネルギー、 ΔE は電子の初期エネルギー分布幅である。

一般的に結晶格子像は位相コントラストとして得られるので、式 (2) の Sin 成分を分離し、位相コントラスト伝達関数 (Phase Contrast Transfer Function: PCTF) $PCTF(q)$ として表示する。

$$PCTF(q) = E_s(q) \cdot E_c(q) \cdot \sin[-i\chi(q)] \quad (6)$$

この式 (6) を用いて結像系の情報伝達限界について説明する。図 1 は式 (6) を 1MV 電界放出形電子顕微鏡のパラメータを基に描画したものである。赤線が式 (6) による位相コントラスト伝達関数 $PCTF(q)$ 、青線が式 (3) による減

Ken Harada, Akira Tonomura, Tetsuya Akashi and Tsuyoshi Matsuda:
Confirmation of information transfer using lattice image

* 〒 350-0395 埼玉県鳩山町赤沼 2520

TEL: 049-296-6111; FAX: 049-296-7228

* E-mail: ken.harada.fz@hitachi.com

^b 〒 350-0395 埼玉県鳩山町赤沼 2520 日立基礎研究所内

^c 〒 160-0004 東京都新宿区四谷 4-28-8

^d 〒 312-0057 茨城県ひたちなか市市毛 882

2007 年 10 月 26 日受付

衰項 $E_s(q)$, 緑線が式 (4) による減衰項 $E_c(q)$ であり, 赤の破線は式 (3) と式 (4) の乗算 $E_s E_c$ による $PCTF(q)$ の包絡関数で, 結像系を経る情報の伝達率を表している。

図 1 (a) は, Scherzer のフォーカス条件 ($PCTF(q)$ が最も高い空間周波数で横軸と交差するフォーカス条件) での計算結果であり, 点分解能 q_p の定義となっている。一方, 情報が伝達される最も高い空間周波数 q_1 は $PCTF(q)$ の包絡関数 $E_s E_c$ が $1/e$ に減衰する点での空間周波数 (情報伝達限界) と定義される。 q_p, q_1 もに図中に矢印で示しているが, 図から明らかな様に q_p ($=8.1\text{nm}^{-1}$) と比較して q_1 ($=18.1\text{nm}^{-1}$) は十分に高い空間周波数に位置している。この q_p と q_1 の差は, 電界放出形電子顕微鏡により開き角 β の小さな電子線がもたらされたことに起因する。それを示すために, 図 1 (a) での諸パラメータのうち開き角 β だけを 2 桁大きな値 10^{-3}rad として計算した結果を図 1 (b) に示す。これは熱電子源での照射条件に対応している (ただしエネルギー広がりについては含めていない)。図 1 (b) では包絡関数は減衰項 $E_s(q)$ によって急速に減衰し q_p とほぼ一致している。すなわち, 電界放出形電子顕微鏡においては, q_p を越えて q_1 まで情報が伝達され, 原理的に結像に寄与させることが可能である。

実例を図 2 に示す。図 2 (a) は晶帯軸入射の通常の観察法による Au [111] 薄膜の高分解能像 ($\{220\}$ 格子像) であり, $d_{220}=0.144\text{nm}$ 間隔の各々の原子カラムが観察されている。この像の主たる空間周波数成分は $q_{220}=6.9\text{nm}^{-1}$ である。一方, 図 2 (b) は $d_{422}=0.083\text{nm}$ 間隔の格子像 ($\{422\}$ 格子像) であり, 原子カラムの隙間に対応して白いコントラストが得られている。この像の主たる空間周波数成分は $q_{422}=12.0\text{nm}^{-1}$ であり q_p を上回っている。図 1 (c) には図 2

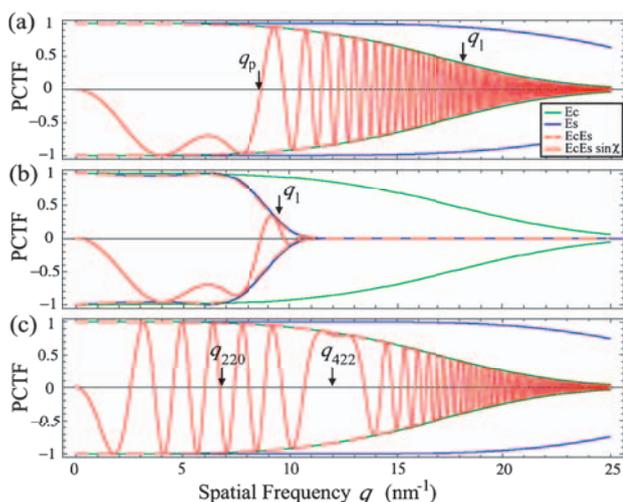


図 1 1MV 電界放出形電子顕微鏡の位相コントラスト伝達関数 (a) Scherzer フォーカス条件 ($\Delta f=46\text{nm}$), (b) 熱電子源を想定した場合の Scherzer フォーカス条件, (c) $q_{422}=12.0\text{nm}^{-1}$ の伝播が最も優先となるフォーカス条件 ($\Delta f=179\text{nm}$): 但し, $C_s=1.6\text{mm}$, $C_c=2.9\text{mm}$

(b) の $\{422\}$ 格子像を観察したフォーカスはずれ量 $\Delta f=179\text{nm}$ での位相コントラスト伝達関数 $PCTF(q)$ を示す。ちょうど $\{422\}$ 格子像に対応した $q_{422}=12.0\text{nm}^{-1}$ の空間分解能の部分にパスバンド ($PCTF(q)$ が幅広となった部分) が位置しており, この空間周波数の情報を伝達するのに適していることがわかる。

以上の観察例より明らかなように, 電界放出形電子顕微鏡では情報伝達される空間周波数の上限は, 加速電圧やレンズ電流など装置全体の安定度に依存した減衰項 E_c が主に定めている。すなわち, $PCTF(q)$ の振動として現われる球面収差が補正できれば, 電子顕微鏡の分解能は q_1 まで拡張されると考えてよい。そして, その補正手段はほぼ確立されたのである^{8,9)}。今後は, 電子顕微鏡の観察分解能を制約するのは球面収差ではなく, 式 (5) で表される装置全体の安定度になると考えられる。これはオペレーション条件ではないため, 装置設計・製作の初段階から考慮の上での開発が重要になってくる。同時に 10nm^{-1} を越えて q_1 近傍の高空間周波数域での性能評価の手段が必要となる。

3. 情報伝達の確認方法

従来どおりの結像を行った図 2 の高分解能像には, 回折波どうしの干渉 (非線形項) の影響が含まれているので, 情報伝達を検定するためには一工夫が必要である。すなわち,

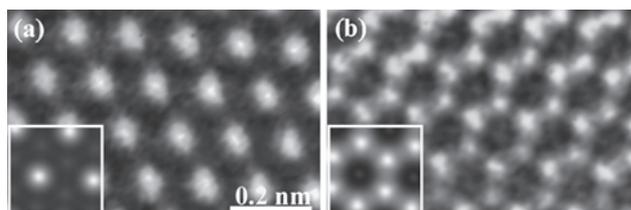


図 2 Au [111] 薄膜の高分解能格子像 (軸対称入射条件) (a) $\{220\}$ 格子像 ($d_{220}=0.144\text{nm}$) 単原子カラム間隔に対応, (b) $\{422\}$ 格子像 ($d_{422}=0.083\text{nm}$) 各原子カラムの隙間に対応。各挿入図はマルチスライス法によるシミュレーション像である。

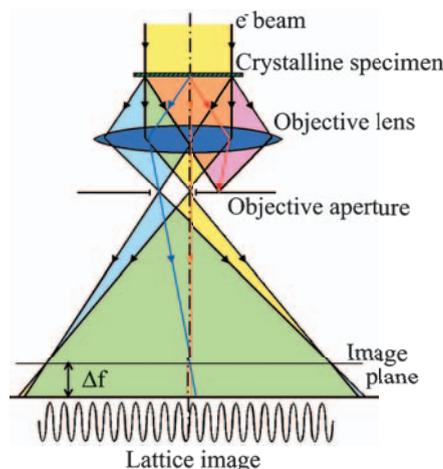


図 3 情報伝達確認のための光学系

000 透過波と伝達を確認したい空間周波数（検定空間周波数： $q_{hkl} = \sqrt{(h^2 + k^2 + l^2)}/a$ ； a は格子定数）に対応した hkl 回折波のみが選択的に観察される様な、対物絞りのサイズ・形状、そして光学系における配置が必要である。図 3 に光学系を示す。入射電子線は光軸に平行とし、検定空間周波数 q_{hkl} を担う hkl 回折波が観察される様に方位を合わせた後に、しかるべくサイズと形状を調整した対物絞りにより 000 透過波と hkl 回折波のみを選択する。000 透過波は光軸上に位置するため対物絞りは光軸に対して非対称な配置となる。結果として色取差がまさに影響する条件にて格子像（干渉縞）を観察することになる。なお、図 3 には示さないが、検定対象外の低次回折波による格子像は観察が容易であり、実験時に顕微鏡への外乱等の有無、観察された格子像の倍率・空間周波数の確認などに有効であるため、低次回折波の 1 波、もしくは 2 波を対物絞り内に取り込み同時に結像させる。用いた対物絞りのサイズ、光学系における配置、取り込んだ回折波の数は、電子回折像と格子像から二重チェックできる。これについては後述する。

試料は蒸着法により作製した [111] または [100] の金薄膜を用いた。本方法では大きな強度を持つ透過波との干渉を観察するため、回折波の強度は大きいほど望ましい。そこで、薄膜の厚さは通常の高分解能観察時よりも厚く 15 nm と

した。また、少しでもコントラストの高い干渉縞を得るため、透過波と回折波の空間的距離を最小とすべく、観察時のフォーカスはずれ量を式 (7) より求め、その値の近傍でスルーフォーカス撮影を行った。

$$\Delta f_{hkl} = C_s \lambda^2 q_{hkl}^2 \quad (7)$$

結晶試料を用いる本方法では、連続的に検定空間周波数を変更することはできない。しかし、結晶を薄膜化する際にその方位を選択することや、格子定数 a 、結晶構造の異なる物質を選択することで、十分な種類の検定空間周波数を確保できると考えている。

4. 結果および考察

図 4 に実験結果を示す。それぞれ、図 4 (a) : [111] 膜に対して {422} 格子 ($d_{422} = 0.083 \text{ nm}$ ($q_{422} = 12.0 \text{ nm}^{-1}$)), 図 4 (b) : [111] 膜の {440} 格子 ($d_{440} = 0.072 \text{ nm}$ ($q_{440} = 13.9 \text{ nm}^{-1}$)), 図 4 (c) : [100] 膜の {620} 格子 ($d_{620} = 0.064 \text{ nm}$ ($q_{620} = 15.6 \text{ nm}^{-1}$)) の干渉縞確認の観察を行った結果である。いずれも、上段が電子回折像、中段が検定格子像（干渉縞）、下段は格子像の中段表示範囲より広範囲をフーリエ変換して得られたディフラクトグラムである。中段の検定格子像が縦縞となるように、上中下段の各像は方位を揃えて配置している。また、表

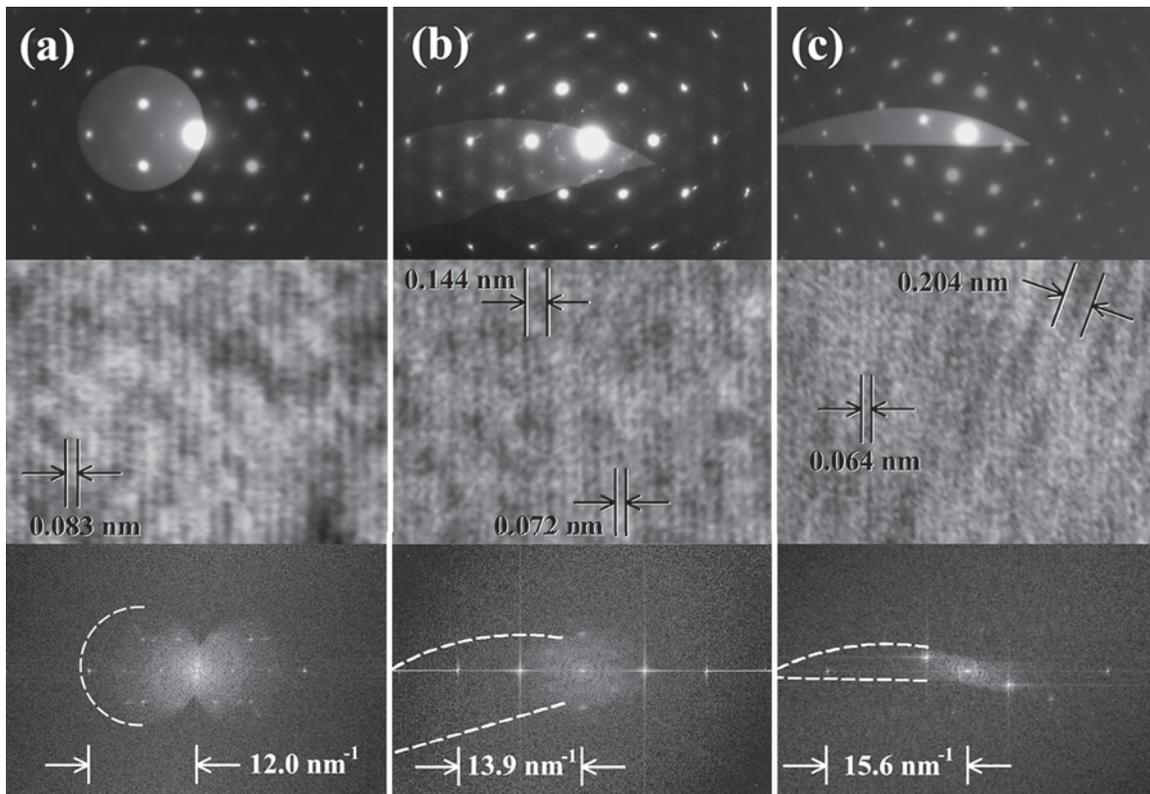


図 4 線形結像による干渉縞（格子像）の確認⁵⁾ (a) [111] 膜に対する {422} 格子 ($d_{422} = 0.083 \text{ nm}$ ($q_{422} = 12.0 \text{ nm}^{-1}$)), (b) [111] 膜に対する {440} 格子 ($d_{440} = 0.072 \text{ nm}$ ($q_{440} = 13.9 \text{ nm}^{-1}$)), (c) [100] 膜に対する {620} 格子 ($d_{620} = 0.064 \text{ nm}$ ($q_{620} = 15.6 \text{ nm}^{-1}$)). 各図とも、上段：電子回折像、中段：干渉縞（格子像）、下段：干渉縞（中段表示範囲より広範囲）をフーリエ変換して得られたディフラクトグラムである。

示倍率、逆空間倍率（カメラ長）についても揃えている。図4 (b) (c) は、円形絞り孔の一部をCu箔で覆い、三日月型の絞り孔としている。

電子回折像（図4 上段）は二重露光により対物絞りが光軸非対称に挿入されると共に、狙った検定回折波が対物絞り内に取り込まれていることを示している。格子像（同図中段）では縦縞の検定格子像とともに低次回折波による格子像が重畳されている。両格子像の縞間隔、方位より得られた検定格子像の空間周波数が確認できる。ディフラクトグラム（同図下段）では、対物絞りの像が二重像（左右方向）として軸対称に再現されている（目視を助けるために白破線で孔の形状を示している）。対物絞りの二重像の左側は、上段の電子回折像と対応しており、観察された格子像（実像）と電子回折像が対応するものであることが確認できる。

また、ディフラクトグラムの中心部の絞り孔が重なった部分に少し歪んだリング状のパターンが観察されるが、これはアモルファス膜でのディフラクトグラムの特徴を示している。結晶薄膜の表面にアモルファス層が存在し、そこからの散乱も像中に含まれていることを示唆している。このディフラクトグラムの形状より、非対称に対物絞りを挿入したことなどによる非点収差の影響を評価することも可能である。

以上の実験に於いて観察された最も高い検定空間周波数は、図4 (c) の 15.6nm^{-1} であった。すなわち、1MV電界放出形電子顕微鏡の結像系は、少なくとも 15.6nm^{-1} の空間周波数を持つ回折波（伝達情報）を、透過波との干渉（格子像）が記録されるほどに十分な強度を保って伝達していることが確認された。

対象とする検定空間周波数が高くなればなるほど、排除しなければならない低次の回折波の数が増える。今回は、簡便に円形絞り孔の大半を覆った三日月形の孔を用いたが、理想的には、透過波、検定回折波、参照回折波の3波だけを取り込む3孔絞りが良いと思われる。しかし、孔径のみならず、各孔の間隔、方位が、各検定周波数やそのときの試料（物質、方位）によって可変でなければならず、実現には大変な手間が必要であろう。

5. おわりに

ここ10年程の電子顕微鏡、とりわけ収差補正に関する技術環境の進歩には目覚ましいものがある。電子線ホログラフィー¹⁰⁾だけでなく、フォーカス変調型収差補正法^{11,12)}や多極収差補正装置^{8,9)}のいずれもが実用レベルに到達した。この収差補正型電子顕微鏡法においては、本文で述べたごとく点分解能の定義が見直され、 q_1 まで拡張された分解能での観察が主となってくると考えられる。しかし、これら収差補正法は、対象とする空間周波数の情報が伝達され、観察像に取り込まれて初めて意義の生じる技術であり、本質的に重要なことは、その空間周波数の情報が十分な強度を持って伝達されているか否かである。

本稿で紹介した方法は、実空間における格子像（干渉縞）を観察することにより、対象とする空間周波数が伝達されていることを確認する方法である。コヒーレント光学系において『可干渉な2波は干渉縞を形成する』というシンプルな条件に立脚しており、電界放出形電子線の高い可干渉性を利用し、収差などの影響を受ける干渉縞の位相を問題とせず、縞の有無だけを元に行う本検証法は合理的だと思われる。但し、この検証条件はディフラクトグラムと同様に必要十分ではなく、さまざまな実験条件（装置振動や浮遊磁場など）により、情報が伝達されていても像として観察されない場合も考えられる。本稿で述べたフォーカスはずれ量への配慮はその1つの対策である。このような他の制限要因を排除しつつ、CCDカメラの導入など記録系のリニアリティの向上により観察される干渉縞の強度、および回折波の強度を盛り込んだ定量性を持った伝達率の測定法に高めることができれば、さらに有効な情報伝達を知る実験的検証方法になると考えている。

謝 辞

本研究は、以下に列挙する方々の協力を得て行なわれたものである。付して謝辞に代えたい。戸川欣彦（理化学研究所）、葛西裕人、菅原昭、吉田高穂、守谷騰（日立基礎研究所）、上村理、川崎猛（日立中央研究所）、竹内恒一郎、古津忠夫、松井功、谷口佳史（日立ハイテクノロジーズ）。

文 献

- 1) 例えば、堀内繁雄著：『高分解能電子顕微鏡』、共立出版、1988、p.203
- 2) Scherzer, O.: *J. Appl. Phys.*, **20**, 20 (1949)
- 3) Ichinose, H., Sawada, H., Takuma, E. and Osaki, M.: *J. Electron Microsc.*, **48**, 887 (1999)
- 4) Takai, Y., Kimura, Y., Ikuta, T., Shimizu, R., Sato, Y., Isakozawa, S. and Ichihashi, M.: *J. Electron Microsc.*, **48**, 879 (1999)
- 5) Akashi, T., Sugawara, A., Kasai, H., Yoshida, T., Matsuda, T., Togawa, Y., Harada, K. and Tonomura, A.: *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 174101 (2005)
- 6) Kawasaki, T., Yoshida, T., Matsuda, T., Osakabe, N., Tonomura, A., Matsui, I. and Kitazawa, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 1342 (2000)
- 7) Reimer, L.: 『Transmission Electron Microscopy, 4th ed.』 (Springer, Heidelberg, 1997) p. 231
- 8) Haider, M., Uhlemann, S., Schwan, E., Rose, H., Kabius, B. and Urban, K.: *Nature*, **392**, 768 (1998)
- 9) Nellist, P.D., Chisholm, M.F., Dellby, N., Krivanek, O.L., Murfitt, M.F., Szilagyi, Z.S., Lupini, A.R., Borisevich, A., Sides Jr., W.H. and Pennycook, S.J.: *Science*, **305**, 1741 (2004)
- 10) Orchowski, A., Rau, W.D. and Lichte, H.: *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 399 (1995)
- 11) Jia, C.L. and Thust, A.: *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 5052 (1999)
- 12) Takai, Y., Kawasaki, Y., Kimura, Y., Ikuta, T. and Shimizu, R.: *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 106105 (2001)