

強度輸送方程式を用いた位相マッピング

Phase Mapping Obtained by Transport of Intensity Equation

大 島 義 文, 張 曉 賓

Yoshifumi Oshima and Xiaobin Zhang

北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科

要 旨 近年, 収差補正装置の開発により透過型電子顕微鏡の空間分解能が飛躍的に向上し, 軽元素検出を実現するまでに大きな成果を得ている. 今後もさらなる空間分解能の向上が期待されるが, 透過型電子顕微鏡には位相情報を得るという大きな課題もある. これまで, ホログラフィーが最も有力な手段として大きな成果を得てきたが, 近年, それ以外の様々な方法も提案され, 活発な議論が行われている. 本稿では, 強度輸送方程式による位相情報の抽出について紹介し, 最近の研究成果を述べることでその特徴を明らかにする. この方程式は, たった3枚の透過型電子顕微鏡像から位相像を得ることができる点に優位性があり, より簡便な位相情報の抽出方法として期待できる.

キーワード: 強度輸送方程式, 位相マッピング, 静電ポテンシャル, 収差補正

1. 緒 言

近年, 収差補正装置の開発により透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscopy: TEM) の空間分解能が飛躍的に向上し, 様々な材料の局所構造と物性の関係が解明されるなど大きな成果を得ている^{1,2)}. さらに, リチウムや水素などの軽元素も原子スケールで検出できるようになったという大きな進展もあった^{3,4)}. 顕微鏡法にとって空間分解能の向上は本質的な課題であることを改めて感じるとともに, 今後のさらなる取り組みが期待されている^{5,6)}. 一方, TEMには入射電子波の位相情報を得るという大きな課題もある. 位相は, 運動学的近似が成り立つ条件 (つまり, 試料が十分に薄い場合) では投影ポテンシャルによる変化に対応しており, 結晶構造を決定する上で欠かせない情報である. また, 位相は, 試料やその周辺に電場や磁場などの場が存在すれば変化するため, 電場や磁場の分布に欠かせない情報である. この場合, 試料の厚さにかかわらず, 電子線の入射方向に沿って積分した電場や磁場に関わる情報が得られる.

位相情報を得る手段として, 電子線ホログラフィーがよく知られており, 中でも, オフライン・ホログラフィーがよく使われている⁷⁾. この場合, バイプリズムを用いて真空を透過した参照波と物体を透過した物体波を干渉することで位相分布を求めている. これまでにホログラムの検出方法や参照波の取り方などが改善され, 高い分解能で位相情報を得られ

るようになってきた⁸⁾. しかしながら, TEM 鏡体にバイプリズムを設置しなければならないという制約がある. ホログラフィー以外の位相再生法として, フォーカルシリーズ再構成法⁹⁾, 回折イメージング¹⁰⁾, 微分位相コントラスト (DPC) イメージング^{11,12)} などが提案されている.

強度輸送方程式 (Transport of Intensity Equation: TIE) は, 通常の TEM にも適用でき, たった3枚の TEM 像しか要らないという簡便性から, たびたび使われている手法である^{13~16)}. これまでに, 半導体デバイスの pn 接合の測定, MgO ナノキューブ¹⁷⁾ や金属ナノ粒子^{18~20)} の平均内部電位の計測, ヘリカルスピン秩序²¹⁾ または二次元スキルミオン結晶^{22,23)} における磁気分布の計測などで顕著な成果を上げている. 一方, 我々は, この手法をリチウムイオン電池の正極と電解質界面における静電ポテンシャル変化を調べることを検討するため, その基礎となるデータを調べてきた. 本稿では, TIE 法によって再生された位相像の空間分解能, 原子分解能位相像, TIE 法による界面の位相像再生について紹介する.

2. 強度輸送方程式を用いた位相再生

TIE は, シュレディンガー方程式からでも電磁波の波動方程式からでも導出できる. つまり, この方程式は, 光に対しても, 電子に対しても適用できる. この式の導出は, 石塚らの論文を参考にして頂き, ここでは式のみを紹介する^{19,24)}. ただし, この導出において, 小角散乱であること, そして, 単一な波長であることを仮定している. TIE は,

$$\nabla_{\perp} [I(\mathbf{r}) \nabla_{\perp} \phi(\mathbf{r})] = -k \frac{\partial I(\mathbf{r})}{\partial z} \quad (1)$$

〒923-1292 石川県能美市旭台 1-1
TEL: 0761-51-1500; FAX: 0761-51-1505
E-mail: oshima@jaist.ac.jp
2016年12月19日受付, 2017年3月21日受理

で表わされる。ここで、 $I(r)$ は、TEM像の強度、 $\phi(r)$ は、求めたい位相分布、 k は、入射電子線の波数、 z は、電子線の入射方向の座標である。また、 r は、 (x,y) の2次元座標である。この式は、解析的に解くことができるため、実験からフォーカス変化による像強度の変化（入射方向の微分像）が得られれば、位相分布が求まる。ただし、得られる位相分布は、本来求めたい試料出射面の位相変化ではなく、像面における位相変化である。像面における位相は、レンズ系による球面収差など収差関数の影響を受けるため、試料出射面の位相変化とは異なる。また、精度の高い微分像（あるいは差分像）を得るには2枚の像のデフォーカス差（ 2ϵ ）を小さくする必要があるが、その差が小さすぎると微分像（差分像）がノイズに埋もれてしまうため、デフォーカス値がある程度異なる2枚の差分像を代わりに用いる。なお、2枚のTEM像として、通常インフォーカスに対し対称的なオーバーフォーカスとアンダーフォーカスのTEM像を用いる、つまり、

$$\frac{\partial I(r)}{\partial z} \sim \frac{I_{\text{over}}(r) - I_{\text{under}}(r)}{2\epsilon} \quad (2)$$

と近似する。ここで、 2ϵ は、オーバーフォーカス（デフォーカス値、 ϵ ）とアンダーフォーカス（ $-\epsilon$ ）のTEM像のデフォーカス差である。式(1)を大ざっぱに見ると、位相分布 $\phi(r)$ は、2枚の差分像をそれらの中間にあるTEM像の強度 $I(r)$ で割って2回積分することで得られることがわかる。 $I(r)$ は規格化に用いている。つまり、たった3枚のTEM像から位相像が得られることがわかる。なお、位相マップの空間分解能は、TEM像の空間分解能と2枚のTEM像のデフォーカス差（ 2ϵ 、2つのTEM像のデフォーカス値の差）によって決まる。

球面収差補正TEMで観察したTEM像を用いると、いくつかの利点がある。第一に、対物レンズで位相情報がほぼ完全に伝達するため、得られる位相分布が求めたい試料出射面の位相と等しくなる点である。第二に、インフォーカス近傍の僅かなフォーカス変化に対して大きな像強度変化を得られる点である。これは差分像のsignal-to-noise比が大きいことを意味し、TIEを解く上で重要となる。なお、この大きな像強度変化は、コントラスト伝達関数（Contrast Transfer Function: CTF）をフォーカス値で微分した式(3)から確認できる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \Delta f} \sin \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{1}{4} C_s \lambda^4 k^4 - \frac{1}{2} \Delta f \lambda^2 k^2 \right) \\ = -\pi k^2 \cos \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{1}{4} C_s \lambda^4 k^4 - \frac{1}{2} \Delta f \lambda^2 k^2 \right) \end{aligned} \quad (3)$$

ただし、 Δf は、デフォーカス値、 C_s は、球面収差、 k は、空間周波数である。収差補正により球面収差の項が無い場合、CTFの微分は、インフォーカス近傍のデフォーカスに対し、広い周波数領域において大きな強度変化をもつことを示す。

本稿では、球面収差補正TEMを用いて得られた結果について紹介する。3節では、デフォーカス値と空間分解能の関係について述べる。4節では、原子分解能位相像について述

べる。5節では、2相界面で得られた位相変化について述べ、6節で結言を述べる。

3. 金ナノ粒子を用いたTIE位相像の空間分解能計測

TIE位相像の空間分解能は、デフォーカス差（ 2ϵ ）が小さいほど高くなるのが理論的に知られている²⁴⁾が、実験ではあまり調べられていない。本節では、平均径5nmのコロイド金ナノ粒子を用いてTIE位相像の空間分解能について調べた結果を紹介する²⁵⁾。TEM観察は、冷陰極電界放射の電子銃と球面収差補正器を装備した加速電圧300kVのTEM鏡（50pm分解能電子顕微鏡（R005））で行った⁵⁾。動力学的効果は、構造（内部ポテンシャル）と位相間の線形性を乱すため、できるだけ避ける必要がある。動力学的効果を減らすには、少なくとも晶帯軸からの入射を避ける必要がある。そこで、2つ以上の異なる格子縞が見えない金ナノ粒子を選んだ。露光時間は5秒であり、試料位置での電流密度は 1×10^{-15} A/nm²とした。また、TEM像のスケールは0.19nm/ピクセルとした。結像レンズ収差は4次より低次をほぼ補正しており、色収差は1.65nmであった。TIEは、低周波ノイズの影響を避けるため、金ナノ粒子を含むできるだけ狭い領域に適用した。

図1は、デフォーカス値 ± 500 、 ± 1000 、 ± 1500 、 ± 2000 nmから得られたTEM像とそれぞれのデフォーカス差で得られたTIE位相像である。 ± 500 nmの場合に比べ、 ± 2000 nmの場合は金ナノ粒子の位相像がぼけていることがわかる。高角環状暗視野（High Angle Annular Dark Field）法を用いた観察から、金ナノ粒子がほぼ球形であると確認できたので、金ナノ粒子のフレネルフリッジが円対称に現れると仮定した。TEM像において、ナノ粒子のTEM像の輪郭に最も一致する真円の中心をナノ粒子の中心座標とした。そして、その中心から動径方向に各同心円で平均した強度を得ることで、アモルファスである下地やノイズの影響がない金ナノ粒子の平均化されたTEM像を得た（金ナノ粒子の像コントラストは、厚さによって決まると仮定している）。このようにして得た

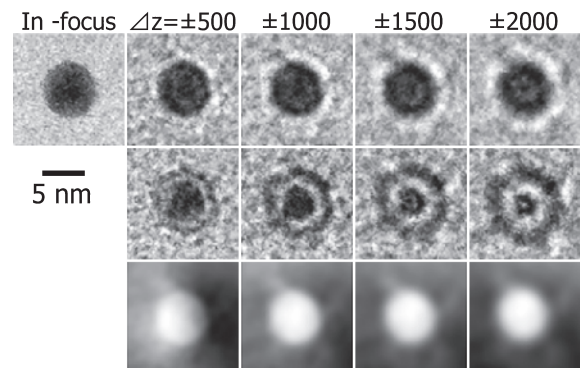


図1 金ナノ粒子のTEM像、および、位相像を示す。上段はアンダーフォーカス、中段はアンダーフォーカスのTEM像であり、下段は位相像である。左から右へデフォーカス値を500nmずつ増やした結果である²⁵⁾。

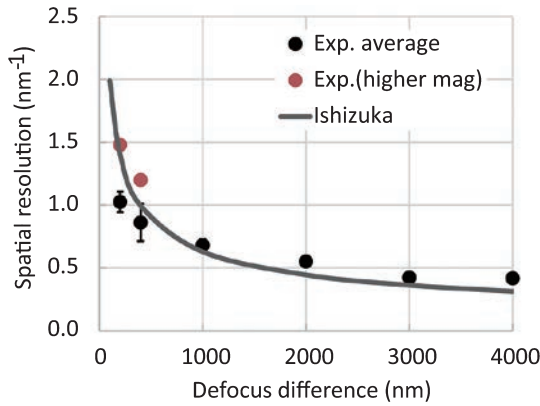


図2 TIE位相空間分解能のデフォーカス差依存性を示す。黒線は石塚らが見積もった理論的な分解能である。黒丸や赤い四角は、実験結果である²⁵⁾。

TEM像からTIE位相像を求め、さらに、それをフーリエ解析することで空間分解能を評価した。

この解析から、デフォーカス差200, 400, 1000, 2000, 3000, 4000 nmで得られたTIE位相像の空間分解能は、それぞれ0.98, 1.16, 1.47, 1.82, 2.38, 2.38 nmと見積もることができた(図2参照)。TIE位相像の空間分解能は、デフォーカス差が大きくなるにつれて悪くなっている。石塚らは理論的にTIE位相像の空間分解能を議論し、デフォーカス差200, 400, 1000, 2000, 3000, 4000 nmに対し、それぞれ0.71, 1.00, 1.59, 2.22, 2.78, 3.23 nmと予想している(加速電圧300 kVの場合)。この2つを比較すると、デフォーカス差200と400 nm以外では、デフォーカス差に対し同様の傾向を示す。デフォーカス差200と400 nmの場合、実験値の空間分解能が悪い理由は、TEM像の1ピクセルが0.19 nmであることに原因がある。つまり、ナイキスト定理により0.38 nmよりも細かい周期の情報が得られないという量子化誤差に原因があることがわかった。そこで、TEM像の1ピクセルを0.1 nmとして同様に金ナノ粒子のTIE位相像を得たところ、デフォーカス差200, 400 nmに対して、空間分解能は、それぞれ0.68, 0.83 nmとなった。

以上、平均化されたTEM像を用いてTIE位相像の空間分解能を調べた。その結果、TIE位相像の空間分解能は、ほぼ理論的に予想される値に一致した。デフォーカス差が20 nm程度であれば、TIE位相像の空間分解能は、ほぼ0.2 nm近くにまで高くなり、原子分解能の位相像が取れることを示唆している。

4. MoS₂原子シートの原子分解能TIE位相像

原子分解能のTIE位相像は、弱位相近似が成り立つ範囲では各原子カラムの投影ポテンシャルを反映する。TIE位相像が投影ポテンシャルを全ての周波数成分に対し完全に再現できるなら、各サイトのイオン化状態、すなわち、サイト間の電荷移動などの知見が得られる可能性があり、大変意義がある。ここでは、2次元材料として注目されている単層二硫化

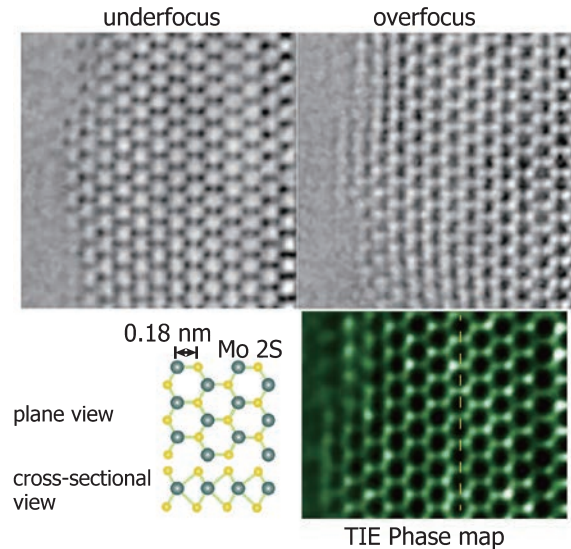


図3 上段は、それぞれフォーカス量±8 nmで得た高分解能TEM像、下段は、MoS₂シートの構造モデルとTIE位相像である²⁶⁾。

化モリブデン(MoS₂)シートの原子分解能TIE位相像について紹介する²⁶⁾。ただし、TEM像をベースとしているので、低周波成分は十分に取り込まれていない。

単層MoS₂シートの観察試料は、バルク結晶から機械的に剥離して得たフレークをエタノール溶液に入れ、超音波洗浄機を用いて拡散した後、TEMグリッド上に滴下し、乾燥して得た。得られたMoS₂シートの観察試料をTEM鏡体内にて一晚600°Cでアニールし、ハイドロカーボンなどの汚れを除去(昇華)した。また、電子線照射領域に集まるコンタミネーションを防ぐため、200°Cに加熱しながら単層MoS₂シート試料のTEM観察を行った。

MoS₂シートの高分解能TEM像として、デフォーカス値を-30 nm(アンダーフォーカス)から30 nm(オーバーフォーカス)まで、2 nmステップで変化させながら16枚を取得した。1ピクセルのサイズは、0.03 nmとした。得られたTEM像のホワイトノイズを除去するため動径フィルタと6.62 nm⁻¹から9.27 nm⁻¹範囲内で緩やかに変化するローパスフィルタを適用した。また、通常、TIEの計算を行う際、インフォーカスのTEM像は吸収コントラストによる像強度の低下を考慮し、差分像をインフォーカスのTEM像で割ることで規格化する。しかしながら、単層MoS₂シートの場合、加速電圧(300 kV)が高いこともあり、インフォーカスのTEM像はほぼ一様なため(吸収コントラストがほとんどない)、この規格化を行わなかった。さらに、得られたTIE位相像に現れる低周波数変調ノイズをTikhonovフィルタと呼ばれるハイパスフィルタ(HPF)を適用して除去し、最終的なTIE位相像を得た¹⁹⁾。これはTIE位相像では強調されてしまう低周波のノイズ成分を除去するためである。

図3は、±8 nmのデフォーカス値で得られたMoS₂シートの高分解能TEM像とそこから得られたTIE位相像である。

球面収差補正を用いているため、わずかなデフォーカス値の TEM 像において、高い空間分解能でアンダーフォーカスとオーバーフォーカスにおける異なるフレネル縞を明瞭に観察できる。なお、6 nm 未満のデフォーカス値で得た TEM 像は、フレネル縞のコントラストがノイズと比べて明瞭でないほど弱く、TIE 位相像を得るのに適していなかった。一方、10 nm 以上のデフォーカス値で得た TEM 像は、コントラストが高いものの空間分解能が低下しており（ぼやけている）、原子分解能 TIE 位相像を得るのに適していなかった。

得られた TIE 位相像で、より明るい原子カラムは、モリデン原子 (Mo) サイトに対応し、やや暗い原子カラムは、2 つの硫黄原子 (2S) サイトに対応している。つまり、原子のポテンシャルの大きさに対応した位相変化が得られている。その結果、TIE 位相像には、黄色い点線で示す境界に対し右側と左側では Mo サイトと 2S サイトの位置が反転しており、この境界が 60 度粒界であることがわかった。

この結果は、ノイズの問題はあるものの、球面収差補正 TEM を用いることで、簡便に原子分解能 TIE 位相像を得ることができることを示している。

5. アモルファス Ge 膜／真空界面の TIE 位相像

異なる相が接合した界面は、半導体デバイスなど様々なデバイスにおいて極めて重要な対象である。中でも、界面の静電ポテンシャル分布は、デバイス特性に関わる物理量であるため、様々な手法でその測定が試みられている。しかしながら、TIE 法を用いた界面の静電ポテンシャル分布計測はあまり行われていない。理由は、TIE を解くためフーリエ変換を用いるため周期的境界条件が課されることにある。(1) 式から、位相は、およそ微分像の 2 回積分に比例していることがわかる。したがって、フーリエ変換の性質を利用すれば、位相は、近似的に (4) 式のように求まる。

$$\phi(\mathbf{r}) = -\frac{2\pi}{\lambda} \frac{1}{I(\mathbf{r})} \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{1}{k^2} \mathcal{F} \left[\frac{\partial I(\mathbf{r})}{\partial z} \right] \right] \quad (4)$$

ただし、 k は、空間周波数である。ここで注目すべき点は、低周波に関わる位相情報は、 $1/k^2$ の項によって大きく強調されることである。界面を含んだ画像は、必ず値が不連続な境界を有している。前述した点を考慮すると、この境界の存在によって、本来ないはずの最も低い周波数成分やその倍波成分に関わる位相が発生する。つまり、解析によって得られる位相には、界面による本来の位相情報に加え余計な位相が重なってしまう。この周期的境界条件の影響を避ける工夫が求められている^{14,27)}。

そこで、我々は、この周期的境界条件の問題を解決すべく、得られた界面の TEM 像を 4 回対称を保つように 4 枚配置した TEM 像（合成した像）を得ることで、界面の TIE 位相像を求めることを試みた²⁸⁾。この合成像では、境界の強度がほぼ一様となることが期待できる。観察試料として、薄いアモルファス・ゲルマニウム (a-Ge) 膜と真空の界面を用意した。

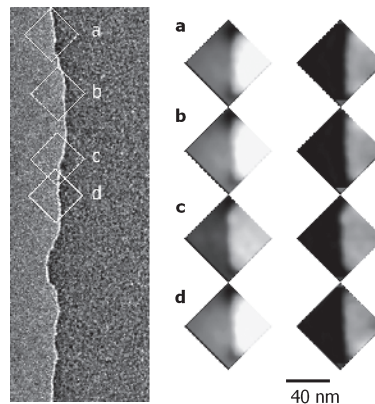


図4 a-Ge 膜／真空界面の TEM 像である。中央カラムは 4 回対称を保つような TEM 像を合成して得た TIE 位相像であり、右カラムは緩やかに変化するバックグラウンドを差し引いた後の TIE 位相像である²⁸⁾。

a-Ge 膜の厚さは、電子エネルギー損失分光法 (EELS) の測定結果から、 4.2 ± 0.4 nm と見積もっている²⁹⁾。

図4は、a-Ge 膜／真空界面の TEM 像である。図中、白い四角で示した領域について 4 回対称を保つような TEM 像を合成して得た TIE 位相像である。得られた位相像では、界面に応じた位相差を見ることができる。しかしながら、界面における位相変化に加え、界面垂直方向に沿って真空から a-Ge 膜に内部に向かってゆるやかに変化する位相が加わっている。これは、対称化によって現れる低周波成分を反映した変調と考えられる。そこで、界面の位相変化を抽出するため、このゆるやかな位相変化にフィットするように最小 2 乗法を用いて得た直線を差し引いた。図4右カラムは、差し引いた後の TIE 位相像である。4 か所で得られた TIE 位相像では、真空と a-Ge 膜の界面で同じような位相変化を再現できている。

界面の位相差は約 0.5 rad であった。a-Ge 膜の内部ポテンシャルとして 18.3 ± 1.8 V を得た。これは Ge 結晶の内部ポテンシャル（理論値 14.7 V および実験値 14.3 V³⁰⁾）よりも高い。内部ポテンシャルは、試料の厚さが減少するにつれて表面効果が顕著となるため、増加すると報告されている³¹⁾。a-Ge 膜がかなり薄いことを考慮すると、測定された高い内部ポテンシャルも表面効果によるものと考えられる。

以上、4 回対称を保つように合成した TEM 像を用いることで、周期的境界条件に由来する問題点が軽減でき、界面の TIE 位相像を得られることが分かった。ただし、TEM 像の合成によっては不適切な位相成分が現れる可能性がある点に注意が必要である。

6. 結 言

強度輸送方程式を用いた位相像の取得について紹介した。この手法は、たった 3 枚の TEM 像から位相像が得られる便利な手法である。TIE 位相像の空間分解能は、主に、デフォーカス差を小さくすると高くなることを明らかにした。また、

収差補正透過型電子顕微鏡を用いることで、原子分解能 TIE 位相像を得ることを示した。周期性のない界面の TIE 位相像を得るには、微分像において周期的境界条件に由来する問題を考慮する必要がある。ここでは、得られた界面の TEM 像を4回対称を保つように4枚配置した TEM 像(合成した像)を用いることで、界面の TIE 位相像を求めることができることを示した。今後、TIE を用いた位相再生により界面ポテンシャル分などの計測が行われることを期待する。本研究は、科学技術振興機構 CREST プロジェクトの助成を受けて実施された。

文 献

- 1) Abe, E., Pennycook, S.J. and Tsai, A.P.: *Nature*, **421**, 347–350 (2003)
- 2) Buban, J.P., Matsunaga, K., Chen, J., *et al.*: *Science*, **311**, 212–215 (2006)
- 3) Oshima, Y., Sawada, H., Hosokawa, F., *et al.*: *J. Electron. Microsc.*, **59**, 457–461 (2010)
- 4) Ishikawa, R., Okunishi, E., Sawada, H., *et al.*: *Nat. Materials*, **10**, 278–281 (2011)
- 5) Sawada, H., *et al.*: *J. Electron. Microsc.*, **58**, 357–361 (2009)
- 6) Sawada, H., *et al.*: *Microscopy*, **64**, 213–217 (2015)
- 7) Tonomura, A., Osakabe, N., Matsuda, T., *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 792–795 (1986)
- 8) Yamamoto, K., Kawajiri, I., Tanji, T., Hibino, M. and Hirayama, T.: *J. Electron. Microsc.*, **49**, 31–39 (2000)
- 9) Allen, L.J. and Oxley, M.P.: *Opt. Commun.*, **199**, 65–75 (2001)
- 10) Morishita, S., Yamasaki, J., Nakamura, K., *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 183103 (2008)
- 11) Dekkers, N.H. and de Lang, H.: *Optik*, **41**, 452–456 (1974)
- 12) Shibata, N., Findlay, S.D., Kohno, Y., *et al.*: *Nature Phys.*, **8**, 611–615 (2012)
- 13) Teague, M.R.: *J. Opt. Soc. Am.*, **73**, 1434–1441 (1983)
- 14) Beleggia, M., Schofield, M.A., Volkov, V.V. and Zhu, Y.: *Ultramicroscopy*, **102**, 37–49 (2004)
- 15) Humphrey, E., Phatak, C., Petford-Long, A.K. and De Graef, M.: *Ultramicroscopy*, **139**, 5–12 (2014)
- 16) Petersen, T.C., Keast, V.J., Johnson, K. and Duvall, S.: *Philos. Mag.*, **87**, 3565–3578 (2007)
- 17) Petersen, T.C., Keast, V.J. and Paganin, D.M.: *Ultramicroscopy*, **108**, 805–815 (2008)
- 18) Petersen, T.C., Bosman, M., Keast, V.J. and Anstis, G.R.: *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 101909 (2008)
- 19) Mitome, M., Ishizuka, K. and Bando, Y.: *J. Electron Microsc.*, **59**, 33–41 (2010)
- 20) Donnadieu, P., Lazar, S., Botton, G.A., *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **94**: 263116 (2009)
- 21) Uchida, M., Onose, Y., Matsui, Y. and Tokura, Y.: *Science*, **311**, 359–361 (2006)
- 22) Yu, X., Kanazawa, N., Onose, Y., *et al.*: *Nat. Mater.*, **10**, 106–109 (2011)
- 23) Yu, X., Onose, Y., Kanazawa, N., *et al.*: *Nature*, **465**, 901–904 (2010)
- 24) Ishizuka, K. and Allman, B.J.: *Electron Microsc.*, **54**, 191–197 (2005)
- 25) Zhang, X. and Oshima, Y.: *Microscopy*, **64**, 395–400 (2015)
- 26) Zhang, X. and Oshima, Y.: *Microscopy*, **65**, 422–428 (2016)
- 27) Volkov, V.V., Zhu, Y. and DeGraef, M.: *Micron*, **33**, 411–416 (2002)
- 28) Zhang, X. and Oshima, Y.: *Ultramicroscopy*, **158**, 49–55 (2015)
- 29) Malis, T., Cheng, S.C. and Egerton, R.F.: *J. Electron. Micro. Tech.*, **8**, 193–200 (1988)
- 30) Li, J., McCartney, M.R., Dunin-Borkowski, R.E. and Smith, D.J.: *Acta Cryst. Section, A* **55**, 652–658 (1999)
- 31) Wanner, M., Bach, D., Gerthsen, D., *et al.*: *Ultramicroscopy*, **106**, 341–345 (2006)