

収差補正 TEM/STEM の現状と今後の展望

Present Status and Future Prospects of Aberration Corrected TEM/STEM

田 中 信 夫

Nobuo Tanaka

名古屋大学エコトピア科学研究所

要 旨 1990年代後半から収差、特に球面収差補正技術が実用化して、最初に TEM、次いで2000年頃からは STEM にも搭載され、電子顕微鏡の分解能は 0.1 nm を切るようになった。また最近ではドイツとわが国で色収差補正装置の開発も進み、次の高分解能電子顕微鏡の目標は 0.04 nm 以下の点分解能と原子レベルの 3 次元観察である。本稿ではこの間の歩みと現状を総括して今後の展望をさぐりたい。

キーワード：球面／色収差補正，TEM/STEM，ナノ分析手法，分解能の向上，3次元観察

1. はじめに

近年、電子顕微鏡開発以来の重要問題であった対物レンズの収差を補正することが可能になった。すでに透過電子顕微鏡 (TEM)¹⁻³⁾ と走査透過電子顕微鏡 (STEM)^{4,5)} のための球面収差補正技術が実用レベルに達し、それを使った実験的研究の論文も多数発表されており、日本語の解説も書かれている^{6,7)}。また海外でも単行本⁸⁾ や雑誌の特集号⁹⁾ も出版されている。ここでは高分解能 TEM と STEM を中心にして、収差補正技術の現状を概観してみよう。

2. 球面収差補正の原理

電子顕微鏡の結像用対物レンズの球面収差 (係数 C_s) の問題は、装置の発明以来の懸案であった。このことは、軸対称の静磁場によるレンズでは負の係数 (凹レンズ) が不可能なために、光学レンズのように、組み合わせで収差を補正できない事実由来する¹⁰⁾。この問題の解決法として、① 現用のレンズのギャップや励磁を最適化して C_s を極小化すること¹¹⁾、② 6 極や 8 極の多極子レンズを用いて補正する方法^{1,4)}、③ 現用のレンズ間に薄膜を挿入しそれに電位を与えて補正する方法¹²⁾、④ ホログラフィーも含め撮影後のスルーフォーカス像を画像処理し補正する方法¹³⁾、④の方法とは別の形であるがスルーフォーカス像の高速蓄積による動的補正¹⁴⁾、などがこの半世紀行われてきた。①の試みについては現用の磁性材料と試料ホルダーの大きさより概ね $C_s = 0.4 \text{ mm}$ で飽和しており、近年は④の方法を中心にして様々な試みが行われてきた。Gabor が球面収差補正のためにホログラフィーを案出したことはよく知られている¹⁵⁾。1990 年

代後半からのブレイクスルーは②の正統的方法を用いたもので、この収差補正技術開発は、Scherzer-Rose と Cosslett-Hawkes らのドイツとイギリスでの長年の電子光学研究の成果の上に立っているものである。

近年の球面収差補正の技術開発は走査透過電子顕微鏡 (STEM) に対しても行われている。これは結像用の走査電子プローブを 0.1 nm 以下にしぼるためのもので、補正装置は STEM の対物レンズ (集束レンズ) の上に置かれている。この装置は近年 Krivanek を中心に英国ケンブリッジ大学で開発されてきたもので⁴⁾、STEM 専用機である 100 kV および 120 kV の加速電圧をもつバキュームゼネレータ (VG) 社の HB-5 に搭載されて (IBM⁵⁾、オークリッジ国立研¹⁶⁾ テストが行われてきた。

ドイツの Haider らが開発した TEM 用の球面収差補正装置は、図 1 に示すように、対物レンズの下の 2 つの 6 極子レンズ (図の四角印) とその間をつなぐ 2 つのトランスファーレンズで構成されている。収差補正装置の全体の長さは約 25 cm で、はじめフィリップス社の熱陰極フィールドエミッション電子銃 (thermal-FEG) 搭載の 200 kV 電子顕微鏡 (CM-200) に取り付けられ、ドイツのユーリッヒ研究所で実用テスト実験が行われた¹⁷⁾。ここで 6 極子レンズの間をつなぐトランスファーレンズが重要な役割をしており、これまでの他の収差補正装置¹²⁾ で cm オーダーであった 5 次の球面収差係数 (C_s) は数 mm となっている。また通常の装置で対物レンズの下部にある非点収差補正用コイルは取り除かれ、この装置の中で収差の一つとして一括して補正する。この下に中間レンズと投影レンズがあり、制限視野回折法などの機能は通常の 200 kV の TEM と何ら変わることなく使うことができる。

このレンズパラメーターのその場測定には 1977 年に Zemlin が発表したコマ収差補正の論文が基礎になっている

〒 464-8603 名古屋市千種区不老町
TEL: 052-789-4457; FAX: 052-789-3724
2011 年 5 月 31 日受付

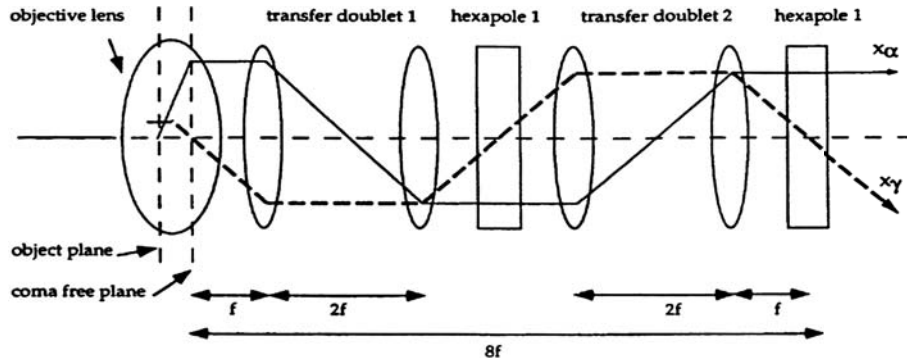


図1 Rose-Haider型収差補正装置内の6極子レンズと転送レンズの配置^{1,17)}

る¹⁸⁾。この方法は非晶質膜を種々の斜め入射条件で高倍率撮影しそのフーリエ変換図形の組(Zemlin's tableauと呼ばれる)の楕円度やリングの数から、各種のレンズ係数や非点収差状態および焦点はずれ量をその場で測定し、次いでそのデータを使ってコンピューターで上記の6極子の最適励磁電流を求め収差を補正する。図2はゲルマニウム非晶質膜を種々の傾斜入射条件で撮影した像のフーリエ変換図形である²⁾。コンピューターによる電子顕微鏡制御技術、高感度デジタルCCDカメラの進歩、およびドイツと英国での電子光学技術の地道な蓄積の下で、この論文が収差補正装置の実用化に貢献したことは印象的なことである。

球面収差補正装置(C_s -corrector)のもう一つの応用は、前記のようにSTEMの分解能向上である。ケンブリッジ大学では1990年代後半からKrivanekが実験を始め、上記のZemlinの方法とは異なり、Ronchigramを使い調整する方法を実用化した(図3の黒矢印の間が補正レンズ)⁴⁾。STEM暗視野像の場合はTEMのように C_s がゼロか極小になった

ときに位相コントラストがどのくらい生じるかというコントラスト伝達関数の議論⁸⁾は不要であり、電子ビームがサブÅに絞れるかだけで装置の性能が決まる。

このKrivanekの補正装置は4極子と8極子を組み合わせたもので、Haiderのものより構成が複雑で、コンピューターなしではその制御は不可能であった。まず120VのVG社のSTEMでのデータが発表され、(IBM⁵⁾、オークリッジ国立研¹⁶⁾、次いで300kVのSTEMに搭載された収差補正装置による0.1nm以下の分解能のデータも出た。

以上見たように、現在TEMおよびSTEM用としては6極子を使ったもの(CEOS-FEI, CEOS-JEOL, CEOS-Hitachi)、STEM用として4極子と8極子を使ったもの(NION-VG)が実用化に成功して各種のデータが発表されている。また6極子タイプを改良した国産の補正装置も実用化している(JEOL)¹⁹⁾。

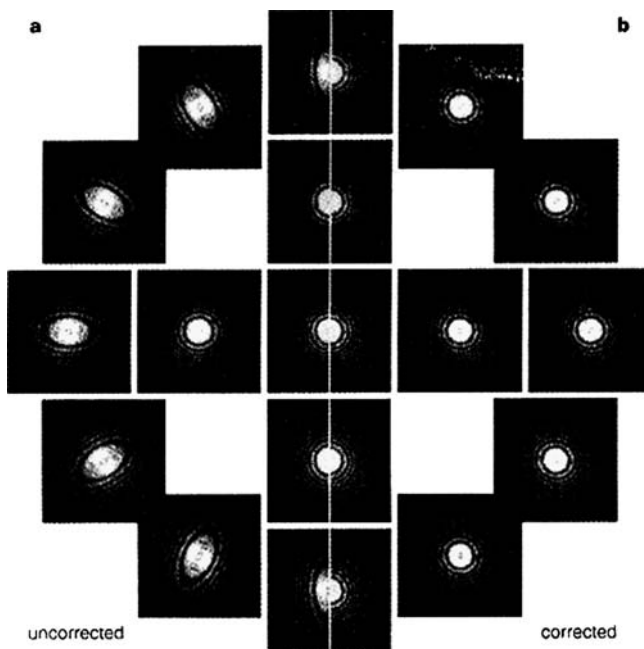


図2 収差状態を測定するZemlin図形の一例²⁾

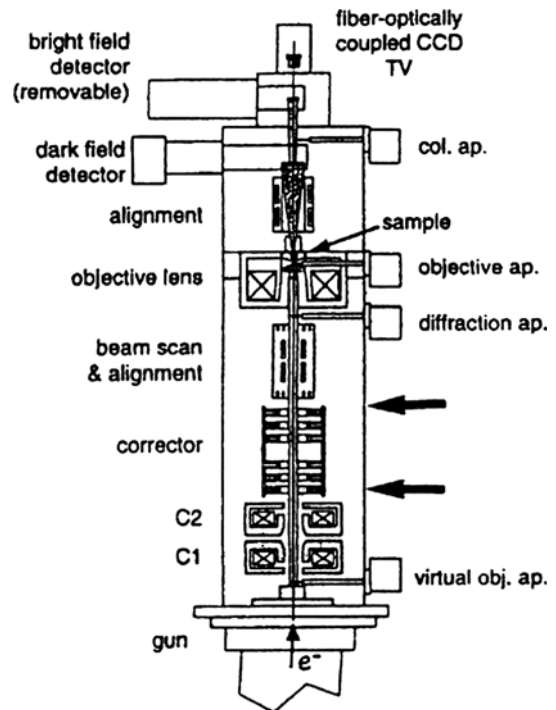


図3 収差補正装置(矢印)を搭載したSTEM⁴⁾

3. 実際の C_s -corrected TEM

以上のような研究の流れを見据えて、2000年以後名大—JFCC—東大のグループでは、国産の200 kV電界放射型電子顕微鏡にCEOS社の収差補正装置を組み込んだものを作り、それが超微粒子（クラスター）および界面の原子レベルの観察にどの程度有効かということ調べてきた^{8,20)}。

図4は開発した装置の概観図である。200 kVの熱陰極フィールドエミッションTEMの対物レンズの下に収差補正装置(矢印の銀色の部分)を追加した。開発途中の改良によって装置の操作性は格段に向上し、ビーム偏向やイメージシフトおよび最終的な非点補正は従来装置の操作卓のつまみでできるようになった。また制限視野回折やナノビーム回折はこれまで通り可能である。ちなみに球面収差補正前の対物レンズの球面、色収差係数はそれぞれ0.5 mmと1.1 mm（補正後1.45 mm）である。

図5は最初の観察試料として試みた $SiO_2/Si(100)$ 界面の高分解能像である²¹⁾。収差補正したTEMの最大の特徴は、格子像が高コントラストで観察できる条件で界面にフレネル縞が見えないことである(白横矢印)。したがってフレネル縞との干渉による格子像の位置ずれなども極小化することができる。

この電子顕微鏡の位相コントラスト伝達関数 $\sin\chi(u)$ は、シェルツァーフォーカス近傍で振動をせず単純な小山のような形で、0.1 nm以下まで延びている^{1,8,22)}。現在は色収差などにより点分解能が制限されているが、冷陰極フィールドエミッション電子銃($\Delta E \sim 0.4$ eV)などを使えば、モノクロメーターなしでも0.1 nm以下の構造情報が得られる。2009年には冷陰極FEG付きの300 kV収差補正TEM/STEMがJST-CRESTプロジェクトとして完成し、実際0.07 nm以下のTEM像分解能(FFT図形では0.05 nm程度)を実証した¹⁹⁾。

4. 色収差のTEM像への影響

すでに述べたように球面収差係数がゼロになると、点分解能を制限するのは色収差と鏡体などの機械的安定性である。弱い位相物体に関する線型伝達関数理論を使って減衰関数付きのコントラスト伝達関数を計算してみると、電子銃の下のモノクロメーターを用いて電子線のエネルギー巾を0.2 eVにした場合、0.07 nmの分解能に到達できることがわかっている²²⁾。これまでの経験により、偏向系の電気的安定度や試料ゴニオメーターの機械的安定度および外来からの機械的ノイズが現在の点分解能を實際上制限している原因であることが判明しており、設置部屋の特特殊仕様も含めて、これらの問題の解決も今後の大きな課題である。

5. 実際の C_s -corrected STEM

先に述べたように、球面収差補正STEMはこれまで米国の研究所にあるVG社の装置の改良という形で実現されてデータが得られていた。図6はオークリッジ国立研究所の

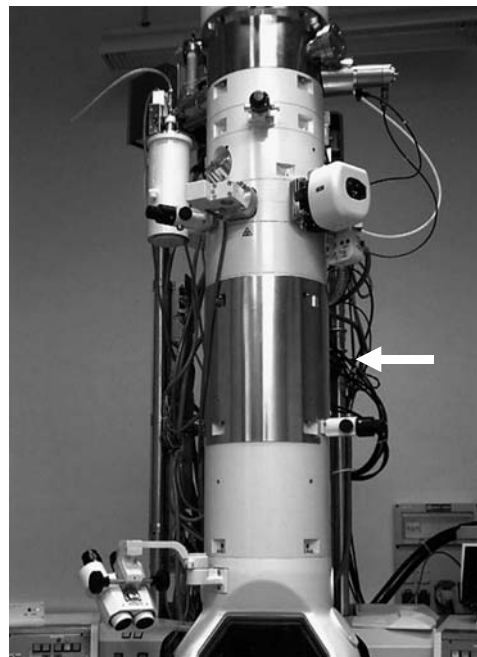


図4 名大—日本電子により共同開発された収差補正TEMの外観²⁰⁾

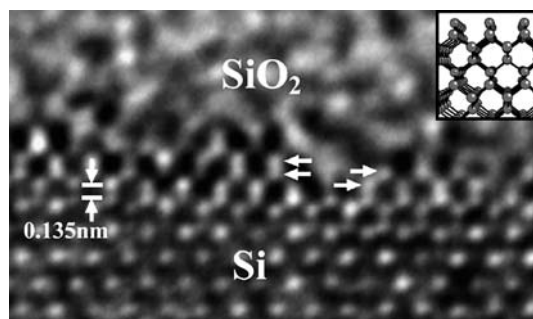


図5 $SiO_2/Si(100)$ 界面の収差補正高分解能TEM像²¹⁾

収差補正STEMの概観図である¹⁶⁾。0.1 nm以下の分解能を得るためには、電子光学系の最適化のみでなく、加速電圧の安定性や、偏向系(走査系)および試料ゴニオメーターの機械的安定性が極限のものが求められる。図7は類似の装置によってBatsonによって観察された金の原子クラスター内部の原子配列のZコントラスト像である⁵⁾。さらにPennycookは300 kVのVGのSTEM(HB-603U)にNION社の補正器を取り付け、シリコン結晶の欠陥観察を皮切りに種々の界面観察に大きな成果を上げた²³⁾。その範囲は半導体、セラミックス、準結晶に及んでいる。近年、通常TEMの照射系に収差補正器をつけたTEM/STEM装置も普及し(JEOL, FEI)、またVG社以外のSTEM専用装置も商用化されている(Hitachi)。

6. 収差補正TEM/STEMによる最近の成果

収差補正TEMによる微粒子、界面の観察で特徴的なことはすでに述べたように表面や界面でフレネル縞がない格子像が得られる—しかも0.1 nm以下の分解能で—ということである。



図6 取差補正 STEM の外観¹⁶⁾

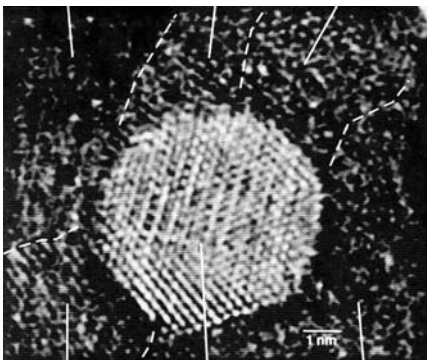


図7 金クラスターの取差補正 STEM 像⁵⁾

ある(図5)²¹⁾。また位相コントラストは基本的にデフォーカスのみで決まるのでいわゆるフーリエ像が得られ²⁴⁾、それを利用して TEM での Z スライス像²⁵⁾ や格子像で問題になる g と h- 回折波の干渉である非線形格子像の除去ができる²⁶⁾。また、制限視野回折が視野指定のエラーなくでき、3 nm の制限視野回折法も確立²⁷⁾、それを使って平行入射波での回折顕微鏡法も成功し、図8に示すように0.078 nmのシリコンダンベル構造も回折図形のみから再生できている²⁸⁾。

STEMの応用研究は1970年のCreweの単原子観察から始まるといってもよいと思われるが²⁹⁾、昨年で40年が経過した。ブラジルでのIMC17でも特別セッションが開かれ、これまでの研究の総括がなされた³⁰⁾。現在のSTEMの結像法は1990年にPennycookらによって始められた Z^{-1} ($\gamma: 0.5 \sim 1.0$) に比例するコントラストを与える High Angular Annular Dark Field (HAADF)-STEM³¹⁾ が主なものであるが、2000年初頭には Large Angle の BF-STEM 法も検討された³²⁾。しかし、顕著な成果は前者の方法で得られている。また、最近では

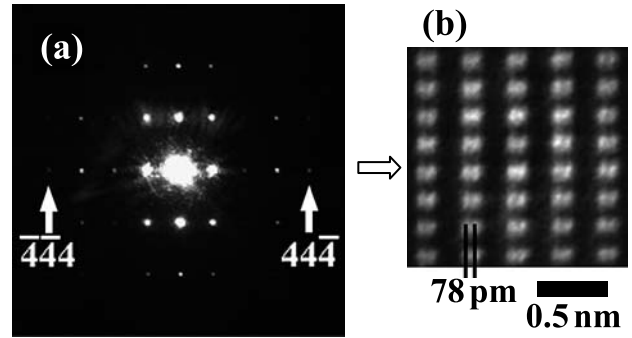


図8 電子回折顕微鏡法によるシリコン $\langle 112 \rangle$ 方位のダンベル構造の分離²⁸⁾

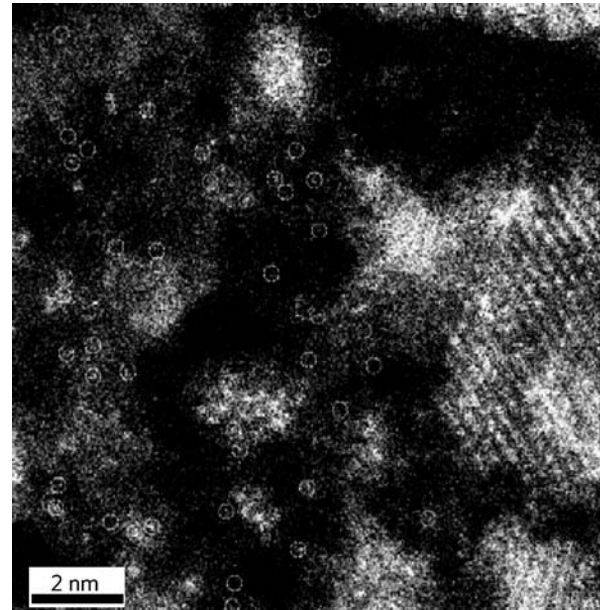


図9 非晶質炭素膜上のウラニウム単原子(白丸内の白点)の2次電子像³³⁾

図9に示すように非晶質炭素膜上のウラニウム単原子や YBCO 超伝導体結晶の原子コラムの2次電子像(SE像)も得られている³³⁾。

近年の我が国からの貢献は Annular Bright field (ABF)-STEM 法の提案である³⁴⁾。これは軽元素がみえないという HAADF-STEM 法の欠点を補完し、光軸上のせまい検出角を使う狭義の明視野法 (= 位相コントラスト法) のデフォーカス感度を軽減した方法である。この方法によって2010年には上記 JST-CREST の 300 kV の装置によって金属化合物中のリチウム原子コラム³⁵⁾が、また 200 kV 装置によって水素原子コラム^{36,37)}が可視化されるまでに至った(図10)。その他の応用例としての界面や準結晶の高分解能 STEM 観察については近刊の専門書にまとめられている³⁸⁾。

本解説では、STEM-EDX や STEM-EELS の詳細については触れる余裕がなかったが、実用材料の元素分析の測定時間の短縮など取差補正が大きく貢献していることは言うまでもない。ホットなトピックスとしては取差補正 STEM による

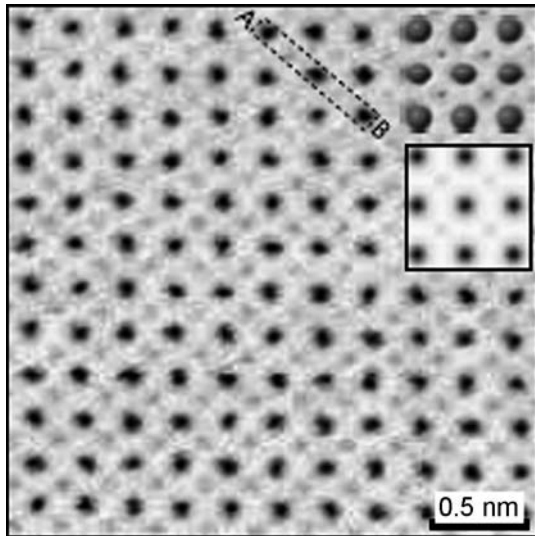


図 10 水酸化イットリウム (YH₂) の <001> ABF 像の一例³⁷⁾. A-B 間の強度測定も行い、強い黒い点の中の重心の位置の弱い黒点が水素原子コラムに対応すると説明されている。

1 個の原子コラムの元素識別である。すでに Pennycook³⁹⁾ や Muller⁴⁰⁾ のグループから論文が発表されているが、EELS マッピングにおいては delocalization 効果—プローブの大きさより拡大した領域で非弾性散乱の原因となる励起がおきる⁴¹⁾—や、結晶中でのブロッホ波の分布状態の詳細な検討が必要である。この点が収差補正 STEM 法の今後を議論する一つの論点となるだろう。また Crewe の仕事の現代版ともいえる仕事が末永らによって低加速電圧で行われ、炭素ナノチューブに入れられた金属内包フラーレン内の金属単原子が可視化されている⁴²⁾。また Krivanek もサブナノ分析を主目的とした 200 kV の収差補正 STEM 専用機を開発してグラフィックを観察している⁴³⁾。

7. 我が国の装置開発の現状

§ 2 ですでに述べたように、球面収差補正の研究は我が国でも 1970 年代からハード¹²⁾ およびソフト (画像処理による補正)¹⁴⁾ の面から行われてきた。また、多極子を用いた補正器の基礎的研究も電子技術総合研究所の岡山らによって行われてきたが、実用機までの発展には至らなかった⁴⁴⁾。1990 年代から収差補正の研究が特にヨーロッパで発展した一つの理由は、電子光学の実験データの豊富な蓄積とパソコンによる制御、すでに記したレンズパラメーターのその場測定法の確立にその原因があったと考えられる。Haider や Krivanek らの実用化の論文が発表されてからすでに 10 余年が経ち、我が国でもこの技術をマスターし、新しい展開ができる基盤がすでにできている^{7,19)}。装置面でも国産の 200 kV の HRTEM に収差補正装置をつけた最新のものは HAADF-STEM 像で 0.08 nm 以下の分解能を商用機として保証するまでになっている。これは電気、機械的安定度の追求が得意な我が国の実力が徐々に顕れてきた 1 つの例である。また JST-CREST プ

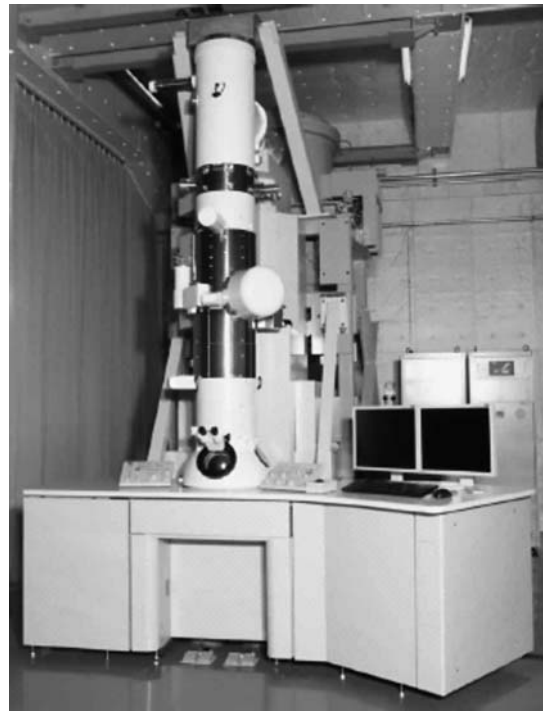


図 11 JST-CREST プロジェクトで開発された 300 kV のダブルコロンナー型 TEM/STEM¹⁹⁾

ジェクトでは 0.05 nm (= 50 pm) 点分解能を切る 300 kV の国産 TEM/STEM 装置も完成して、欧米連合の TEAM プロジェクトと完全に競合できている (図 11)¹⁹⁾。

§ 4 で述べたもう一つの収差補正技術としての色収差補正装置は Haider らによってすでに発表されており⁴⁵⁾、そのテスト機が米国のアルゴン国立研究所で稼働している。わが国でも JST-CREST プロジェクトの末永らにより球面・色収差補正の低加速の TEM/STEM の開発が進められている⁴⁶⁾。また、レンズに入射する電子線のエネルギー巾を 0.2 eV 以下にそろえるモノクロメーターの開発も、ヨーロッパ (デルフト工大)⁴⁷⁾ や我が国 (東北大—日本電子)⁴⁸⁾ で行われており、前者は FEI 社によりすでに商品化されている。

8. 収差補正 TEM/STEM の今後

収差補正 TEM/STEM が応用研究に使われるようになってすでに 10 年が経つ。TEM の分解能は 0.06 nm 程度⁴⁹⁾、STEM 分解能は原子コラムを流れるブロッホ波の拡がり幅によって制限されるという考え方もある。EELS 分析の非局在効果は前述したとおりである。現在まであまりデータがないのは 1 nm 以下のプローブでの 50 meV 以下の高エネルギー分解能 EELS 測定である。また本文で少し触れた 3D 観察については、1 nm までの分解能なら通常のトモグラフィ法を使った STEM 法がベストであるが⁵⁰⁾、原子レベルの 3D は未だ確立しているとは言い難い。Pennycook により始められプローブの Z 方向局在性 ($\Delta Z = \lambda/\alpha^2$; α はプローブの半角⁸⁾) とデフォーカスを用いた Z-スライス法⁵¹⁾ は原理的には非品質担体上の単原子クラスターなどしか適用できない。シリ

コン中の砒素の検出に使われた方法⁵²⁾も、結晶にプローブを入射したときの動力学的回折効果の1つの応用問題であり⁵³⁾、顕微鏡法として汎用な方法ではない。さらに共焦点レーザー顕微鏡の電子線版も英国と我が国で開発がすすめられているが^{54,55)}、STEMプローブが作り出す結晶中の波動場のZ方向の局在性は単純なものではないようである。

いずれにしても今後の電子顕微鏡研究において最高性能をねらう装置はここで説明した球面と色差補正装置の装着なしでは考えられない状況である。もちろんこれに対応した試料作製技術の改良と電子線照射効果への配慮、および操作技術の高度化とそれを補うソフトウェアの開発が必要なことは言うまでもない。

謝 辞

本解説で記した情報の収集に多大な努力をしてくださいましたドイツ CEOS 社の Haider, Hartel 博士、および名古屋大学の山崎博士や齋藤博士に心からお礼申し上げます。また図4の装置は、文部科学省科学技術振興調査費プロジェクトの一環として、東大総合研究機構の幾原教授、(財)ファインセラミックセンターの平山司主管研究員と日本電子の細川史生、成瀬幹夫氏らとの共同で開発されたものである。また他の写真の掲載をお許し下さいました関係者の方々にもお礼を申し上げます。

(追 記)

本文では低加速収差補正装置による末永らの仕事⁴²⁾を紹介したが、ドイツの Kaiser らのグループも SALVE (Zeiss) と呼ばれる装置を使って 20 kV の低加速でグラフェンなどを観察している (Ultramicrosc. (2011), in press).

文 献

- 1) Haider, M. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **47**, 395 (1998)
- 2) Haider, M. *et al.*: *Nature*, **392**, 768 (1998)
- 3) Lentzen, M. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **92**, 23 (2002)
- 4) Krivanek, O.L. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **78**, 1 (1999)
- 5) Batson, P. *et al.*: *Nature*, **418**, 617 (2002)
- 6) 田中信夫: 電子顕微鏡, **37**, 218 (2002)
- 7) 細川ら: 電子顕微鏡, **38**, 64 (2003)
- 8) Tanaka, N.: in Hawkes, P.W. (Ed), *Advances in Imaging & Electron Physics*, Academic Press (2008)
- 9) *Phil. Trans. Royal Society A*, **367**, 3631 (2009)
- 10) Scherzer, O.: *Z. Physik*, **101**, 593 (1936)

- 11) Tsuno, K. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **72**, 31 (1998)
- 12) Maruse, S. *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **9**, 1549 (1970)
- 13) Kirkland, A.I.K. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **47**, 11 (1998)
- 14) Takai, Y. *et al.*: *Proc. ICEM-14* (Cancun, 1998) vol. 1, 115
- 15) Gabor, D.: *Nature*, **161**, 777 (1948)
- 16) Pennycook, S.J. *et al.*: *Proc. MSA* (2002), 476CD
- 17) Haider, M. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **75**, 53 (1998)
- 18) Zemlin, F. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **3**, 49 (1977)
- 19) Sawada, H. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **58**, 357 (2009)
- 20) Tanaka, N. *et al.*: *Proc. ICEM-15* (Durban, 2002) Vol. 3, 37
- 21) Tanaka, N. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **52**, 69 (2003)
- 22) Hu, J.J. and Tanaka, N.: *J. Electron Microsc.*, **49**, 651 (2000)
- 23) Nellist, P.B. *et al.*: *Science*, **305**, 1741 (2004)
- 24) Cowley, J.M. and Moodie, A.F.: *Proc. Phys. Soc.*, **B70**, 486 (1957)
- 25) Hirahara, K. *et al.*: *Nanolett.*, **6**, 1778 (2006)
- 26) Yamasaki, J. *et al.*: *Microsc. Microanal.*, **14**, 27 (2008)
- 27) Yamasaki, J. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **54**, 123 (2005)
- 28) Morishita, S. *et al.*: *AMTC Lett.*, **2**, 116 (2010)
- 29) Crewe, A.V. *et al.*: *Science*, **168**, 1338 (1970)
- 30) Isaacson, M.S.: *Proc. 17th IMC* (Rio de Janeiro, 2010) 348
- 31) Pennycook, S.J. and Jesson, D.E.: *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 938 (1990)
- 32) Watanabe, K. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **102**, 13 (2004)
- 33) Zhu, Y. *et al.*: *Nature mater.*, **8**, 808 (2009)
- 34) Okunishi, E. *et al.*: *Microsc. Microanal.*, **15**, 164 (2009)
- 35) Ohshima, Y. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **59**, 457 (2010)
- 36) Findlay, S.D. *et al.*: *Appl. Phys. Express*, **3**, 116603 (2010)
- 37) Ishikawa, R. *et al.*: *Nature mater.*, Feb. 13, 1 (2010)
- 38) Ikuhara, Y., Shibata, N. and Abe, E.: in Pennycook, S.J. and Nellist, P. (Eds), *Scanning Transmission Electron Microscopy*, Springer (2011)
- 39) Varela, M. *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 095502 (2004)
- 40) Muller, D.A. *et al.*: *Science*, **319**, 1073 (2008)
- 41) Kimoto, K. *et al.*: *Nature*, **450**, 702 (2007)
- 42) Suenaga, K. *et al.*: *Nature chem.*, **1**, 415 (2009)
- 43) Krivanek, O.L. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **110**, 935 (2010)
- 44) Okayama, S.: *Nucl. Inst. & Method*, **A298**, 488 (1990)
- 45) Muller, H. *et al.*: *Proc. MSA* (2002) 12
- 46) Suenaga, K. *et al.*: *Proc. IMC17* (Rio de Janeiro, 2010) I22-5
- 47) Mook, H.W. and Kruit, P.: *Ultramicrosc.*, **78**, 43 (1999)
- 48) Mukai, M. *et al.*: *Proc. ICEM-15* (Durban, 2002) Vol. 3, 321
- 49) Lentzen, M.: *Microsc. Microanal.*, **14**, 16 (2008)
- 50) Sueda, S. *et al.*: *Ultramicrosc.*, **110**, 1120 (2010)
- 51) Borisevich, A.Y. *et al.*: *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*, **103**, 3044 (2006)
- 52) Kim, S. *et al.*: *Appl. Phys. Express*, **3**, 81301 (2010)
- 53) Nakamura, K. *et al.*: *J. Electron Microsc.*, **46**, 33 (1997)
- 54) Nellist, P.D. *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 124105 (2006)
- 55) Hashimoto, A. *et al.*: *J. Appl. Phys.*, **106**, 86101 (2009)