

環状分割検出器を用いたホローコーン STEM による位相再生

Phase-contrast Imaging by Annularly Arrayed Detectors
in Hollow-cone Illumination STEM石田 高史^a, 川崎 忠寛^{a, b}, 丹司 敬義^a, 生田 孝^c

Takafumi Ishida, Tadahiro Kawasaki, Takayoshi Tanji and Takashi Ikuta

^a名古屋大学未来材料・システム研究所^b一般財団法人ファインセラミックセンターナノ構造研究所^c大阪電気通信大学名誉教授

要 旨 走査透過電子顕微鏡において、試料を透過した電子波の位相変化を回復する手法の1つとして円環絞りと環状アレイ検出器を用いた位相コントラスト環状明視野法を開発した。本手法は、円環絞りをを用いてホローコーンビームを作ることにより分解能を維持したまま焦点深度を拡大することができるため、運動学的な近似が成立する範囲で厚い試料の定量的な投影ポテンシャルの再生に期待が持てる。本稿では、本手法で用いる電子光学系及び位相再生のプロセスの概要、実際に開発した装置、結晶性試料を用いた原理検証結果及びイメージシミュレーションを用いた本手法の応用可能性についての検討結果について紹介する。

キーワード：位相再生法, ホローコーン照明, 分割検出器, フーリエフィルタリング

1. はじめに

走査透過電子顕微鏡 (STEM) のデータ取得は各プローブ位置ごとに処理されるため、様々な電子による信号を同時に結像できる利点がある。分割検出器が導入されたSTEMにおいて明視野・暗視野領域で取得された像は、どの領域でも原子分解能が達成されている¹⁾。その中でも環状明視野 (ABF) 検出器で得られた像は、高角度に散乱した電子を捉える環状暗視野 (HAADF) 検出器では観察が難しかった軽元素カラムの可視化に成功し²⁾、水素原子カラムを観察するまでに至っている^{3,4)}。一方で、ABF法はあくまで電子線の強度を検出し像を作るため、弱位相物体と見なされる試料に対してその像コントラストはやはり低い⁵⁾。このため、透過電子顕微鏡 (TEM) で盛んに取り組まれてきた電子線ホログラフィー⁶⁾に代表されるような位相コントラストを再生する手法がSTEMにおいても有効であろう。

TEMとSTEMの相反定理^{7,8)}に基づけば、TEMで行われている電子波の位相を再生する様々な手法はSTEMでも実現される。その中でも、TEMにおいて焦点位置や照射角の結像条件を変化させ複数枚の像を用いて画像処理により位相を再生する手法⁹⁾はSTEM装置の大幅な改造なく実現可能

である。一方で、上記の手法では、高分解能TEM像と同様に散乱波同士の干渉で起こる結晶構造を直接表さないコントラストが残存するため^{10,11)}、これを取り除くことが再生した位相コントラスト像より構造解析や位相変化の定量評価をするために重要となる。

このような課題を解決する手法として、生田はSTEMにおいて円環絞りと分割検出器を利用して非線形結像成分を積極的に取り除く位相再生法を提案した^{12,13)}。筆者らこの手法をABF領域で検出器を分割し位相再生に利用することから位相コントラストABF (P-ABF)法と名付けて開発に取り組み、高分解能位相像の再生に成功した¹⁴⁾。本稿では、P-ABF法の装置・光学系や位相再生のプロセスの概要を紹介し、結晶性試料を用いた原理検証結果及びイメージシミュレーションを用いた本手法の応用可能性についての検討結果について述べる^{14,15)}。

2. 位相コントラスト環状明視野法の原理

2.1 軸外検出器の結像特性

位相コントラスト環状明視野法 (P-ABF) は入射ビームをホローコーン状にし、軸外に検出器を置くことで試料下面の電子波を再生するのに必要な結像成分を残存させる。図1(a)はSTEMの結像系の模式図であり、試料を2次元格子とすると検出面上にはプローブの位置に依存したコヒーレント収束電子回折 (CBED) 図形が形成される。ここで、ビームの照射半角はブラッグ角の2倍以上大きいとする。図1(b)

¹ 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町
TEL: 052-789-3597; FAX: 052-789-3597
E-mail: ishida@imass.nagoya-u.ac.jp
2016年12月26日受付, 2017年4月5日受理

の様に軸外に検出器を配置した時、軸上に検出器を置いた場合と比べて検出器上の透過波（ディスク）と回折波（ディスク）の干渉の組み合わせを減らすことができるが、この条件では3波干渉の状態になる。そのため、像強度中に回折波同士の干渉も残存する。図1(c)は入射ビームをホローコーン状にした場合のコヒーレントCBED図形である。図1(b)と同じ位置に検出器を置いた場合、ホローコーンビームを試料に入射させることにより検出器上では透過波と1つの回折波の2波干渉となる。このようにホローコーンビームと軸外検出器により2波干渉を実現し、像強度中に試料による電子波の位相変化を記録できる。

さらに、試料を格子と限定せず一般的な形で像強度を表す。ここで、 \mathbf{r} と \mathbf{k} をそれぞれプローブの2次元位置ベクトルと2次元波数ベクトルとして、コヒーレントCBED図形を $|\psi(\mathbf{k}, \mathbf{r})|^2$ とすると像強度 $i(\mathbf{r})$ は以下のように表すことができる¹⁴⁾。

$$i(\mathbf{r}) = \int D(\mathbf{k}) |\psi(\mathbf{k}, \mathbf{r})|^2 d\mathbf{k} \\ = \int D(\mathbf{k}) |q(\mathbf{r}) \otimes t(\mathbf{r}) \exp(-2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})|^2 d\mathbf{k} \quad (1)$$

ここで、 $D(\mathbf{k})$ は検出内を1、検出外を0とする開口関数、 $q(\mathbf{r})$ は試料の透過関数、 $t(\mathbf{r})$ は対物レンズの伝達関数 $T(\mathbf{k})$ のフーリエ変換であり、 \otimes は畳み込み積分を表す。結像成分を特徴づけるために透過関数を

$$q(\mathbf{r}) = 1 + q'(\mathbf{r}) \quad (2)$$

と表す。ここで、微小検出器を \mathbf{k}_n だけシフトさせ軸外に置く。このとき $D(\mathbf{k}) = \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}_n)$ となり、その像強度は、

$$i(\mathbf{r}) = 1 + q'(\mathbf{r}) \otimes t(\mathbf{r}) \exp(-2\pi i \mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) T^*(-\mathbf{k}_n) \\ + q'^*(\mathbf{r}) \otimes t^*(\mathbf{r}) \exp(2\pi i \mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) T(-\mathbf{k}_n) \\ + n(\mathbf{r}) \quad (3)$$

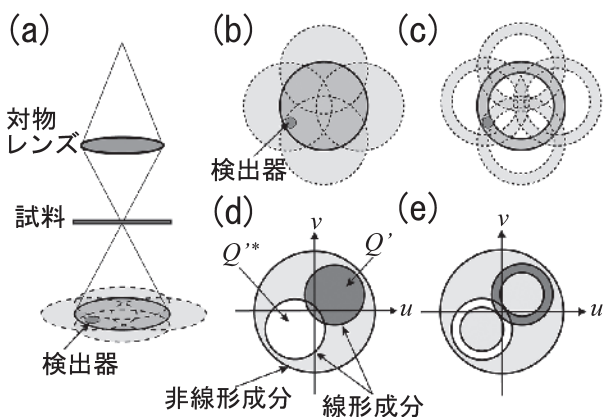


図1 (a)軸外検出器を配置したSTEMの光学系の模式図と(b)通常のコヒーレントCBED図形、(c)ホローコーンビームを用いた場合のコヒーレントCBED図形、(d)通常の入射ビーム、(e)ホローコーン状の入射ビームを用いた場合の軸外検出器での各結像成分のフーリエ空間上の分布。ここで、 Q' は透過関数 q' のフーリエ変換を表す。

となる。式(3)の第1項は像強度のバックグラウンドであり、像強度中に一様に分布する。第2・3項は透過波と散乱波の干渉によるコントラストを示すものであり、試料構造を直接表す線形結像成分である。第4項は散乱波同士の干渉による非線形結像成分である。さらに、式(3)をフーリエ変換すると図1(d)(e)に示す様に線形結像成分と非線形結像成分が分布する。ここで、 $Q'(\mathbf{k})$ は $q'(\mathbf{r})$ のフーリエ変換とする。フーリエ空間上での線形結像成分の分布は対物レンズの伝達関数 $T(\mathbf{k})$ に含まれる瞳関数によって制限される。また、非線形結像成分は各線形結像成分同士の畳み込み積分で表されるので広く空間に分布することになる。軸外検出器を用いるとフーリエ空間上では式(3)の第2・3項が検出器のシフト量 \mathbf{k}_n に応じて2つの円に分離する。また、検出器のシフト量をあらかじめ知ることができるので、分離した2つの円をフーリエ空間上で抽出すれば試料下面の波面を再生できる。ただし、軸外に1つの検出器を置くだけでは空間周波数の一部が欠損するため、それを補うように複数の検出器を配置する必要がある。

2.2 電子光学系

図2(a)にP-ABF法の光学系の模式図を示す。本手法では、まず対物レンズで試料面上に収束させる電子線プローブを円環絞りにより中空にする。円環絞りにより形成されたホローコーンビームをスキャンコイルにより試料面上で走査し、透過した電子は試料下方にある検出器により捉える。ここで、ホローコーンビームを用いることにより前述したように試料下の散乱波が減少するため、波面を再生するのに不要な非線形結像成分を通常のビームを用いた場合と比べ低減することができる。本手法では図2(b)に示すように、分割検出器を円環状に配置する。また、図2(a)に示すようにホローコーンビームの最大照射半角 α_1 と最小照射半角 α_2 は環状アレイ検出器の最大検出角 β_1 と最小検出角 β_2 を一致させる。環状

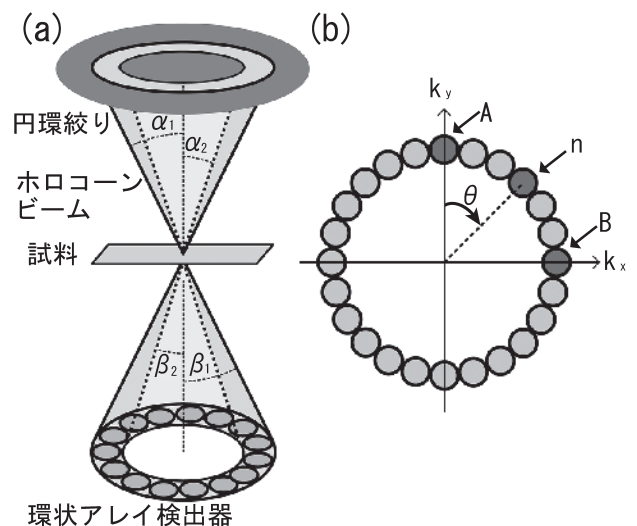


図2 (a)位相コントラスト環状明視野法の光学系の模式図と(b)検出器面上での環状アレイ検出器を用いた検出領域の分割の一例

アレイ検出器で捉えられた電子は電気信号に変換し、走査信号と同期してパーソナルコンピュータ (PC) に取り込み、検出器の分割数に対応する複数枚の像が取得できる。

2.3 波面再生

図 2 (a) に示す方法で PC に取り込まれた散乱方位角が異なる電子により結像された複数枚の像から、図 3 に示す画像処理によって波面が再生される。環状アレイ検出器で得られた複数枚の像をそれぞれフーリエ変換する。像のスペクトル中で 8 の字状に分布する線形結像成分は 8 の字フィルターを適用することで抽出する。その時、このフィルターは検出器の位置に従って回転させる。この回転角 θ はプローブの走査方向と検出器の位置の関係に依存する。具体的には、図 2 (b) の k_y 軸上にある検出器 A で得た画像 A は、図 3 に示すように 8 の字の帯域を抽出するフィルターが掛け算される。画像 B は検出器 A に対して 90° 回転している検出器 B により取得されるためにフィルターも 90° 回転させる。波面の実部を再生するには単純に 8 の字フィルターを各スペクトルに対して適用するだけで良い。一方で、虚部を再生するには、8 の字フィルターの片方のリングの係数を虚数 i 、もう片方を $-i$ とする。そして最後に、フィルタリング後のスペクトルをすべて足し合わせ、逆フーリエ変換することで波面の実部あるいは虚部が再生される。

ここで弱位相物体近似を適用できる試料を仮定した場合、試料によって変調された電子波の振幅変化と位相変化を表す振幅像及び位相像は、直接再生した波面の実部と虚部がそれぞれ対応する。厚い試料の場合には、実部と虚部の自乗和を取ることによって振幅像を再生し実部と虚部の比の逆正接を取ることにより位相像を求めることができる。

3. 収差補正 STEM を用いた原理検証¹⁴⁾

3.1 実験装置

本手法を実現するために収差補正を搭載した STEM (Hitachi: HD-2300S) に円環紋りと環状アレイ検出器を搭載した。円環紋りは集束イオンビーム (FIB) 装置の微細加工技術を用いることで高精度の加工に成功した。図 4 (a) は実際に搭載した円環紋りであり、FIB 装置 (Hitachi: FB-2100) により厚さ $30\ \mu\text{m}$ のタンタル板を図 4 (a) に示すように中央のストッパーを保持するために 3 点の支柱が残るように加工し、その後チャージアップを防止するためにオスミウムコーティングを施した。

図 4 (b) は開発した環状アレイ検出器の検出面の写真である。本検出器では検出器面上で 31 分割にしている。P-ABF 法のために軸外検出器を 24 個、通常の明視野像観察のために軸上検出器として 7 個をそれぞれ配置している (図 5 (d) 参照)。環状アレイ検出器の分割数は信号対雑音比の観点から 24 分割とした。また、多分割検出器アレイは、プラスチック製の光ファイバー (Mitsubishi Rayon: CK20) の端面を並べることで実現した。この光ファイバーは光電子増倍管までのライトガイドも兼ねている。この光ファイバーの端

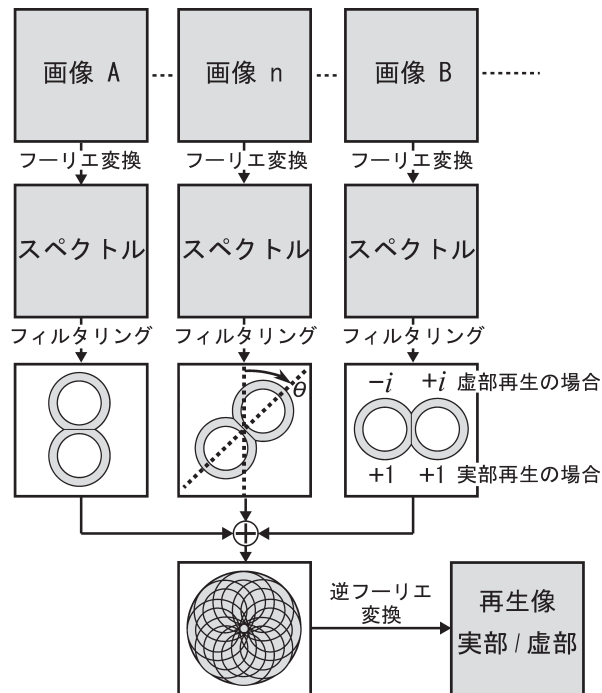


図 3 位相コントラスト環状明視野法による波面再生のプロセス

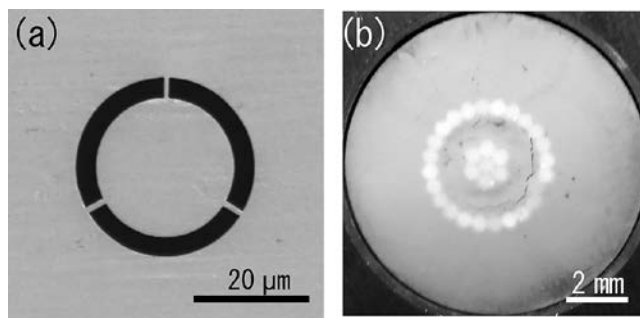


図 4 (a) 作製した円環紋りの走査電子顕微鏡像と (b) 環状アレイ検出器の検出面の写真。(b) の輝点がそれぞれ検出器である。

面に電子を光に変えるための蛍光塗料を膜厚: $100\ \mu\text{m}$ となるように塗布した。

検出器面上で光に変換された電子は光ファイバーを通りマルチアノード型の光電子増倍管 (Hamatsu: H7546B) に導かれアンプで増幅された後に PC に搭載された AD 変換器により走査信号と同期された後に 31 枚の像がモニターに出力される。

3.2 グラファイト試料を用いた観察結果

本研究で開発したシステムを用いて P-ABF 法により結晶性試料の波面再生を行い、得られた複数枚の像から振幅像と位相像を再生した。観察した試料はマイクロ・グリッド上のグラファイト粉末であり、STEM は $200\ \text{kV}$ の加速電圧で動作させた。また、環状アレイ検出器から 31 枚像を取得する際の走査時間は $8.3\ \text{s}$ であり、像のピクセル数と dwell time はそれぞれ $640 \times 480\ \text{pixels}$ と $20\ \mu\text{s}/\text{pixel}$ である。

図5 (a)–(c) に環状アレイ検出器の #0-23 (図5 (d) 参照) で取得された内の3枚の像を示す。図中の番号 k は図5 (d) の k 番目の検出器で得られたことを意味する。この時、照射半角が 8.1–10.3 mrad となる円環絞りをを用いた。図5 (a)–(c) にはグラファイトの格子縞 (0.34 nm ; (0002) 面) が現れている。ここで、各像中で格子縞の現れている領域及び方向が異なる。これは、各検出器で検出する電子の散乱方位角が異なるためである。

図6 に #0-23 の環状アレイ検出器により得た像から位相コントラスト環状明視野法で再生した (a) 振幅像と (b) 位相像を示す。振幅像はグラファイトの結晶によって強く電子線が散乱された領域がより暗いコントラストとして示されている。また、グラファイトの格子縞は振幅像中では弱いコントラストしか与えないので本結果ではほとんど確認できない。一方で、図5 では各像はそれぞれ特定の方向の格子縞しか含んでいなかったが、図6 (b) の位相像では全領域で格子縞が確認できる。位相像中の格子像は、振幅像の暗いコ

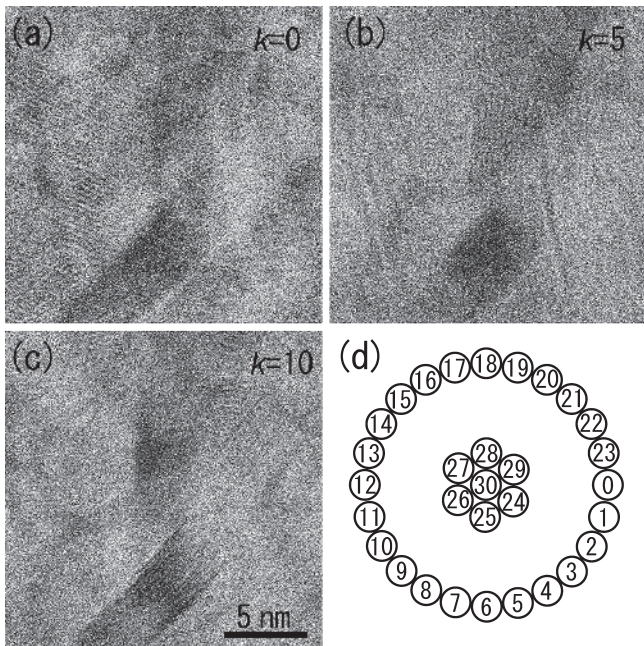


図5 環状アレイ検出器で得られたグラファイトの像 ((a)–(c)) と (d) 環状アレイ検出器の模式図 : (a)–(c) の k 番号は (d) の検出器番号に対応する。

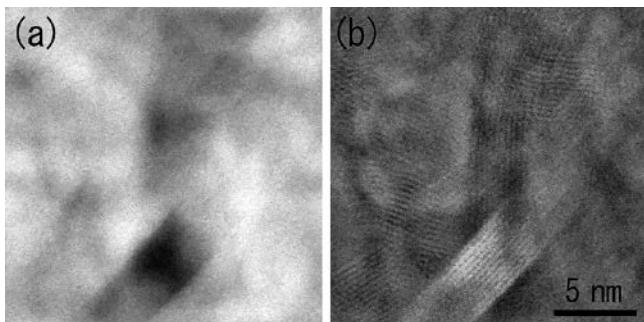


図6 再生したグラファイト粒子の (a) 振幅像と (b) 位相像

ントラストの領域にも現れている。電子波の振幅・位相変化によるそれぞれのコントラストを、本手法で振幅像と位相像が分離して再構成されていることを示している。

4. 結晶試料の定量解析への応用可能性¹⁵⁾

試料下面の電子波の位相が試料厚さに対して比例して増加する範囲では投影ポテンシャルの定量的な評価が可能である。P-ABF法では空間周波数の低い成分の再生に不適なため、完全な試料情報を再生できない。そのため、本手法の有効性は空間周波数の高い成分で構成される原子分解能観察での定量的評価において発揮される。

P-ABF法により再生した位相像が結晶試料の投影ポテンシャルがどの程度まで定量化できるのかをマルチスライス法¹⁶⁾を用いてイメージシミュレーションにより検証した。ここでは加速電圧が 200 kV で動作させた冷陰極電界放出型電子銃を備えた収差補正走査透過電子顕微鏡を仮定した。さらに、ホローコーンビームの照射半角を 15.4–20 mrad とし 24 チャンネルの環状アレイ検出器の検出角と一致させ、計算をした。

4.1 再生位相像の原子番号依存性

図7 (a) (b) に P-ABF 法を用いて再生した銅単原子の位相像とそのラインプロファイルを示す。位相像と原子番号の関係を求めるために、真空中に単原子を置いて原子番号 1–103 の像を計算した。本手法により再生された単原子位相像は、空間周波数が低い成分が欠如しているために、真空などの基準から位相差の絶対値を求めることができない。また、これは再生位相像が完全な原子の投影ポテンシャル分布を表

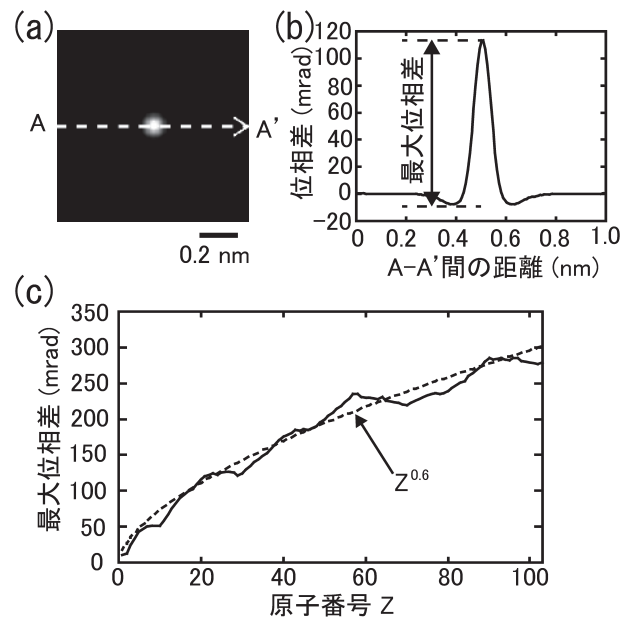


図7 P-ABF法による単原子の位相像と原子番号の関係 : (a) 単原子 (銅原子) の再生位相像, (b) 単原子位相像 (a) の矢印方向のラインプロファイル, (c) 原子番号に対する単原子による最大位相差 : (波線は最小二乗法によるフィッティングの結果を表す)

さないことも意味している。そこで図7 (b) のように位相差の最大値と最小値の差を最大位相差として定義し、これを用いて原子番号と再生位相像の関係を評価した。

図7 (c) はP-ABF法での最大位相差を原子番号Zに対してプロットしたものである。位相差は全体の原子番号Zに対して単調増加せず、増減の変動を含んでいる。位相差が原子番号Zに対してどの程度比例するかを知るために、図7 (c)の破線に示すように最小二乗法によりフィッティングカーブを求めた。これにより最大位相差はZの0.6乗に比例することがわかった。この結果は、電子線ホログラフィーのシミュレーションで得られた原子番号変化による位相差の増加の関数と分解能(0.1 nm)が同様となる条件でよく一致している⁶⁾。そして、Zに対する位相差の変動は原子の電子配置によるものであると説明されており、その詳細な振る舞いまで電子線ホログラフィーと本手法は一致している。これは相対的な位相差である最大位相差でも投影ポテンシャルを知ることができることを示している。

4.2 酸素原子の占有率の定量解析

軽元素カラム中に存在する原子数を定量評価できるか検討するために、図8 (a) に示すように[001]方位から見たSrTiO₃の酸素原子カラムの濃度とカラム中の原子位置を変化させABF像とP-ABF像を計算した(図8 (b) (c))。さらに、厚さ試料を3 nm, 6 nm, 9 nmの場合それぞれを計算した。酸素原子の占有率に対するABF像の酸素カラムの強度とP-ABF像の酸素カラムの位相差の平均値をプロットしたものを図8 (d) (e) に示す。ここで、ABF像の強度はP-ABF像の場合(図7 (b) 参照)と同様な方法により酸素カラムによる強度変化を最大強度として求め、照射半角及び検出角は22 mradと11-22 mradで計算した。図8 (d) に示すABF像からの結果では、その平均値は酸素の占有率に比例して増加する。しかしながら、カラム中で酸素空孔の配置の変化による強度差を最大値と最小値として表しているエラーバーがどの試料厚さでも大きい。この傾向はFindlayらのシミュレーション結果¹⁷⁾と一致する。例えば、試料厚さ6 nmの場合を見ると、占有率が65%の場合±25%の誤差を含むことがわかる。これは酸素原子10 ± 4個に対応する。一方、P-ABF像(図8 (e))では、位相差はどの試料厚さに対しても線形に増加し、ABF像の場合と比べてエラーバーが明らかに小さい。試料厚さ9 nmの場合には他の試料厚さと比べてカラム中での原子位置の変化の影響が大きくなるが、試料厚さ6 nm以下の場合にはエラーバーが酸素単原子の位相差に比べ半分以下となるので、P-ABF法で酸素原子1つ1つの計数が可能である。

以上の結果は次のように理解することができる。厚い試料に対してプローブの焦点深度がより長ければ正確な投影像を表し得る。まず、本条件における焦点深度を川崎らの結果¹⁸⁾に基づき計算すると、ABF法では約±5 nmであるために、試料厚さに対して焦点深度が十分ではなくカラム中で原子位置が変わると強度が変動する。一方で、P-ABF法の場合の

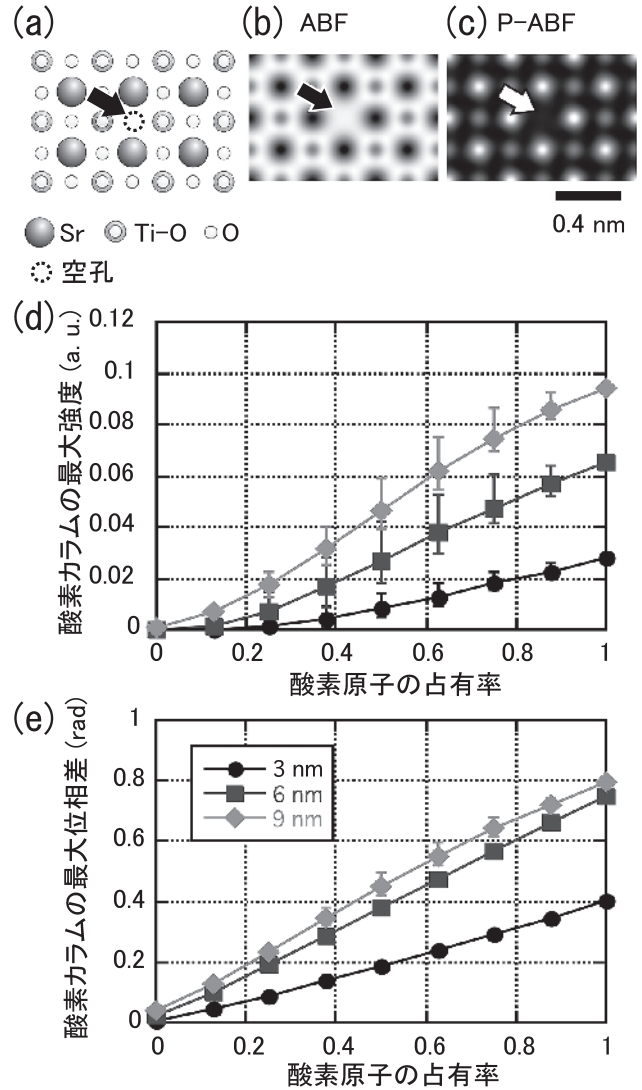


図8 酸素空孔を含むSrTiO₃[001]の(a)モデルと(b)ABF像と(c)P-ABF像の計算結果(試料厚さ6 nm)の一例、及び試料厚さ3, 6, 9 nmにおける酸素占有率に対する酸素カラムのABF像の(d)最大強度とP-ABF像の(e)最大位相差の平均値:(a)-(c)の矢印は空孔のある酸素カラムを表し、(d)(e)のエラーバーは酸素カラム中の原子配置を変化させた場合の最大値と最小値を表している。

焦点深度は約±14 nmとなる。これは、試料厚さ3 nm, 6 nmの場合には十分な焦点深度がある。これに加えて、厚い試料では散乱波同士の干渉による非線形結像成分の影響も無視でなくなる。非線形結像成分はP-ABF法では積極的に低減することができる。そのため、位相差の線形性が保たれている範囲では投影ポテンシャルを再生可能であるといえる。また、試料厚さ9 nmでは1つの酸素原子を計数することは難しいが、P-ABF法の場合は酸素原子6個単位で酸素濃度の違いを区別できる。

5. おわりに

本稿では、走査透過電子顕微鏡を用いた電子波の位相を再

生する手法・装置について述べ、グラファイトを試料に用いた原理検証の結果及びイメージシミュレーションによる原子計数の可能性について示した。位相再生されたグラファイトは格子像を明瞭に表し、本手法の位相再生法としての有効性を示した。さらに、シミュレーションではそのコントラストが原子番号 Z の 0.6 乗に比例し、各カラム中の原子占有率の計測が可能であることを示した。P-ABF 法は、収差補正 STEM による単なる像観察では得ることができない位相の情報を知ることが可能である。特に本手法では、コントラストの定量化が難しかった結晶中の軽い原子を取り扱うことができるので、それらが重要な役割を果たすリチウム電池や燃料電池などの定量的な解析への応用が期待される。

謝 辞

本研究を行うにあたり、近畿大学工学部の松谷貴臣先生には円環絞りの作製法について、名城大学工学部の児玉哲司先生および株式会社アプコの小粥啓子博士には環状アレイド検出器の開発についてご協力いただきました。ここに感謝申し上げます。装置開発では学術創成研究費 (No. 18GS0211) の支援を受けました。また、本研究の一部は基盤研究 (B) (No. 24360020) 及び文部科学省委託事業ナノ材料科学環境拠点の支援を受け行われました。

文 献

- 1) Shibata, N., Kohno, Y., Findlay, S.D., Sawada, H., Kondo, Y. and Ikuhara, Y.: *J. Electron Microsc.*, **59**, 473–479 (2010)
- 2) Okunishi, E., Ishikawa, I., Sawada, H., Hosokawa, F., Hori, M. and Kondo, Y.: *Microsc. Microanal.*, **15**, 164–165 (2009)
- 3) Findlay, S.D., Saito, T., Shibata, N., Sato, Y., Matsuda, J., Asano, K., Akiba, E., Hirayama, T. and Ikuhara, Y.: *Appl. Phys. Express*, **3**, 116603 (2010)
- 4) Ishikawa, R., Okunishi, E., Sawada, H., Kondo, Y., Hosokawa, F. and Abe, E.: *Nat. Mat.*, **10**, 278–281 (2011)
- 5) Pennycook, T.J., Lupini, A.R., Yang, H., Murfitt, M.F., Jones, L. and Nellist, P.D.: *Ultramicroscopy*, **151**, 160–167 (2015)
- 6) Lichte, H., Formanek, P., Lenk, A., Linck, M., Matzeck, C., Lehmann, M. and Simon, P.: *Annu. Rev. Mater. Res.*, **37**, 539–588 (2007)
- 7) Cowley, J.M.: *Appl. Phys. Lett.*, **15**, 58 (1969)
- 8) Zeitler, E. and Thomson, M.G.R.: *Optik*, **31**, 258–280 (1970)
- 9) Kirkland, A.I. and Meyer, R.R.: *Microsc. Microanal.*, **10**, 401–413 (2004)
- 10) Nomaguchi, T., Kawasaki, T., Kimura, Y. and Takai, Y.: *J. Electron Microsc.*, **53**, 403–406 (2004)
- 11) Yamasaki, J., Kawai, T. and Tanaka, N.: *J. Electron Microsc.*, **54**, 209–214 (2005)
- 12) 生田 孝：応用物理, **71**, 389–400 (2002)
- 13) Ikuta, T.: Proceedings of the Fourth International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices, Hawaii, 627–632 (2003)
- 14) Ishida, T., Kawasaki, T., Tanji, T., Kodama, T., Matsutani, T., Ogai, K. and Ikuta, T.: *Microscopy*, **64**, 69–76 (2015)
- 15) Ishida, T., Kawasaki, T., Tanji, T. and Ikuta, T.: *Microscopy*, **64**, 121–128 (2015)
- 16) Kirkland, E.J.: *Advanced computing in electron microscopy*, Springer (2010)
- 17) Findlay, S.D., Shibata, N., Sawada, H., Okunishi, E., Kondo, Y. and Ikuhara, Y.: *Ultramicroscopy*, **110**, 903–923 (2010)
- 18) Kawasaki, T., Matsutani, T., Ikuta, T., Ichihashi, M. and Tanji, T.: *Ultramicroscopy*, **110**, 1332–1337 (2010)