

# 透過電子顕微鏡の基礎

- 構造・組織解析の手段として -

1. TEMの構成
2. レンズ作用と照射系のからくり
3. 電顕における回折現象の特殊性
4. 明視野像と暗視野像
5. 歪みの可視化：動力的理論
6. 位相コントラスト
7. 走査型透過電子顕微鏡

ARIM事業班 今野豊彦

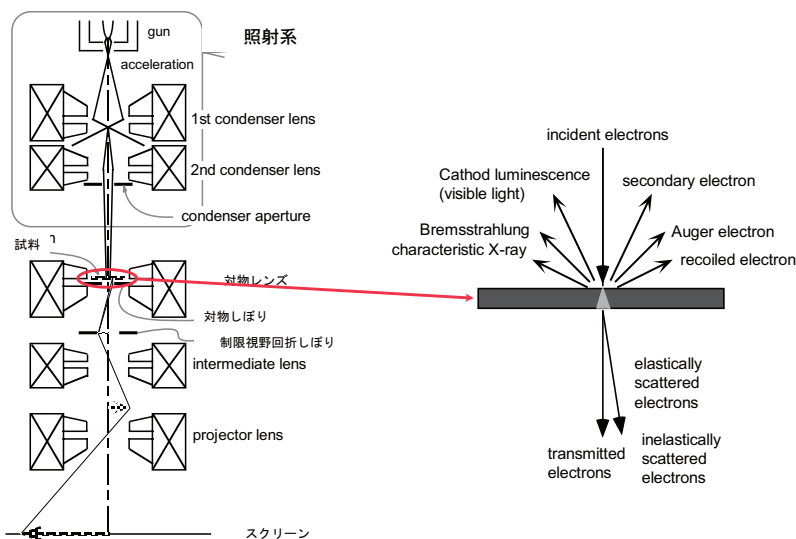
1

# 透過電子顕微鏡の構成



2

## TEMの電子光学系



TEMの基本的な光学系 電子と物質の相互作用  
実際にはたくさんのレンズが組み合わされている

3

## 照射系のポイント



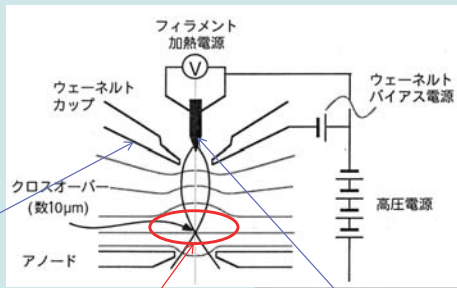
照射系の操作は左側のパネル

各種レンズ、コイル、しぼりの動作を  
光線図で理解できているか？

4

## 電子をどうやって出すか：1 熱電子銃

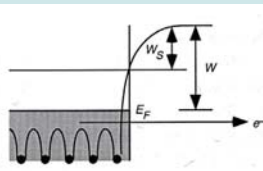
フィラメントを温めて電子を出す



クロスオーバーが実質的な光源となる

ことにより、ある確率を持って固体の外に出てくる。このときの電流密度  $j$  は次式で与えられる。これを Richardson-Dushman の式という。

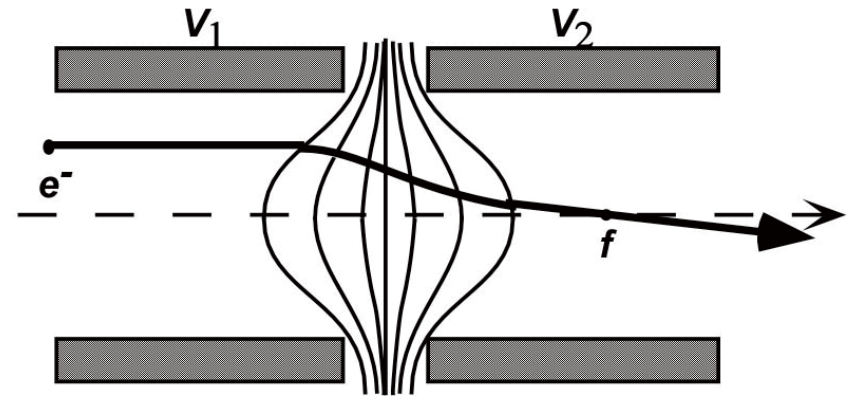
$$j = ev = \frac{em(kT)^2}{2\pi h^3} \exp\left(-\frac{W}{kT}\right) \quad (2.45)$$



その後、加速する (20万ボルト)



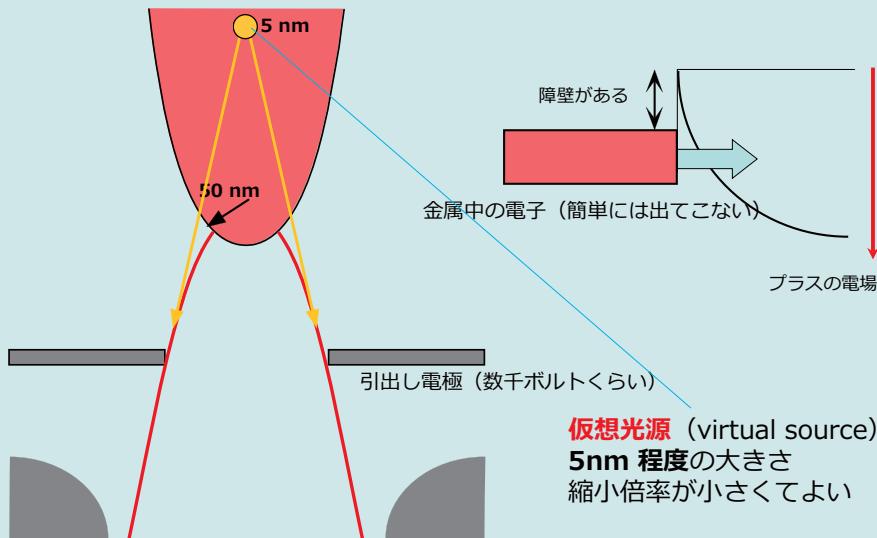
## 電界レンズ



クロスオーバーまでは電界によるレンズ作用

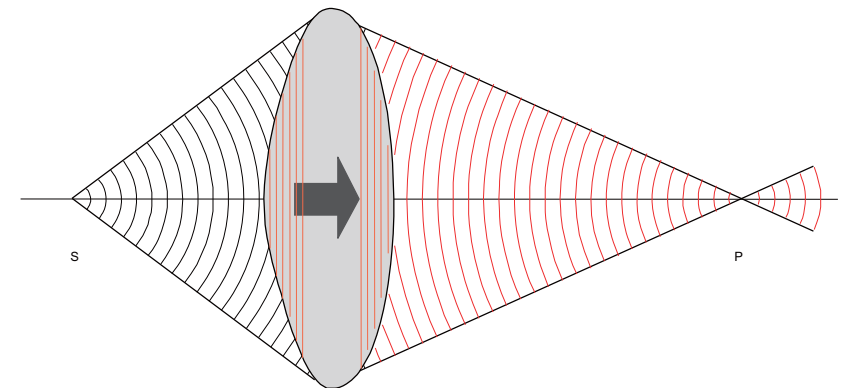
## 電子をどうやって出すか：2 電界放射型電子銃

プラスの高い電圧で「ひっぱりだす」



さらに電圧をかけて (1000 - 20万ボルトくらい) 加速する

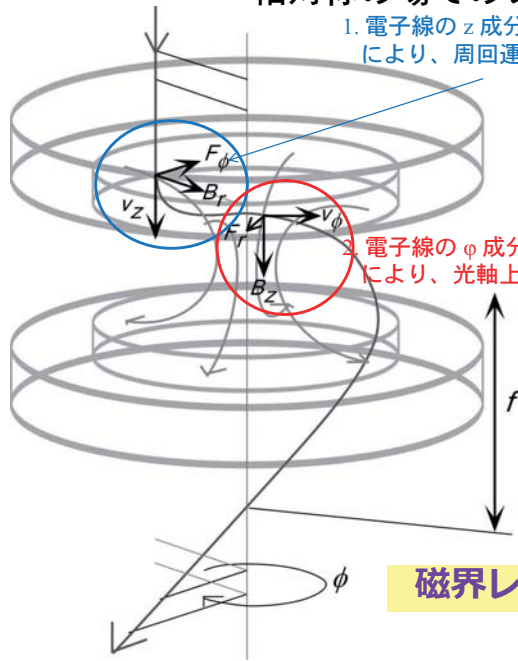
光に対するレンズ作用：屈折率の相違を利用！  
(レンズの中では波長が短くなるということ)



それもそうだが、結局、レンズ作用を起こすには  
→ 光線の軌道を曲げられればよい

## 軸対称の場でのレンズ作用

1. 電子線の  $z$  成分がコイルの  $r$  成分によるローレンツ力により、周回運動を始める ( $\phi$  成分)

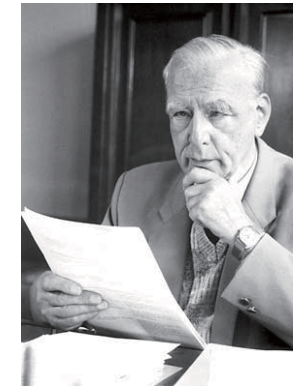


2. 電子線の  $\phi$  成分がコイルの  $z$  成分によるローレンツ力により、光軸上に向かう ( $r$  成分)

磁界レンズでは像が回転する

9

## 電子顕微鏡の登場



Ernst Ruska (1906-1988)

"for his fundamental work in electron optics, and for the design of the first electron microscope" (Nobel Prize in 1986)

10

## 基本的には電磁場で軌道を曲げる

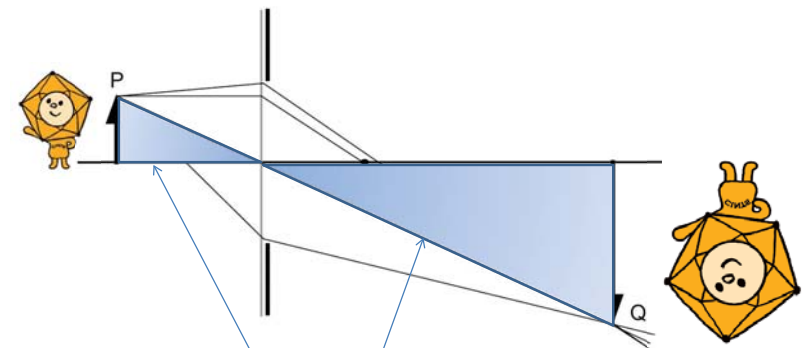
- (1) レンズ作用 (電子線を光軸に向かって曲げる)  
→ 凸レンズと考える
- (2) 偏光コイル  
→ 走る電子に対するローレンツ力と考える

以下、レンズ作用は光に対するレンズで考える  
(幾何光学と波動光学)

11

小学生向けセミナーより

## レンズがあると

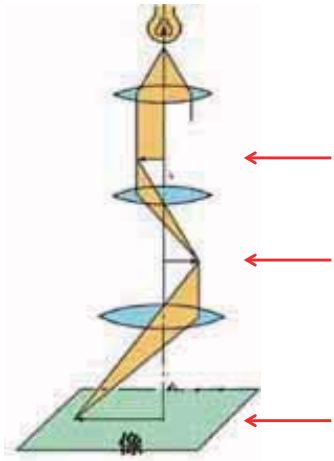


大きくうつせる!

光学レンズによる倍率：単純な三角形の相似で表される

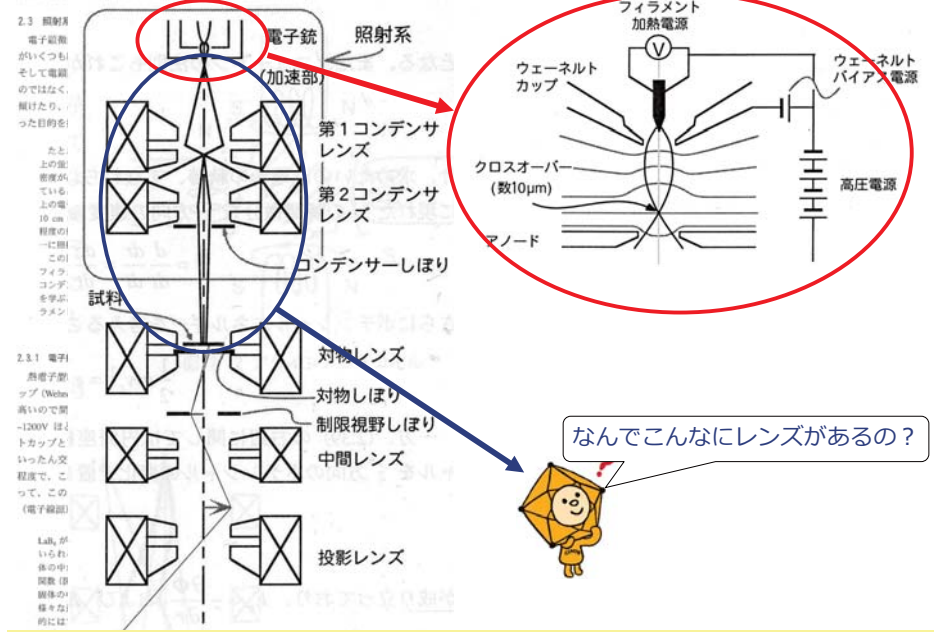
12

# ひかりをつかったけんびきょう

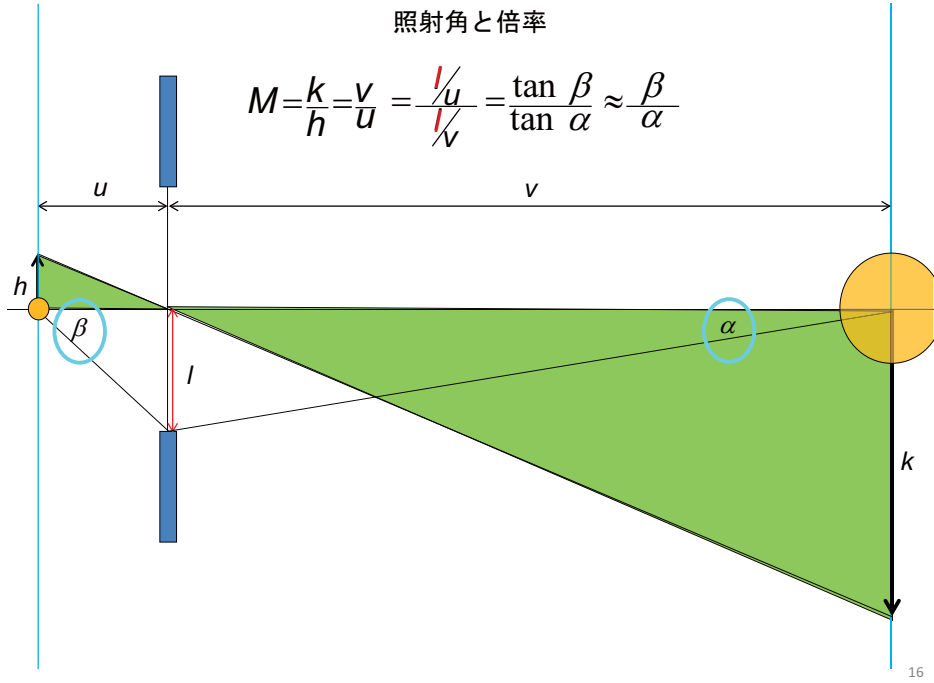
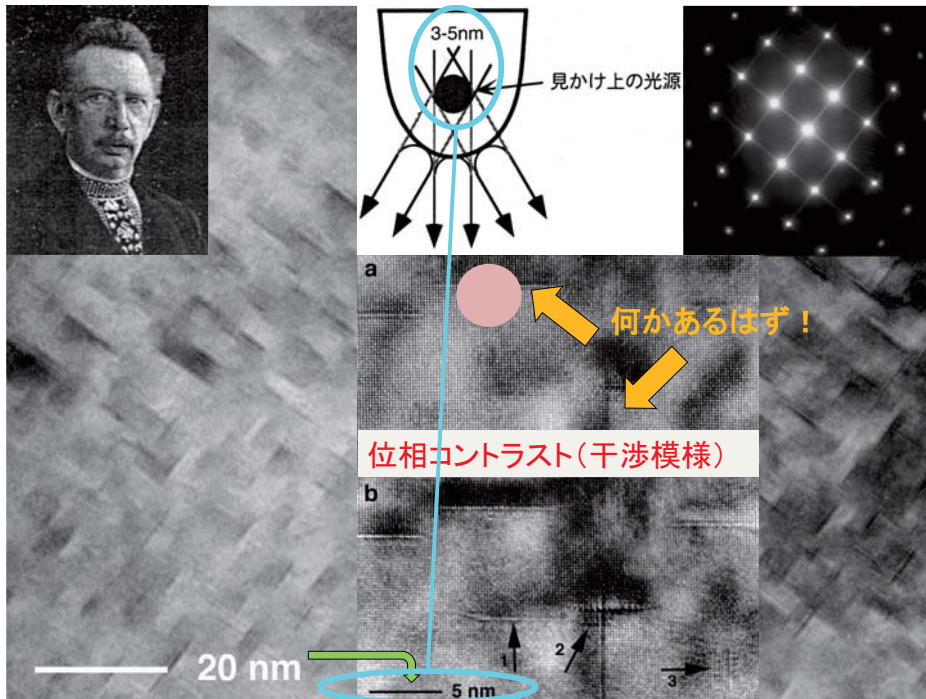


# 光学顕微鏡(こうがくけんびきょう)

共役な位置：複数のレンズは等価な位置を繰り返し結像する

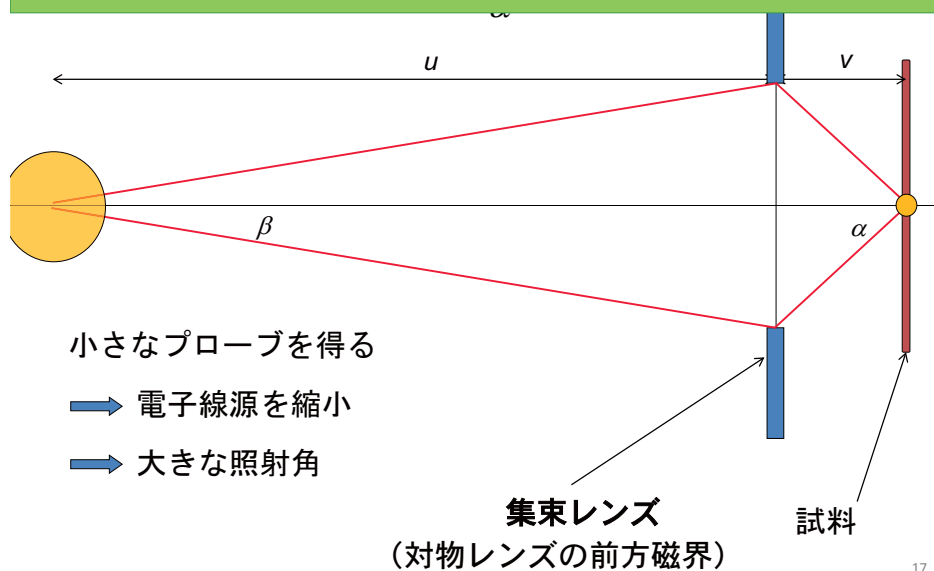


2段コンデンサレンズ (スポットサイズとブライツネス) の意味



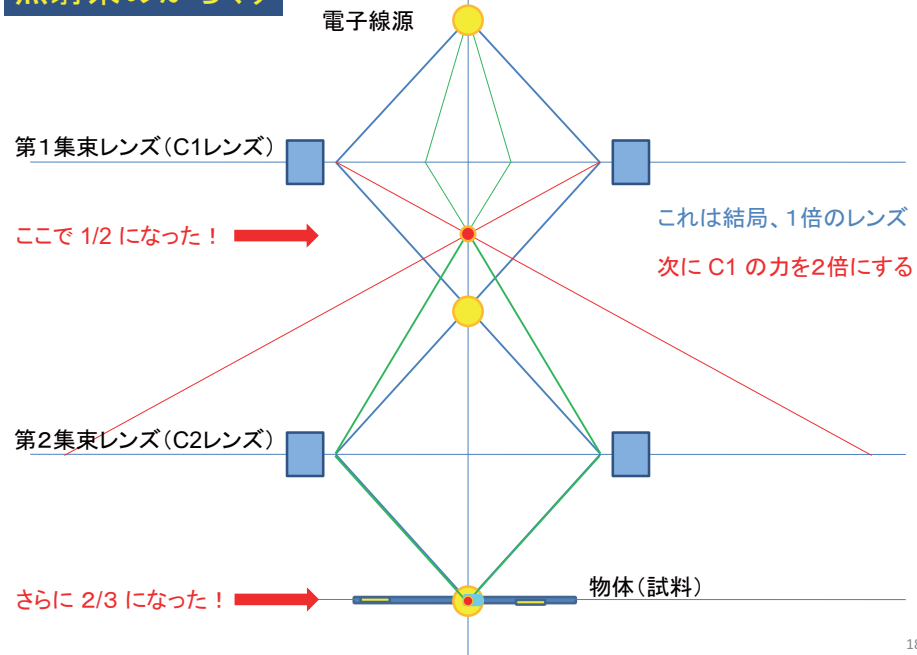


小さなプローブを得る（電子線源を縮小する）  
 ということは照射角を大きくするという事。

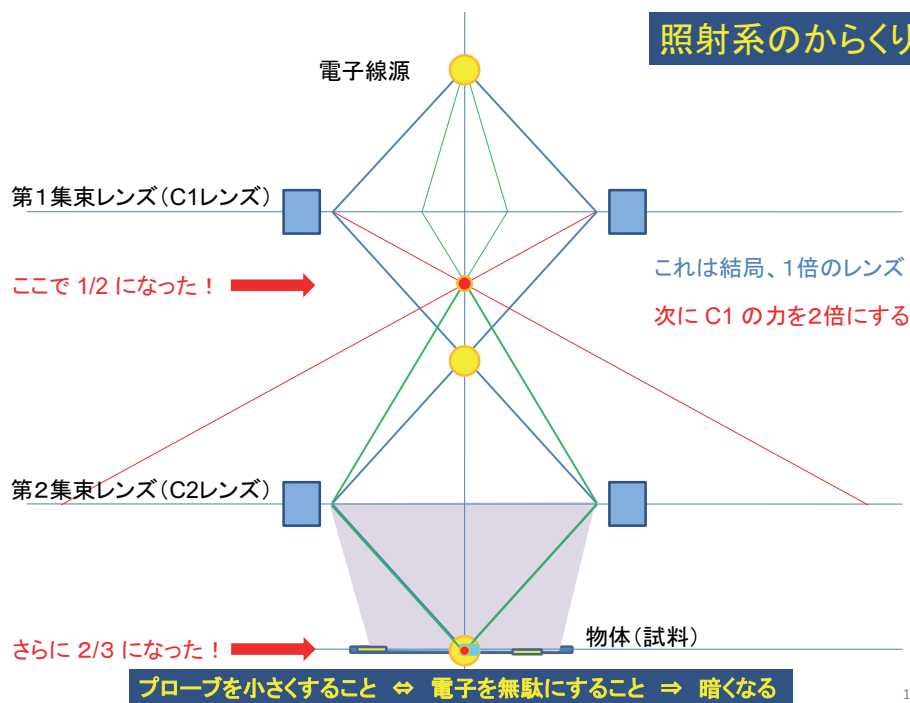


照射系のからくり

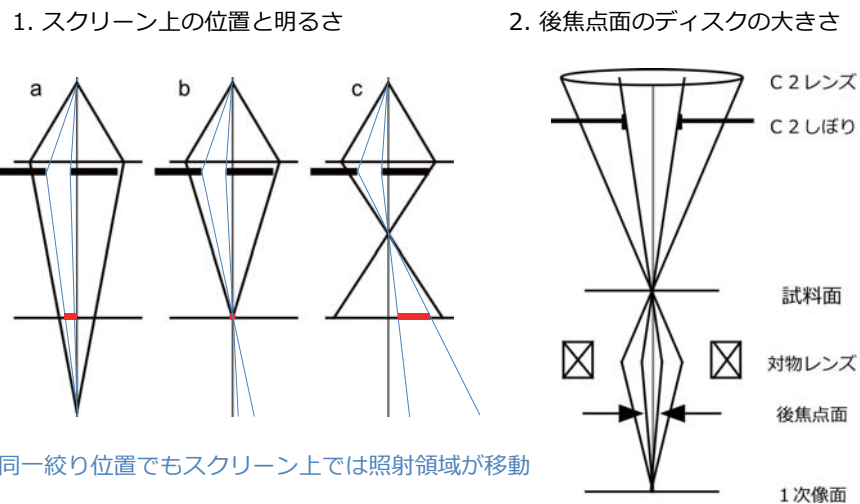
スポットサイズとは何か？



照射系のからくり



照射系：しぼりの意味



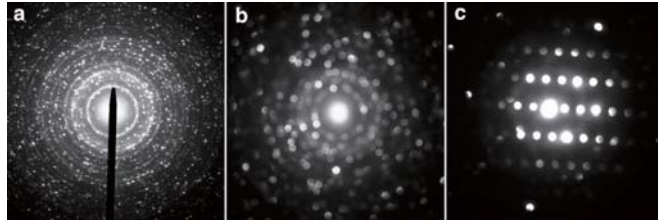
同一絞り位置でもスクリーン上では照射領域が移動

照射系の絞りの中心は光軸上にあるべき

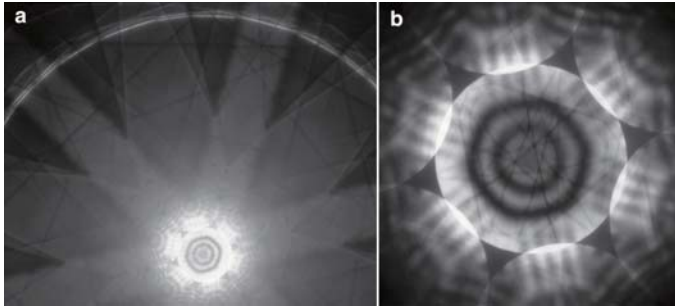
そのときコンデンサレンズの励磁を  
 変えると同心円状に変化

照射系の絞り位置は後焦点面と共役

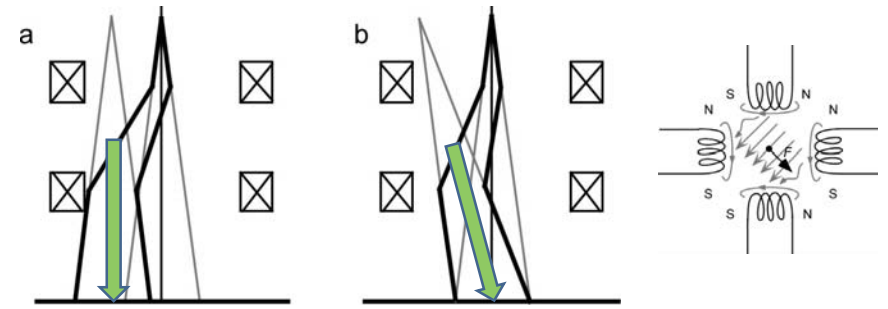
### ビームを絞ることによる回折パターンの変化



### CBED : 集束電子線回折



### ビームシフトとビームティルト



物理的には二組の同じ四重極コイルの電流値を変えているだけ



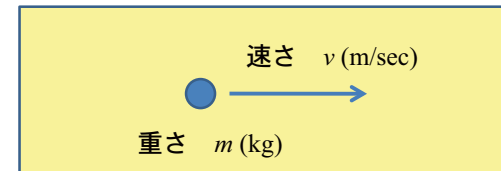
ヒステリシスがあり、現実にはティルトを変えるとビームがずれる場合もある



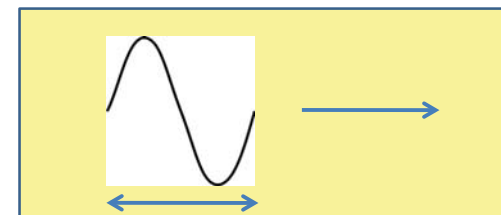
軸上暗視野の設定後、照射領域がずれていないか要確認！

## 回折現象

### ドゥブロイ波: すべての物質は波である



$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} \sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}$$

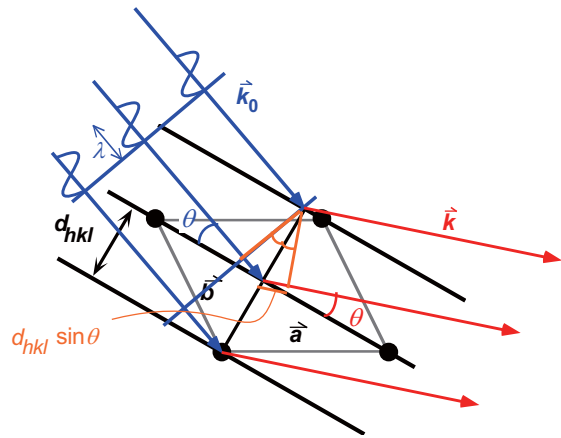


Louis de Broglie (1892-1987)

$c$ : 光の速さ  
 $3.00 \times 10^8$  m/sec  
 $h$ : プランク定数  
 $6.626 \times 10^{-34}$  J·sec

走る電子も波の性質を持っている！

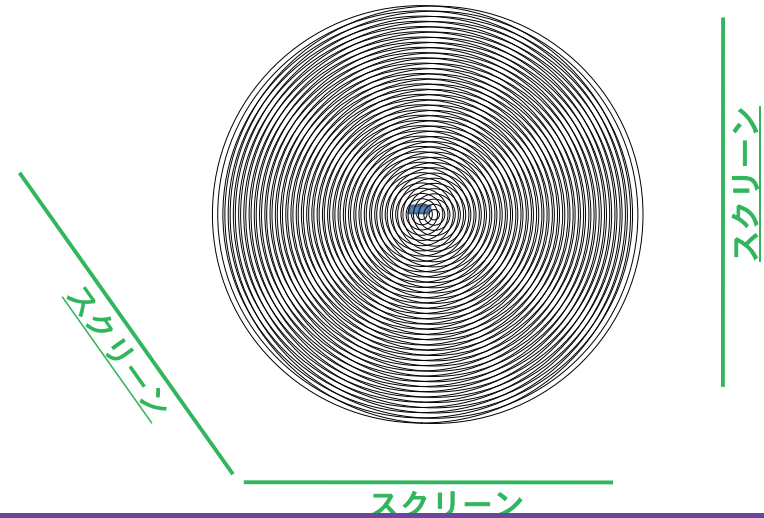
## Bragg 条件



$$\lambda = 2d \sin \theta$$

25

干渉模様のパターンの特徴  
パターンの間隔と出現する方向（スクリーンの位置）に注意



強いピーク位置は原子の間隔に反比例（間隔がわかる）

## 回折：要するに波の干渉

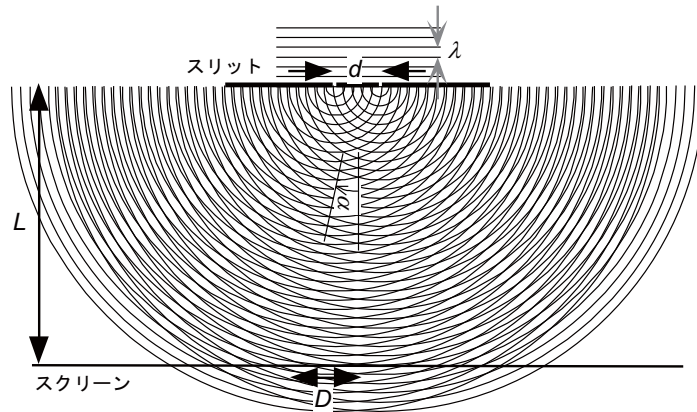


図 1 スリットを通過する波による干渉

$$D \propto \frac{\lambda L}{d} \left( \rightarrow D \propto \frac{\lambda L}{d/2} \rightarrow \lambda \propto 2d \frac{D}{L} \rightarrow \lambda \propto 2d \sin \theta \right)$$

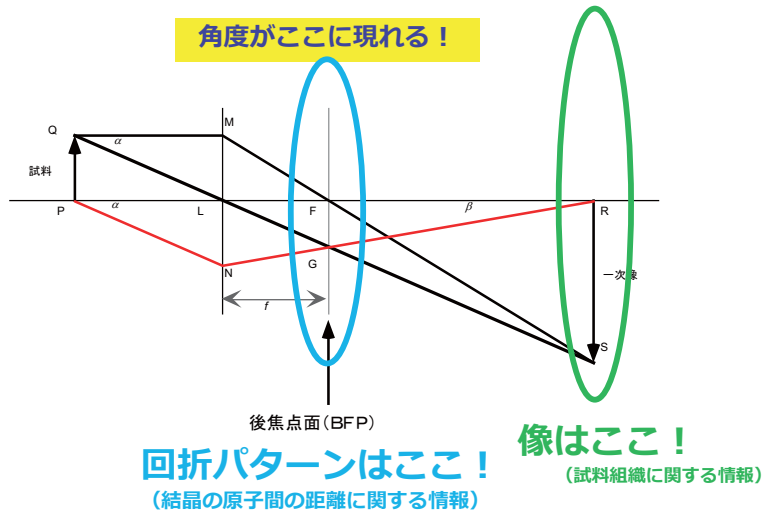
27

## TEM の DIFF の要点

回折現象を電子顕微鏡の光学系で理解  
できているか？

28

# 電子顕微鏡では（レンズがあるので） 回折パターンと像の両方を観れる！

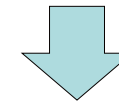


レンズの後ろの回折パターンが現れる位置を後焦点面という 29

レンズを用いて回折パターンを BFP に投影しているので、

- ・ 対物レンズの励磁
- ・ 試料の位置（高さ）

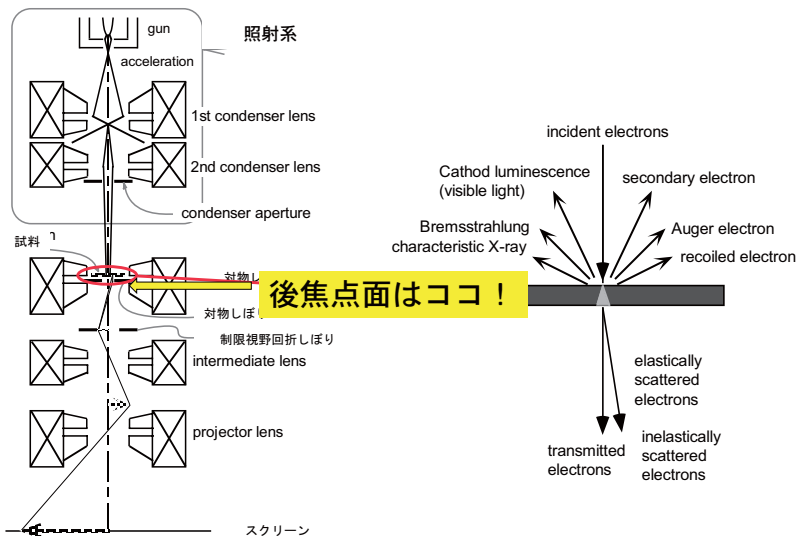
は毎回、一定でなくてはならない



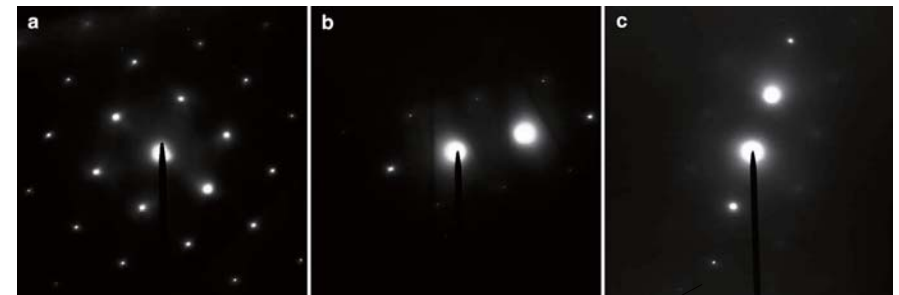
観察前に次の2点を必ず確認してください

- ・ **スタンダードフォーカスボタン**を押す  
もしくは、対物レンズの標準電圧値に手動で調節する
- ・ そのうえで**試料高さ**を合わせる  
(ミニマムコントラストとなるように  $z$  を調整)

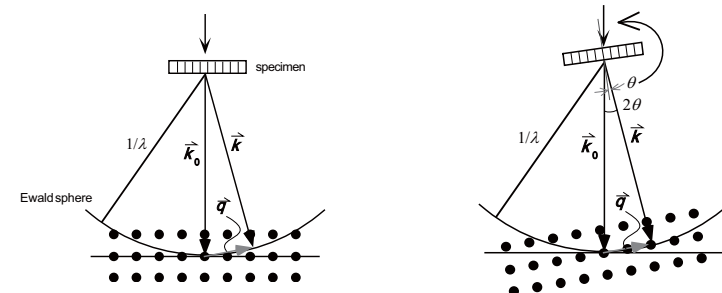
## 照射系と対物系の組み合わせ



回折パターンの理解にも照射系の知識が活きる！



Bragg condition

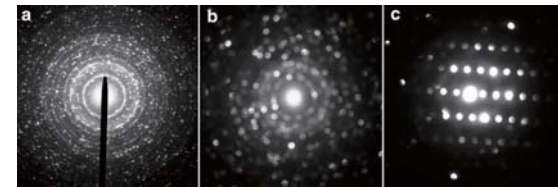
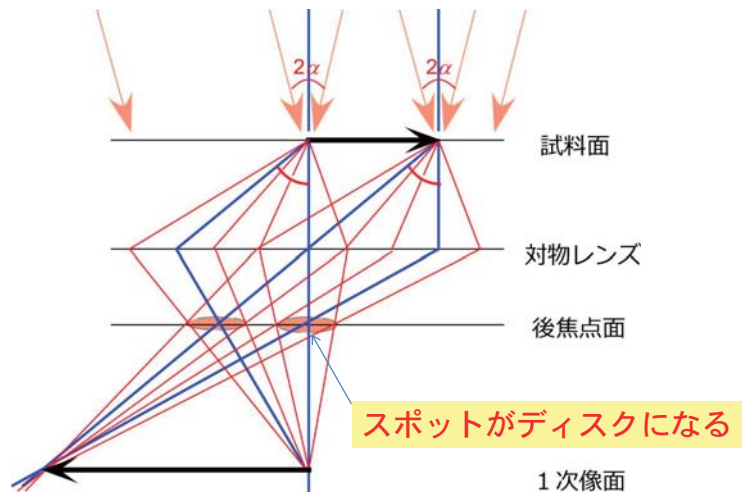




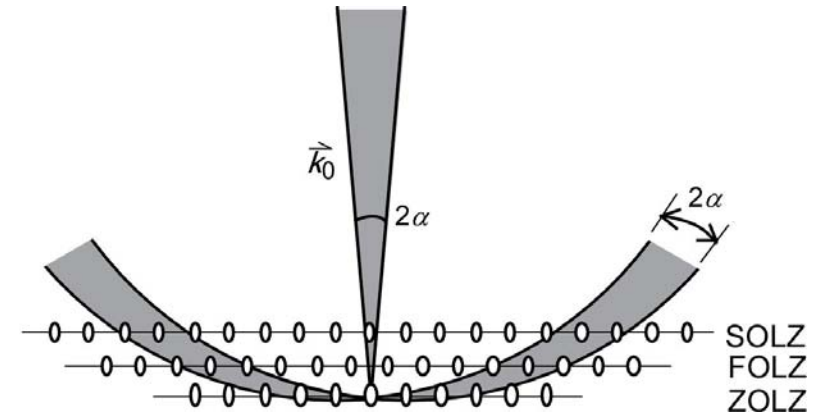
# ここまでは理想的な光学系 (gaussian optics) の話



電顕では試料に対して**ビームを自由に集束でき、かつ傾斜**できる

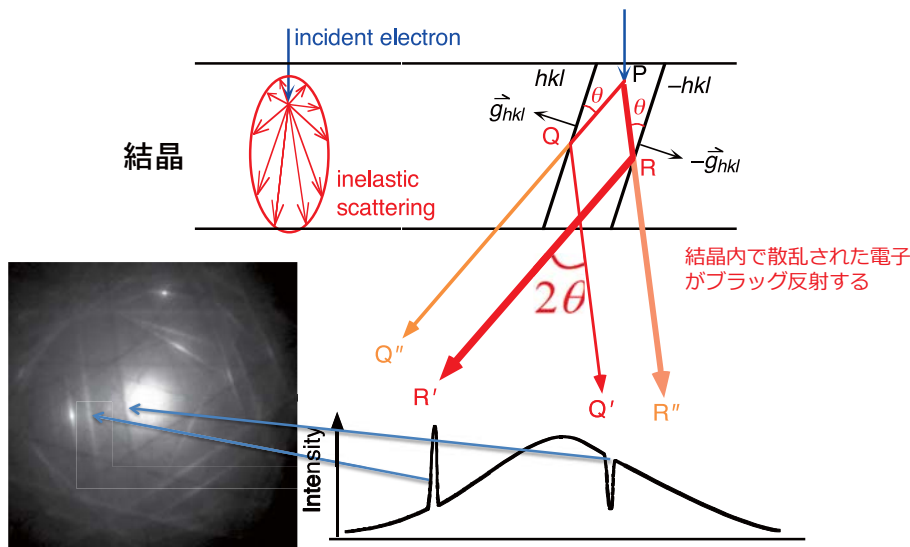


ディスクになるだけでなく、**回折波の積分強度も増える**



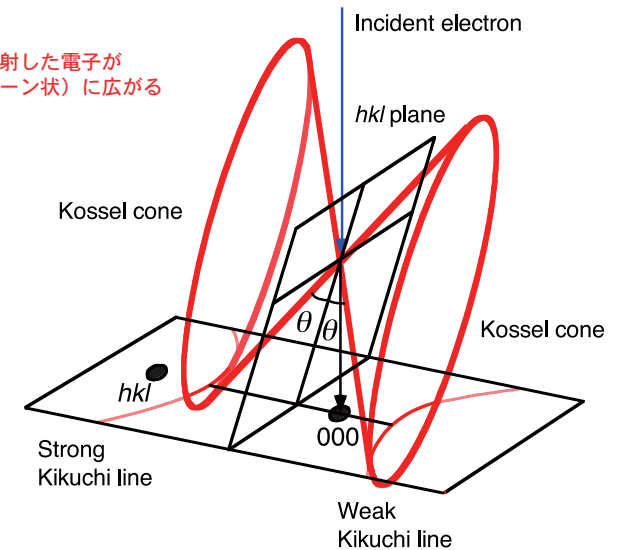
結晶方位を観る：非弾性散乱した波の回折現象

## Kikuchi 線と Kikuchi バンド

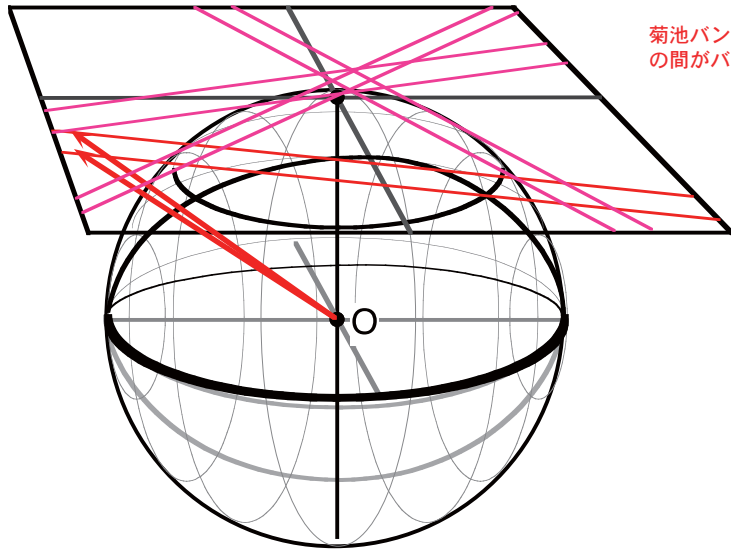


## 菊池線とコッセルコーン

ブラッグ反射した電子が円錐状 (コーン状) に広がる



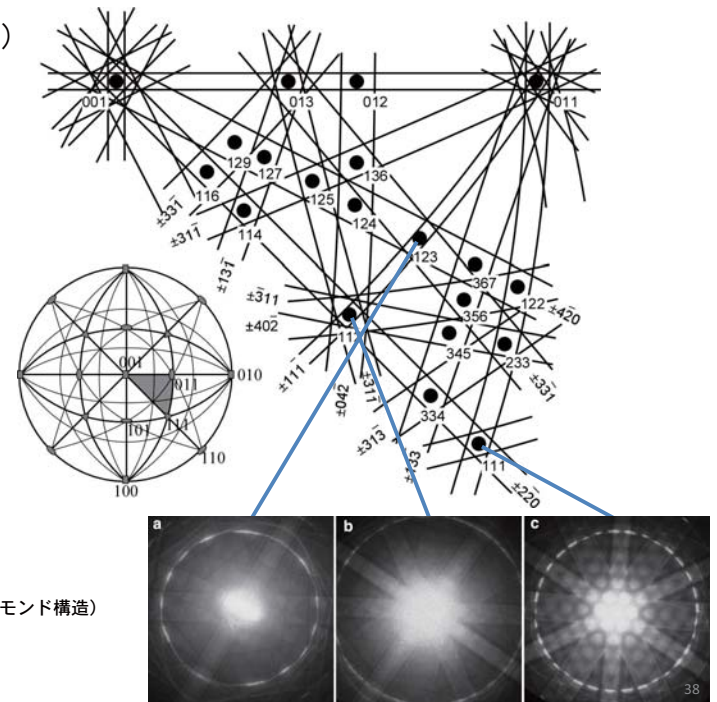
## 菊池バンドを投影する



菊池バンド：コーン状の領域の間がバンドのように見える

37

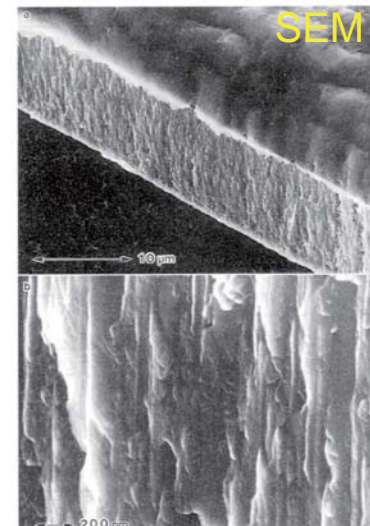
## Kikuchi Map (fcc)



菊池パターン（ダイヤモンド構造）

ケーススタディ：Fe-Cr-N磁性薄膜における垂直磁気異方性の起源

## Fe-Cr-N 薄膜の磁性と構造



## Fe-Cr-N スパッタ薄膜の構造

### X線回折パターン

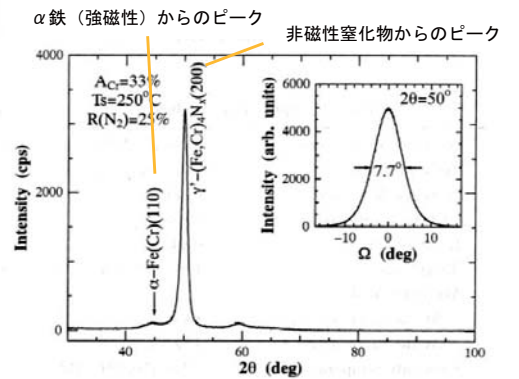


Fig. P X線回折からは磁性体の鉄が非磁性の窒化物が存在していることが判明！

薄い試料を割って SEM で観察すると柱状に鉄とクロムと窒素の化合物が成長していることがわかる

39

40

# Fe-Cr-N スパッタ薄膜の磁化曲線

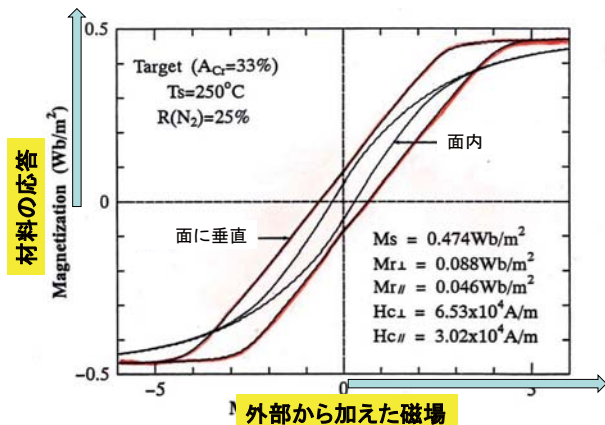
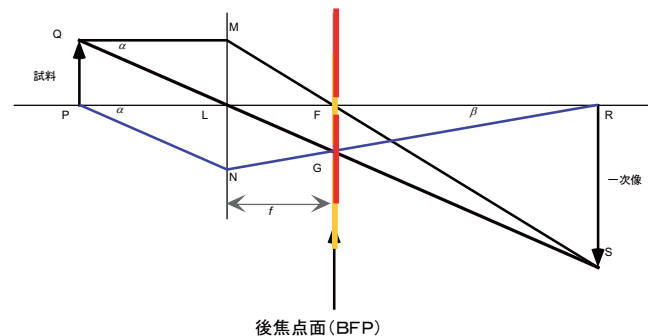


Fig. 1. Magnetization curves at room temperature in magnetic fields parallel and perpendicular to Fe<sub>71</sub>Cr<sub>20</sub>N<sub>9</sub> film planes.

D.L. Peng, T.J. Konno, K. Sumiyama, H. Onodera, K. Suzuki  
J.Magn.Magn.Mater. 172 41-52 (1997)

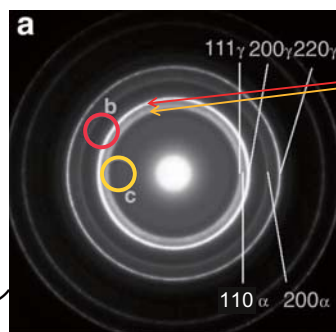
**試料面に垂直方向に対して保持力が高い!**

# 明視野像と暗視野像



着目している種類の結晶からの回折波のみを用いて結像できる → 異なった結晶を分けて観れる。

暗視野



二つ回折リングが接近している

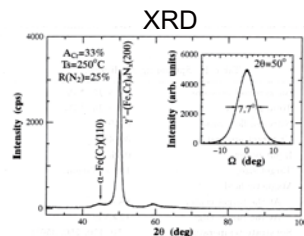
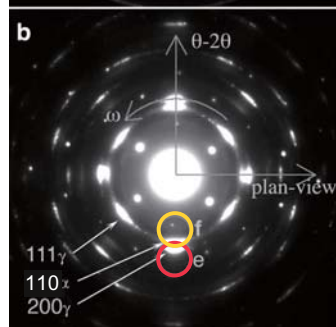
ビームを絞ってはならない

∴ ディスクとなってしまう、隣の絞りに電子がはいってしまう

二つの相を区別できない

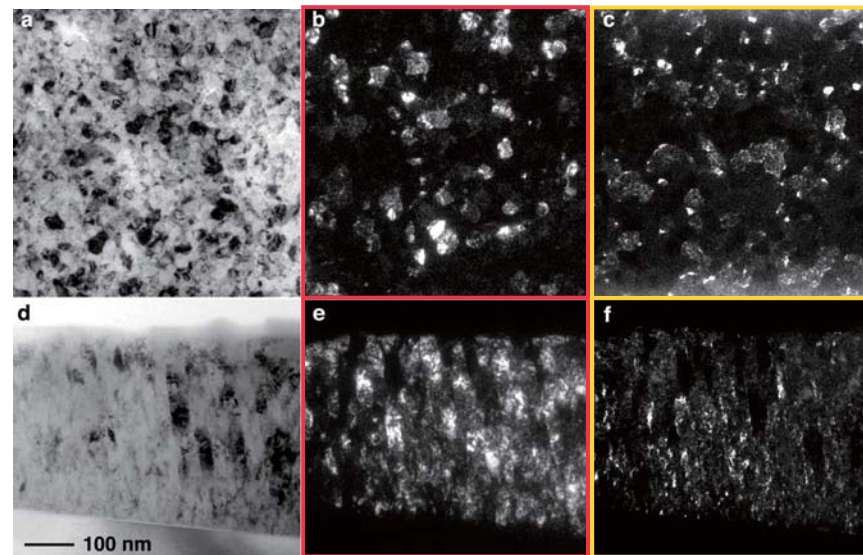
試料を上から見たときの干渉パターン

横から



後焦点面 (回折パターン) に絞りをいれて、結像に寄与する電子を選択する

# 明視野像と暗視野像



明視野像

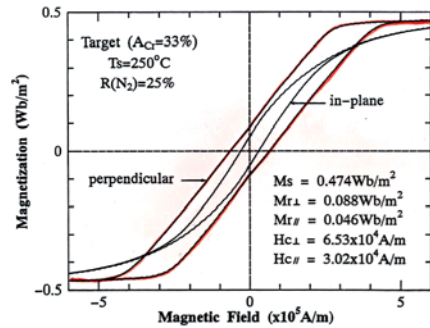
暗視野像  
(非磁性窒化物の分布状態)

暗視野像  
(α鉄 (強磁性) の分布状態)

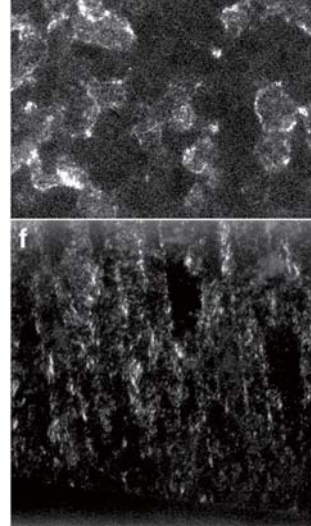


## 磁性を持つ鉄が結晶粒の隙間に細く成長していることがわかる

暗視野像の威力！



垂直磁気異方性の原因は非磁性の Fe<sub>4</sub>Nの粒界に存在する Fe相にあった



形状磁気異方性 > 結晶磁気異方性

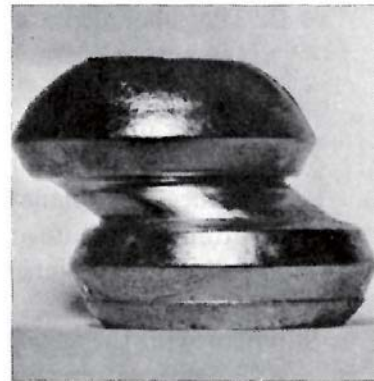
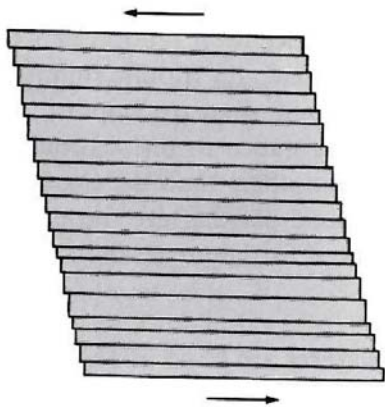
45

## 歪みの可視化

それでは結晶の局所的乱れ（格子欠陥）は観れるのか？  
（同一種類の元素なので特性X線はダメ）

46

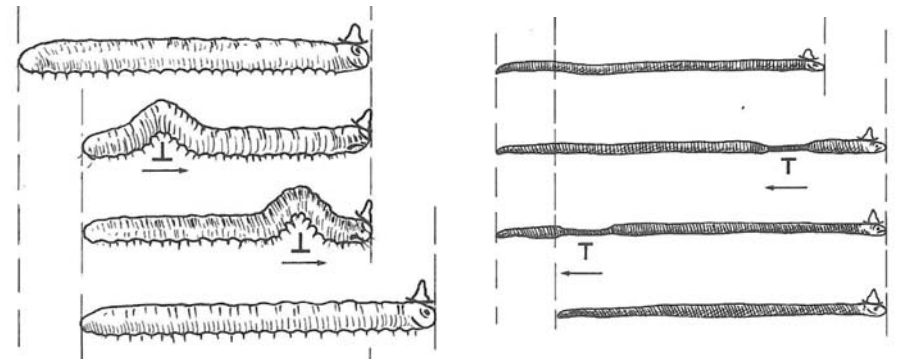
## 結晶の変形



せん断応力に対し、ずれるように変形する

47

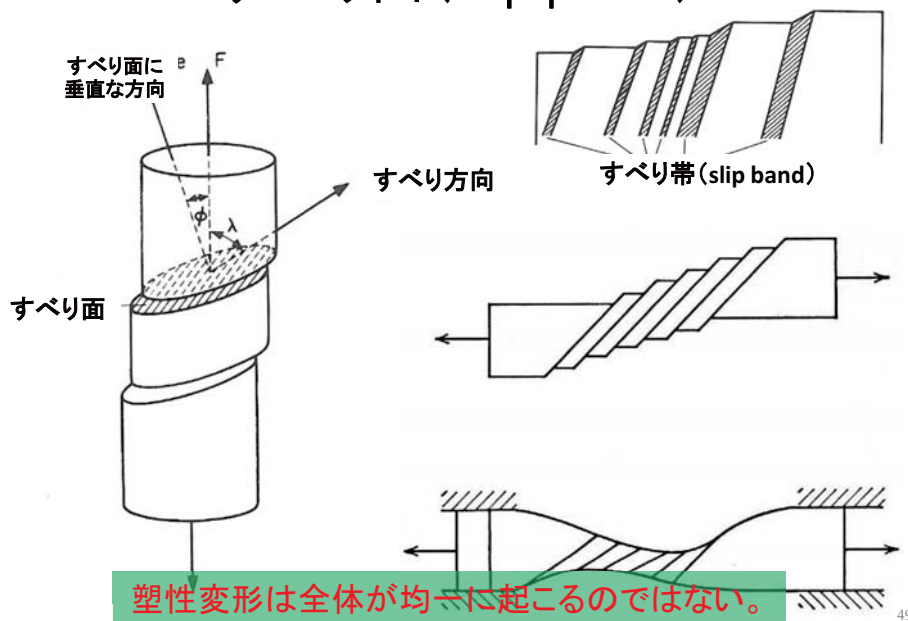
## 転位 (dislocation)



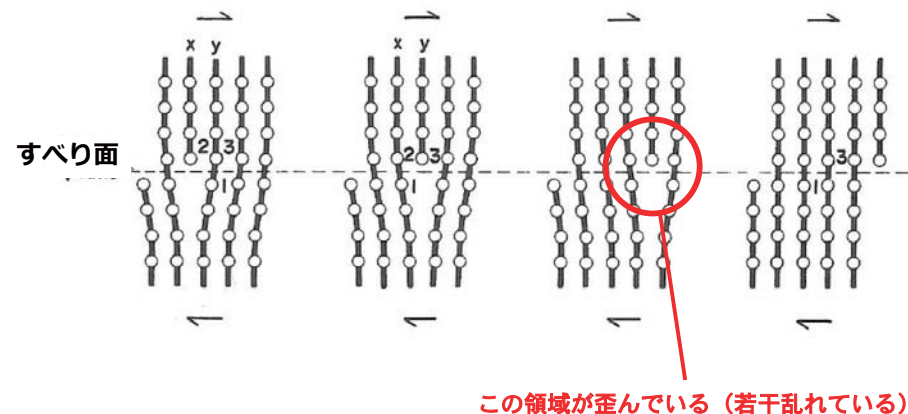
局所的な変形領域が移動することによって、全体として変形する



# すべり面 (slip plane)



# 転位の動き (刃状転位) と変形



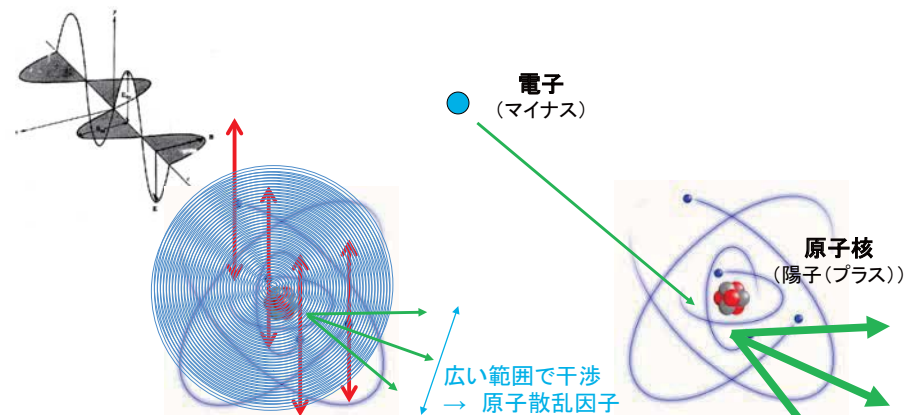
電子顕微鏡やエックス線を用いると局所的な原子配列の乱れを検出できる。(動力学的効果)

## 動力学的理論

そもそもエックス線や電子が原子にあるとどうなるか？

エックス線の場合

電子線の場合

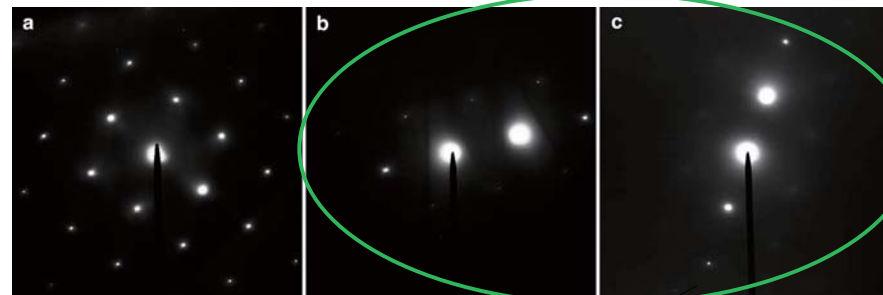
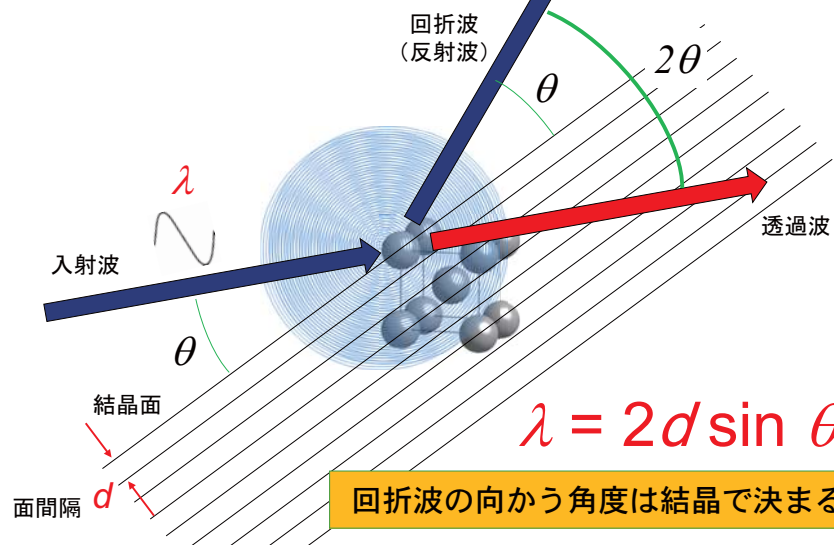


電子が一斉にゆれ、波を発生する

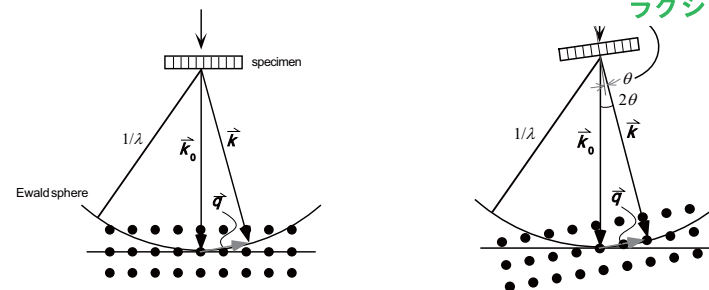
原子核の引力(ポテンシャル)で次の状態に遷移する(方向が変わる)

電子線はエックス線より (1000倍くらい) 強く散乱される → 薄い試料で回折が起こる

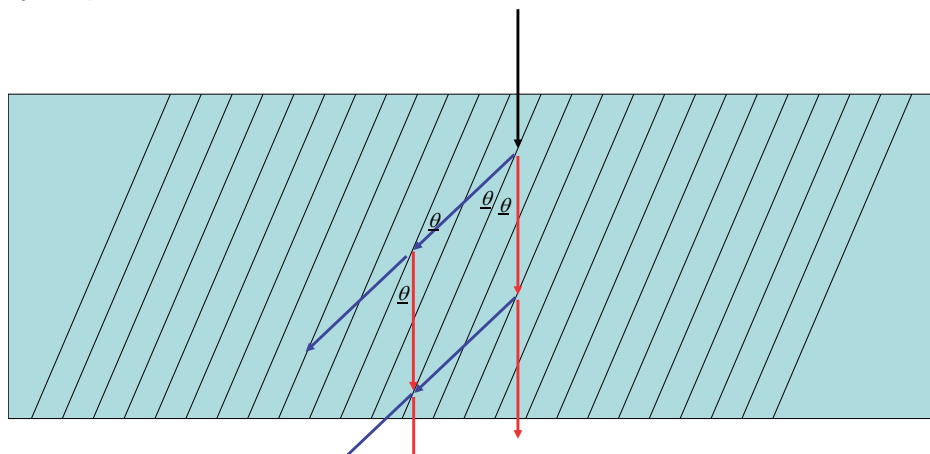
# 散乱をただの反射と考える



Bragg 動学的効果を利用するときには用いられるディフラクションパターン

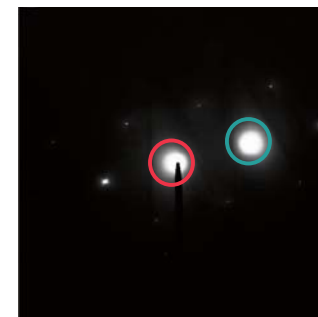
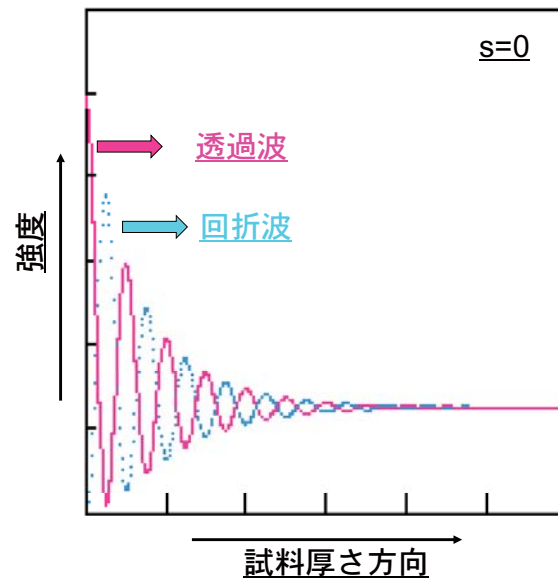


## 多重散乱

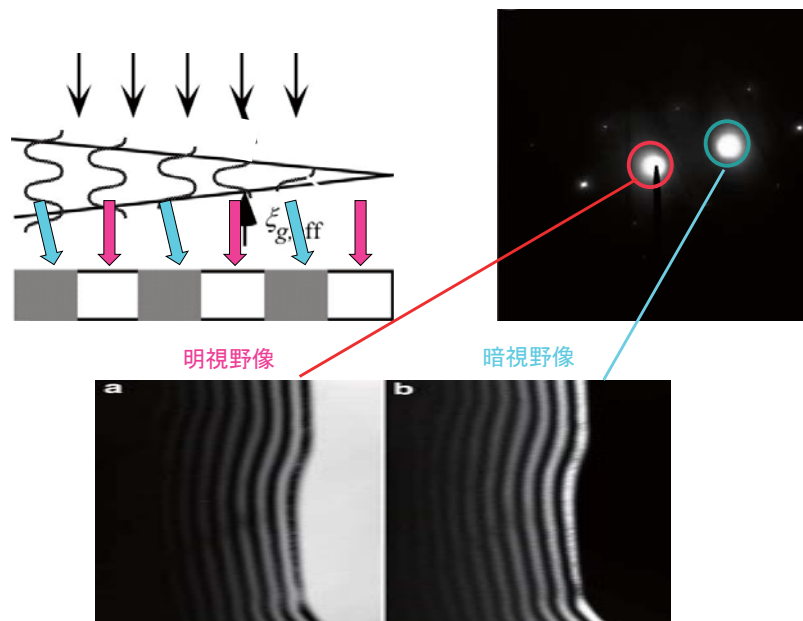


動学的効果：透過波と回折波が結晶面を媒介として行ったり来たりする。(二波条件)

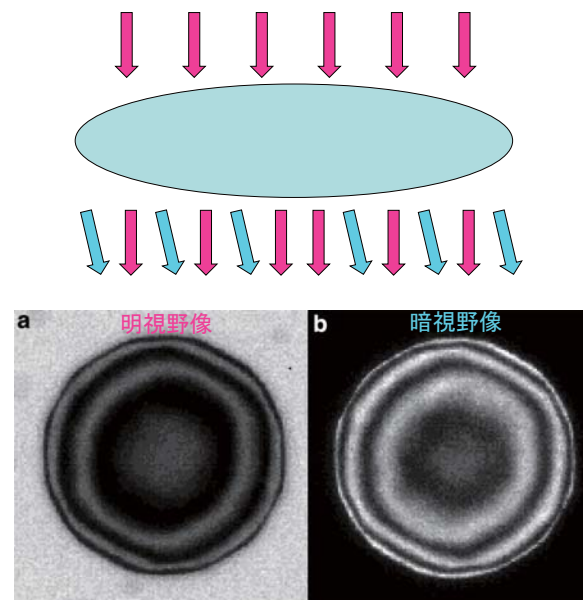
## 動力学効果：二つの波が行ったり来たり (二波条件)



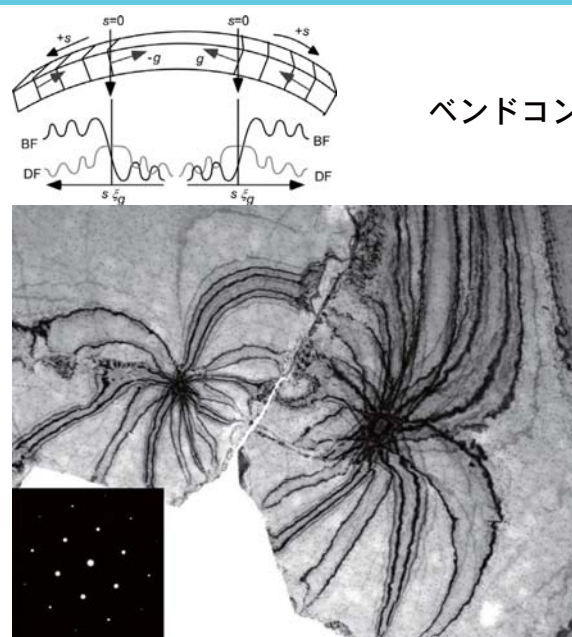
たとえば試料がくさび形だと。。



まるい粒子だと。。

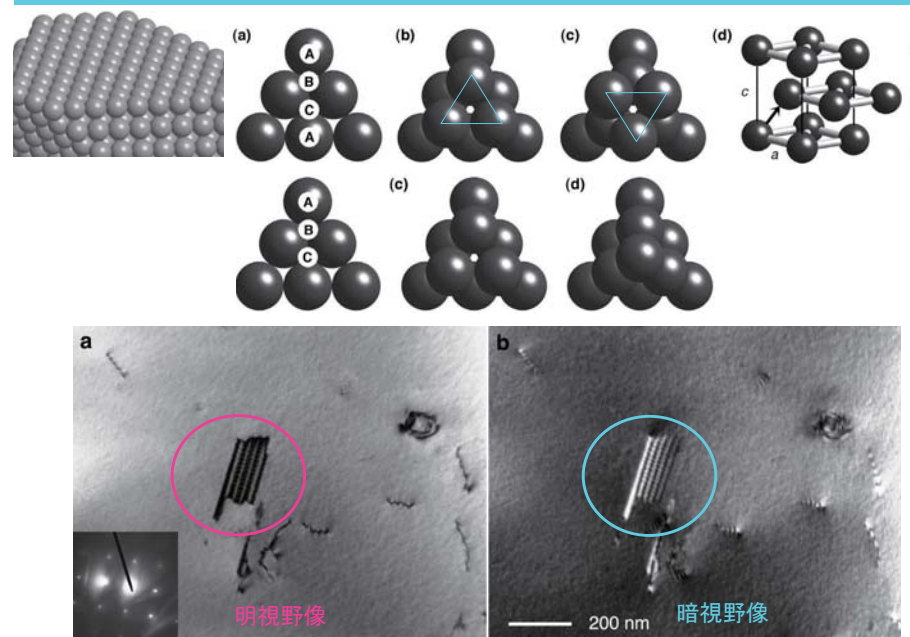


実際の試料は曲がっているので、こんな風に見えたりする。。

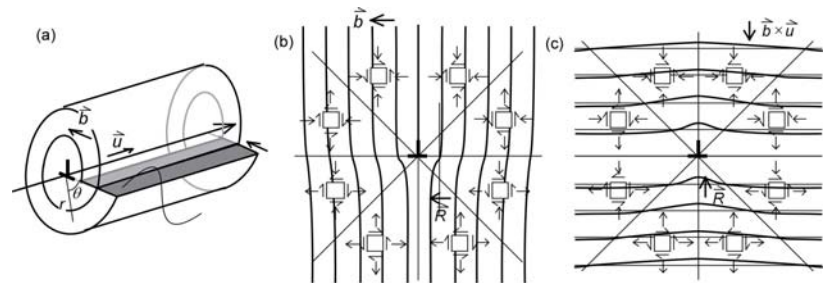
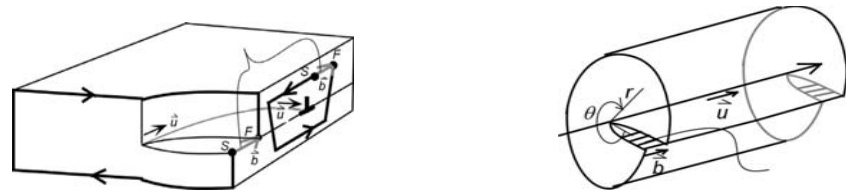


バンドコントー

実際の材料は欠陥だらけ。。

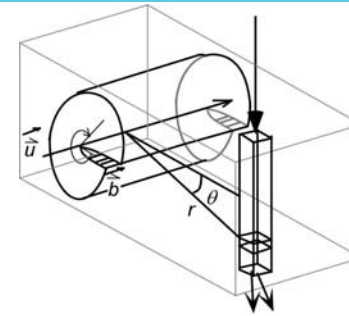


実際の材料は欠陥だらけ。。。 その2

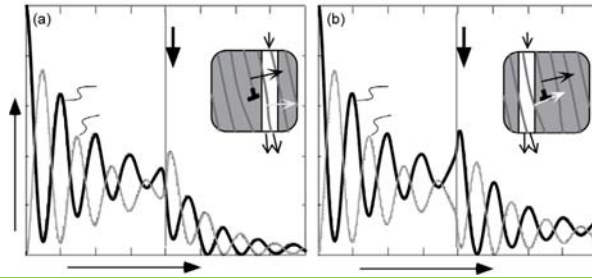


転位があると周囲はひずむ

ひずみ場を観てみよう！

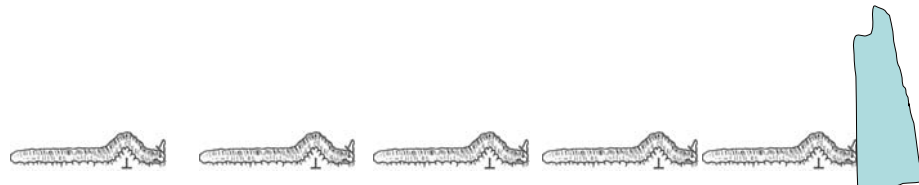
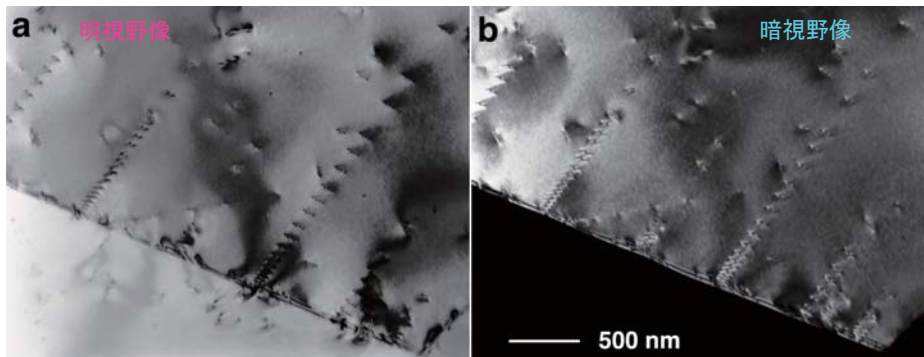


ひずみのまわりで電子線はどうやって通るの？



ひずみがあると透過波と回折波のやりとりが乱される！

ひずみ場を観てみよう！



結晶粒界で転位はとまってしまう(材料は変形しない)！



像の正しい解釈には結像原理を知る必要がある。

ステンレス鋼中の転位の観察 (結晶粒界で変形が止まっている)  
(転位の周囲の歪みを可視化している)



軽量高強度材料の開発

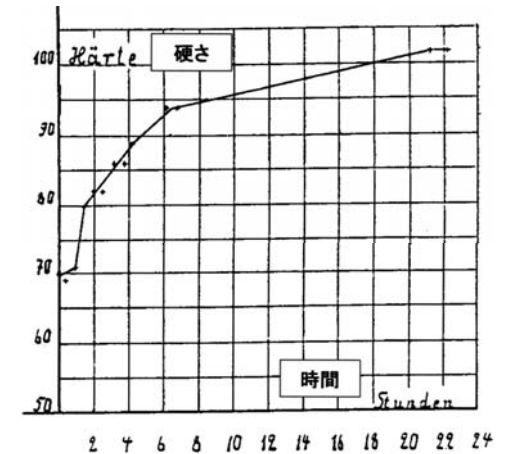


ナノスケールでの現象：  
サブナノ～ナノオーダーの化合物が母相に析出することにより材料の強度を確保

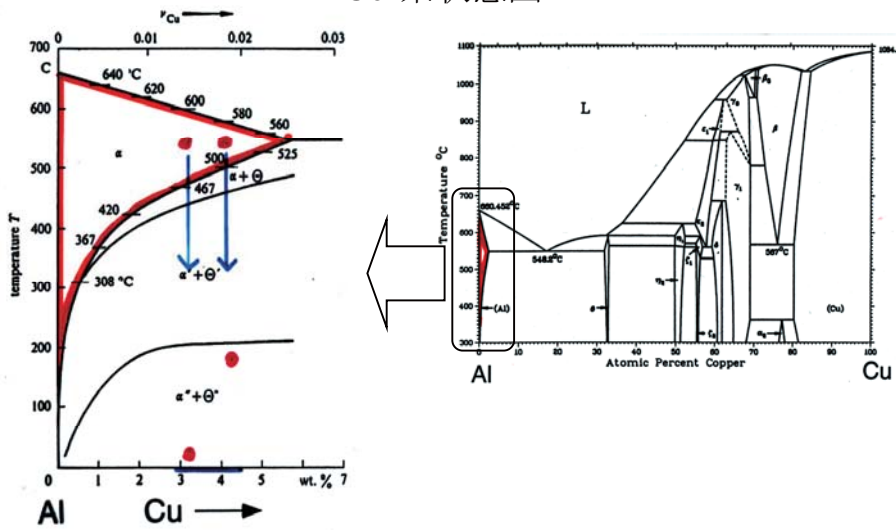


析出相を同定し、その析出相の構造と分散状態を制御することが重要

Alfred Wilm (1869–1937)



Al-Cu 系状態図



状態図：どのような構造（原子の並び方）が組成と温度に対して安定に存在する領域を示す地図

Letters to the Editor

The Editor does not hold himself responsible for opinions expressed by his correspondents. He cannot undertake to return, or to correspond with the authors of, replies necessarily intended for this or any other part of NATURE. He notices to be taken of anonymous communications. NOTES OF POWER IN SOME OF THESE WEEK'S LETTERS APPEAR ON P. 578. CORRESPONDENTS ARE INVITED TO ATTACH SIMILAR HEADINGS TO THEIR COMMUNICATIONS.

**Effect of Increasing Dose of X-Radiation on Colloidal Gold.**  
Some time ago, in a communication from this Department, it was shown that a steadily increasing exposure to X-radiation produced alternate increases and decreases in the electrokinetic potential of certain solid particles. The colloid used at the time (a dilution of 'Aquagel' in water) is peculiarly liable, and at no stage were there any signs of coagulation. It was thought possible that with a more sensitive colloid the decrease in potential at the minima of the curve might be sufficient to bring the solid to its flocculation point, and as my suggestion Dr. Lieberman and Mr. Jones have been working with certain pure gold sols.

After irradiation in a quartz dish by measured doses of X-radiation, the specimens of the sol were twice the amount leaves the sol apparently unaffected. A further feature of interest is the very small quantity of radiation required to produce the effect. It is hoped to publish further details of the measurements shortly.

**Structure of Age-Hardened Aluminium-Copper Alloys.**  
We have made X-ray diagrams of aluminium-copper alloys (5 per cent Cu) age-hardened at various temperatures (20°-200° C.); the samples were composed of large crystals, and the radiation was made monochromatic by reflection by a crystal. In a previous paper, we described a new phenomenon which appeared in these diagrams: streaks of various length issuing from the centre, which we attributed to the reflection of X-rays by planes. We have shown that these planes are parallel with the 100 planes of the crystal of solid solution and, moreover, that they are of small dimensions (100-400 Å). We assumed, therefore, that these planes were composed of groups of copper atoms, without making any hypothesis about the disposition of the atoms within these groups.

Continuing the study of these alloys (among other things we have made use of millivoltmeter radiation, besides that of copper), two other peculiarities were noticed:

(1) From the very intense spots produced by the X-ray reflection by the 111, 110, 110 planes of solid solution, one or two straight streaks of varying dimensions and of very weak intensity issue. As to the spots 100, one is directed towards the centre, the other is perpendicular to it. As for the spots 111, 110, on the contrary, they are inclined to the central radius.

(2) A number of distinct spots of extremely weak intensity appear, for which the crystals of the solid solution cannot be responsible. By orientating a given crystal so that the primary beam is parallel with an edge perpendicular to the beam, it is shown schematically in the figure below. The streaks in the centre are due to the groups of atoms included in the plane perpendicular to the plane of the figure, and the distance  $d_1$  is equal to the distance from one spot 100 of the aluminium crystal to the centre; and the spots  $S_1, S_2, S_3, S_4$  are in the middle of the lines  $d_1, d_2, \dots$

The results are completely reproducible, for the given sol, and measurements with the ultra-microscope show that the dose producing coagulation is, in fact, those which produce the greatest decrease in the electrokinetic potential of the particles. The photograph illustrates very vividly the interesting fact that, at any rate for certain colloidal solutions, a comparatively small dose of X-radiation may produce complete precipitation, while a dose of

We may therefore regard this diagram as the diffraction figure of a two-dimensional lattice, which would be identical with a plane 100 of an aluminium crystal.

Likewise, the study of the variation of the streaks described in the previous paragraph with the crystal orientation shows that these traces may be interpreted to diffraction by such a two-dimensional lattice.

These new experiments enable us to determine more closely the structure of the plane groups which we have described; it seems that the copper atoms should gather in patches in the 100 planes of the solid solution during hardening and should thus produce three rectangular systems of two-dimensional lattice of small extent.

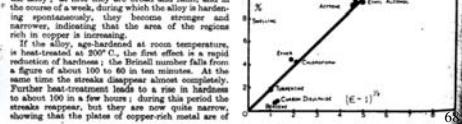
**ANDRÉ GUINIER,**  
Laboratoire de Physique,  
Ecole Normale Supérieure,  
Paris.

(C.A.B. 164 (1938) and C.F. 108 (1938).)  
THE results reported by M. Guinier are of interest to us as similar work has been in progress during the past two years in this Laboratory, and we have arrived at virtually the same conclusions as those given by M. Guinier. A paper describing the results of my experiments was communicated to the Royal Society on May 10, and a brief abstract has already appeared. Pending the publication of the full account, the following summary may be of interest.

The two-dimensional diffraction effect, to which M. Guinier refers, produces a series of elliptical streaks on the Laue photographs of single crystals of an alloy of aluminium with a per cent of copper set at room temperature. The accompanying photograph is of a crystal aged for six months at room temperature, orientated with a (110) direction parallel to the X-ray beam. The elliptical streaks make their appearance an hour after quenching the alloy; they are broad and faint, and in the course of a week, during which the alloy is hardening spontaneously, they become stronger and narrower, indicating that the area of the regions rich in copper is increasing.

If the alloy, age-hardened at room temperature, is heat-treated at 200° C. the first effect is a rapid reduction of hardness; the Bragg number falls from a figure of about 100 to 60 in ten minutes. At the same time the streaks disappear almost completely. Further heat-treatment leads to a rise in hardness to about 100 in a few hours; during this period the streaks reappear, but they are now quite narrow, showing that the plates of copper-rich metal are of

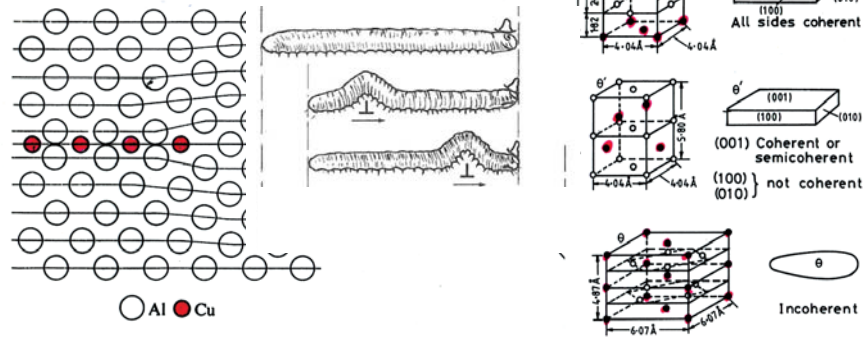
considerable extent, of the order of 10<sup>3</sup> Å, but still very thin, less than 10 Å. If the heat-treatment is continued, the hardness falls slowly and the streaks on the Laue photographs begin to break up into ill-defined spots, which on further heat-treatment become increasingly sharper, and ultimately a new set of Laue spots, indicating the presence of well-developed crystals of a second phase, makes its appearance.



# 教科書に載っている析出強化機構

(要するに結晶中に異物をおき、転位の動きを止める)

## coherent transition 'phases'



## アルミニウムの中に銅が析出 (GPゾーン)

by P. Haasen

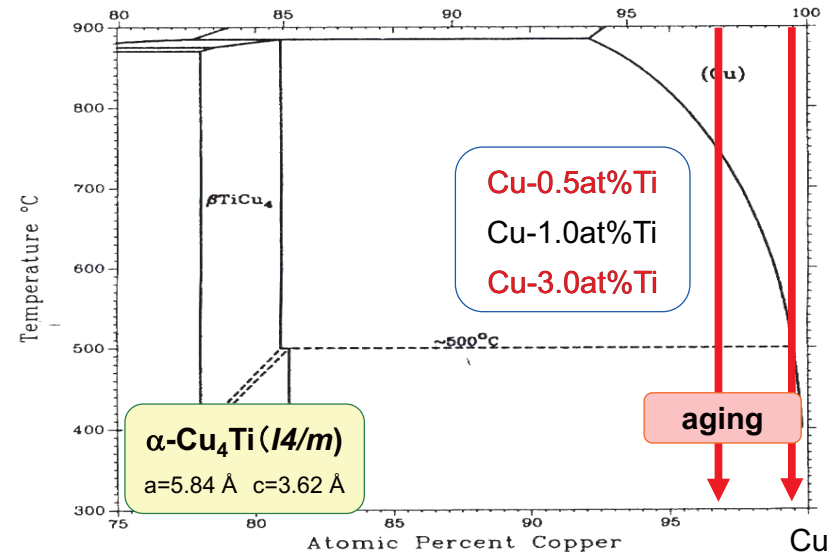
in *Metals and Alloys*  
by D.A. Porter & K.E. Easterling



## 動力学的理論に基づくコントラストの応用例：2

Cu-Ti 合金の場合

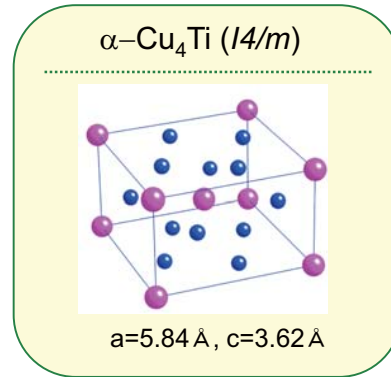
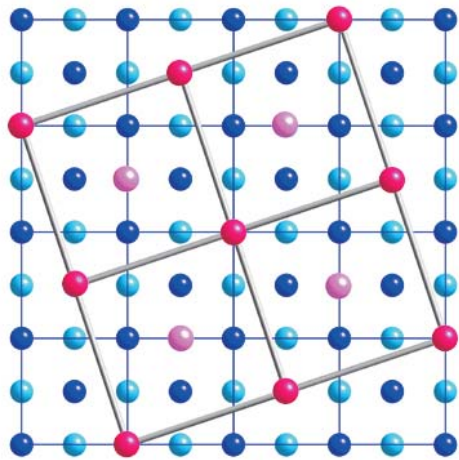
## Cu-Ti 系状態図





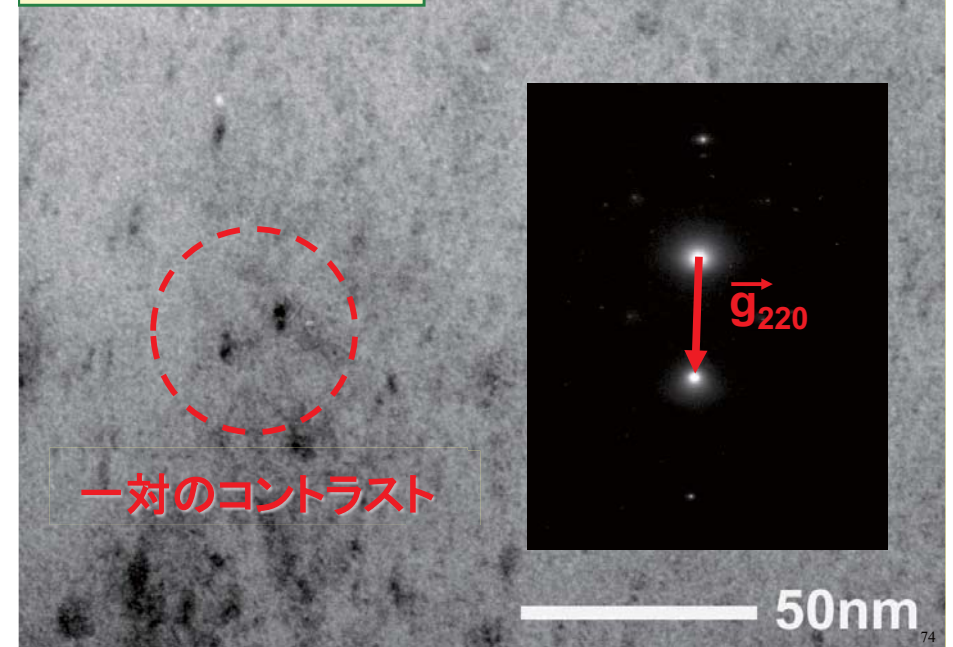
$\alpha$ -Cu<sub>4</sub>Ti 析出相: f.c.c. Cu マトリックスと整合性をもつ正方晶

方位関係:  $[001]_{\alpha} // [001]_{fcc}$  &  $(100)_{\alpha} // (310)_{fcc}$



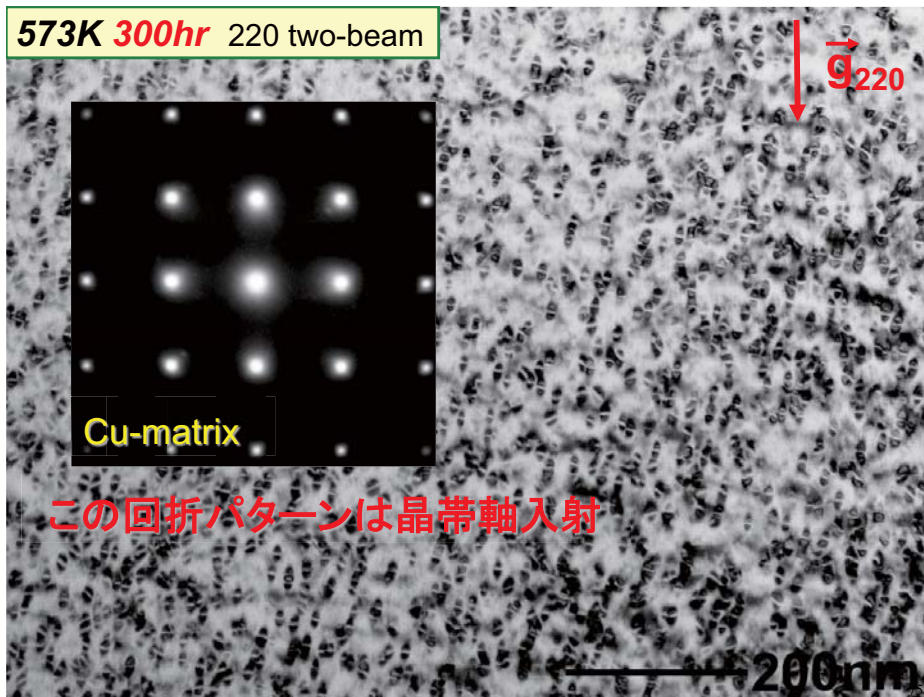
73

573K 20hr 220 two-beam

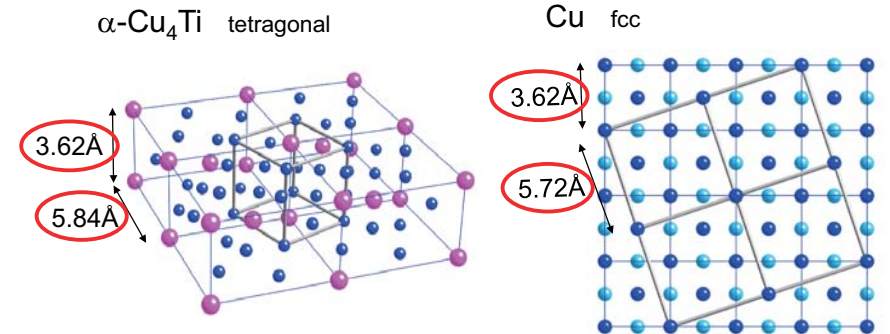


74

573K 300hr 220 two-beam



### Lattice mismatch between $\alpha$ -Cu<sub>4</sub>Ti and Cu



Orientation Relationship:  $[001]_{\alpha} // [001]_{fcc}$  &  $(100)_{\alpha} // (310)_{fcc}$



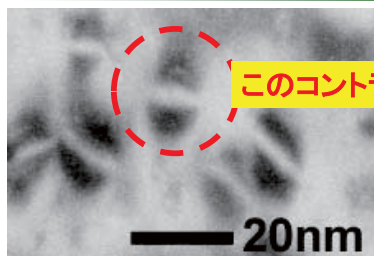
Lattice mismatch: 2%



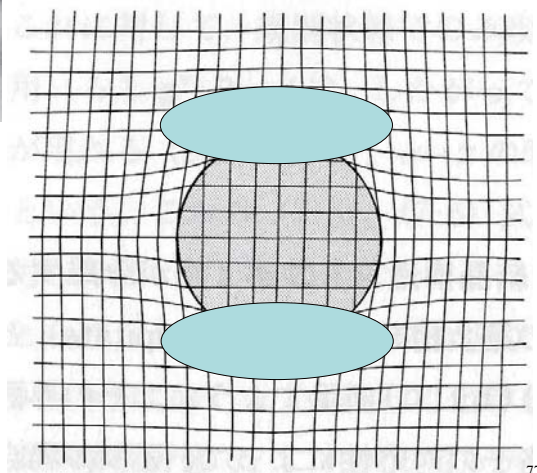
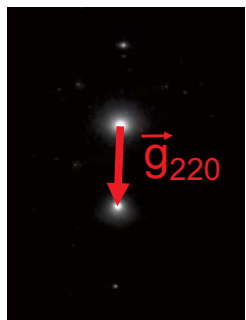
Generates compressive strain fields around precipitate

76

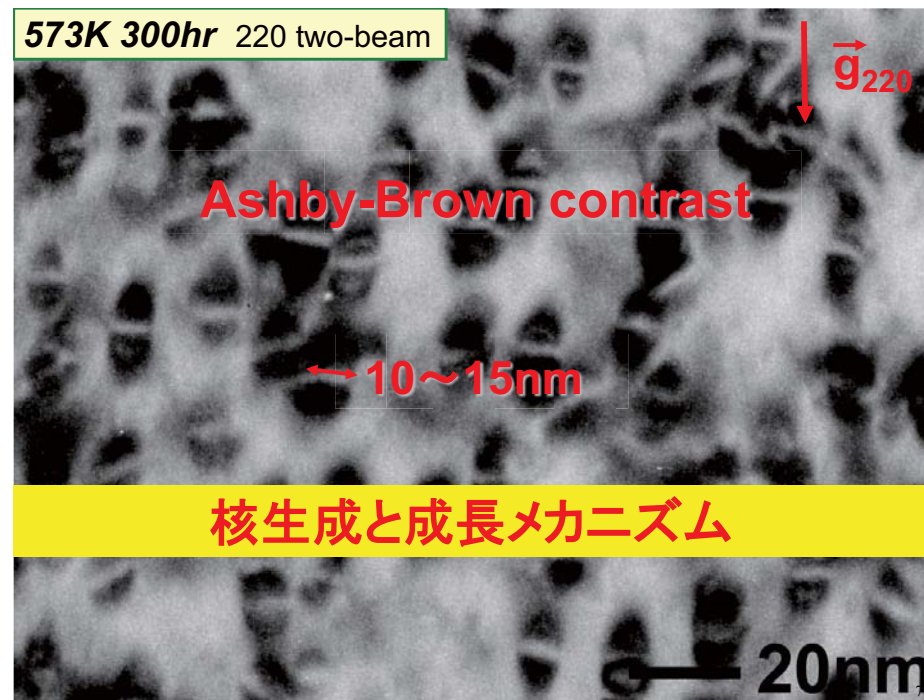
## Ashby-Brown コントラスト



このコントラストは二波条件によって変化する！



573K 300hr 220 two-beam



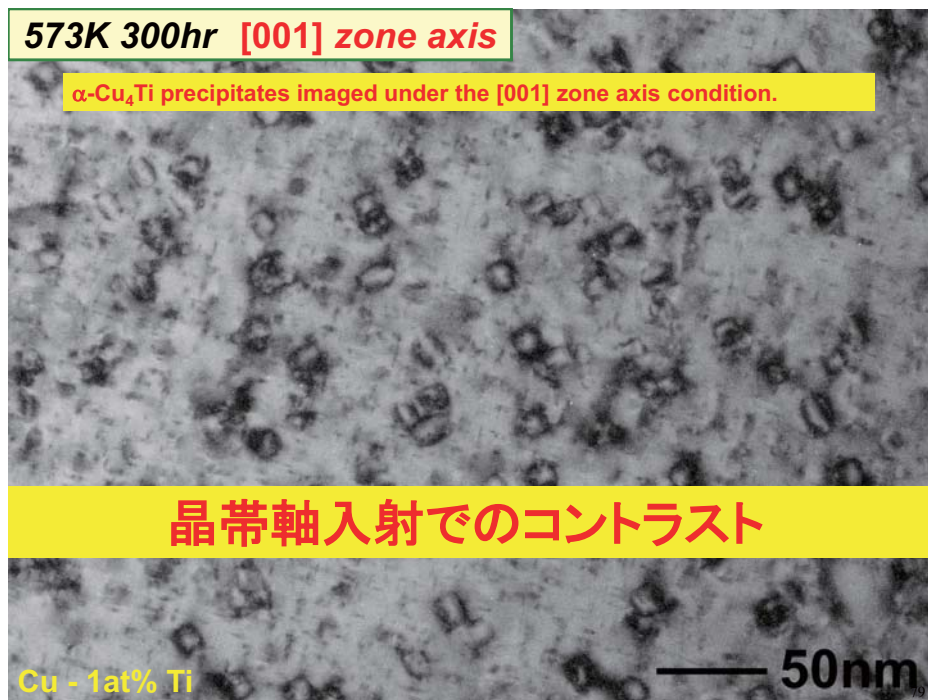
Ashby-Brown contrast

10~15nm

核生成と成長メカニズム

573K 300hr [001] zone axis

$\alpha$ -Cu<sub>4</sub>Ti precipitates imaged under the [001] zone axis condition.



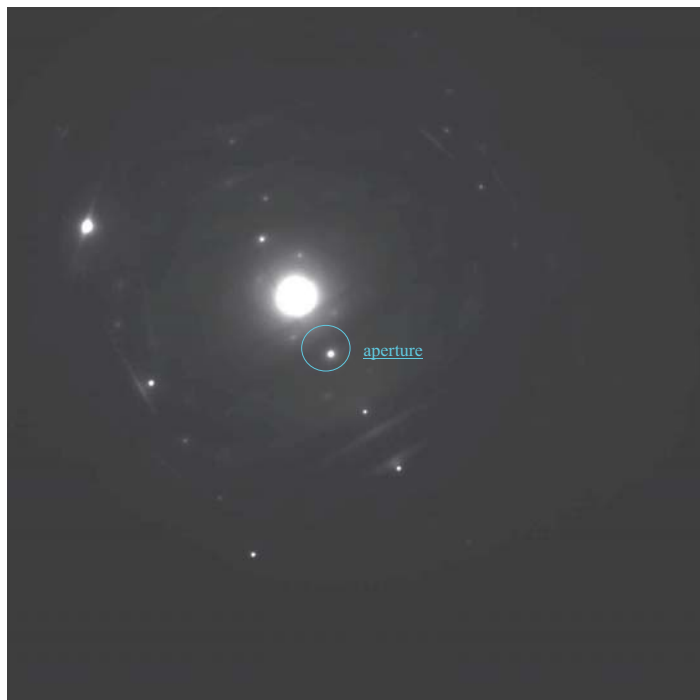
晶帯軸入射でのコントラスト

Cu - 1at% Ti

## 二波条件の実際

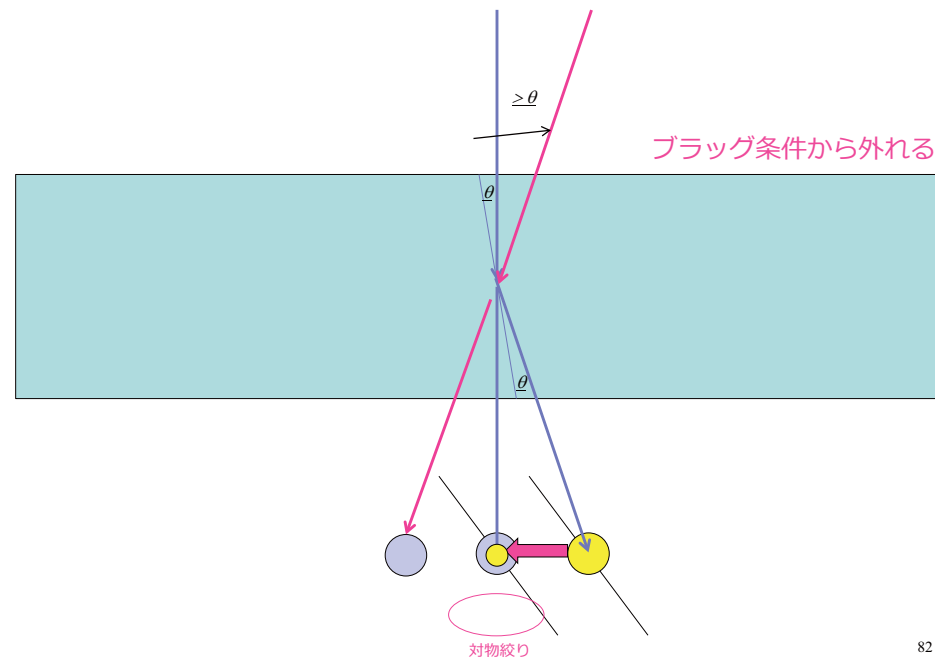
軸上暗視野とウィークビーム法





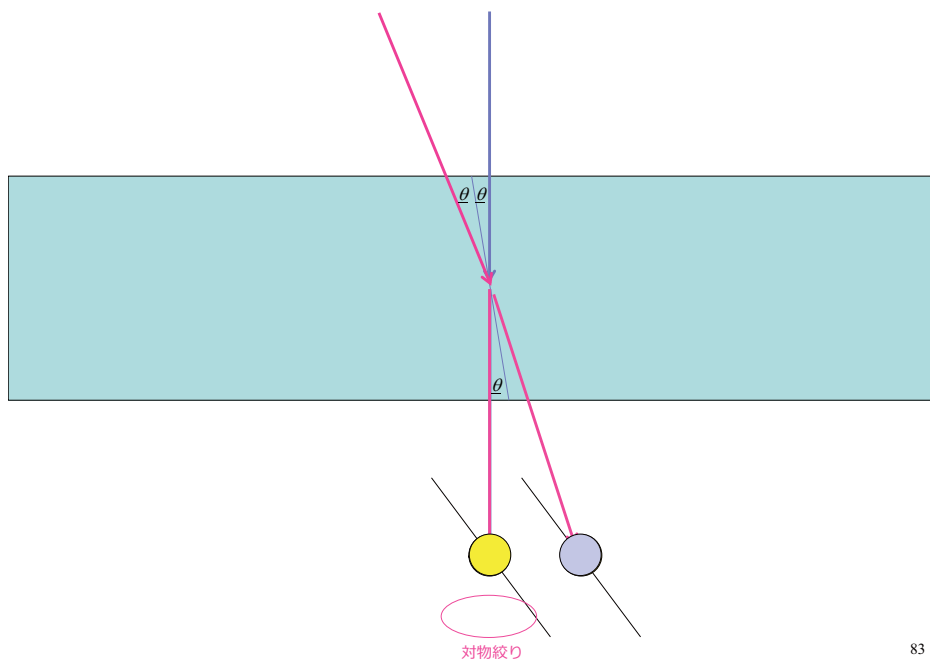
81

ブラッグ条件を満たした回折スポットを絞りの位置にもってくと ...



82

ブラッグ条件を満たしている  $hkl$  面の裏側に入射波を移動させる！



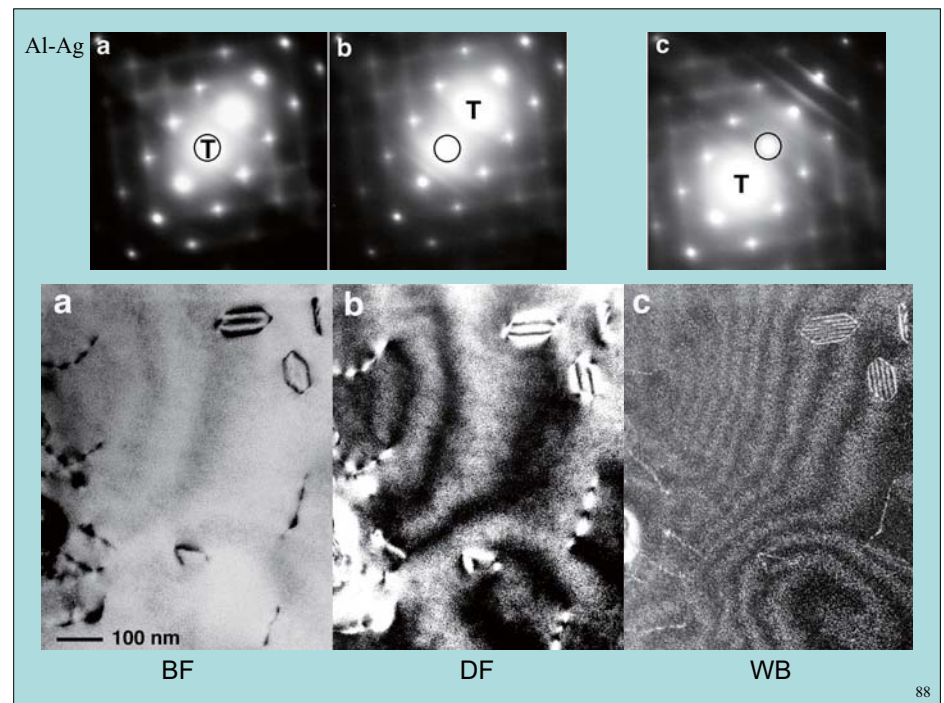
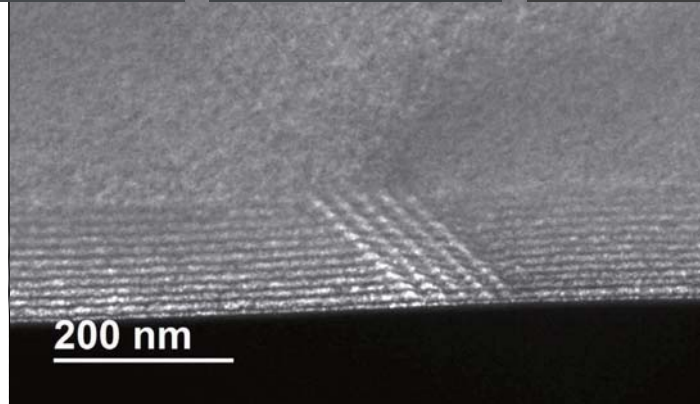
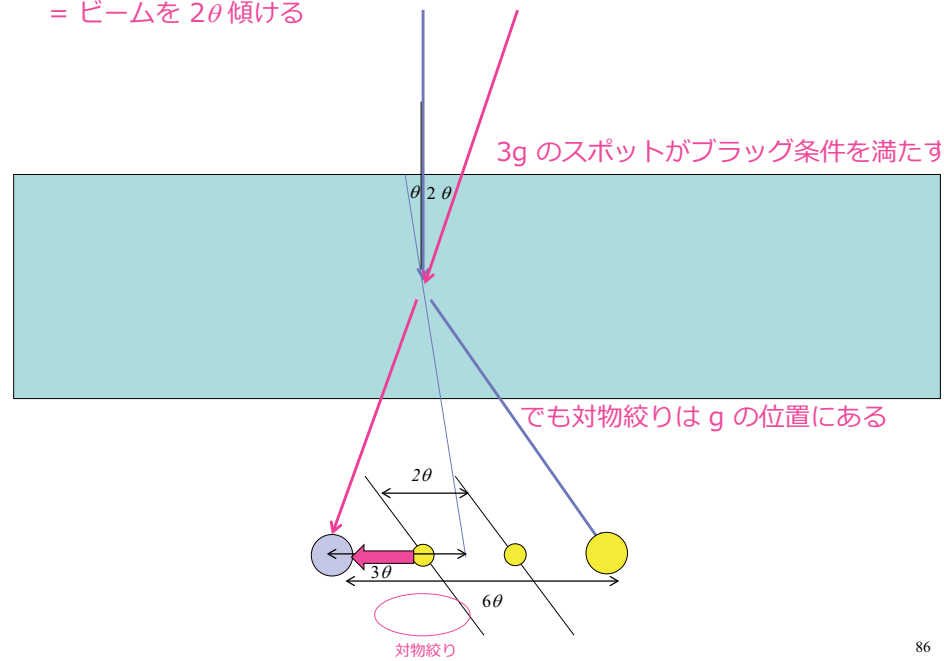
83

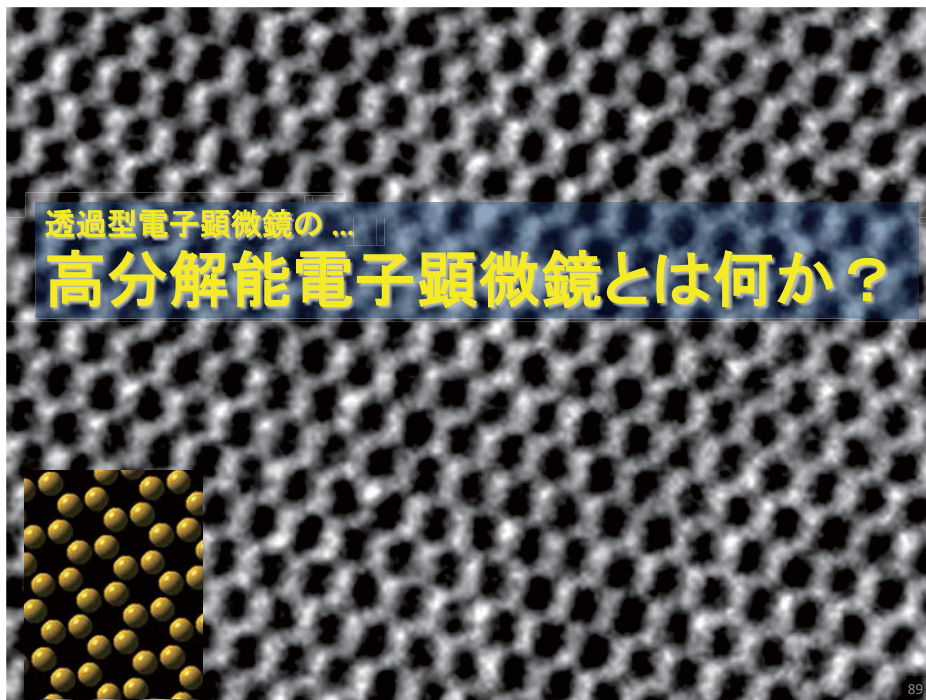


84



ブラッグ条件を満たした回折スポット  $g (=2\theta)$  を絞りの位置にもってくる  
 = ビームを  $2\theta$  傾ける

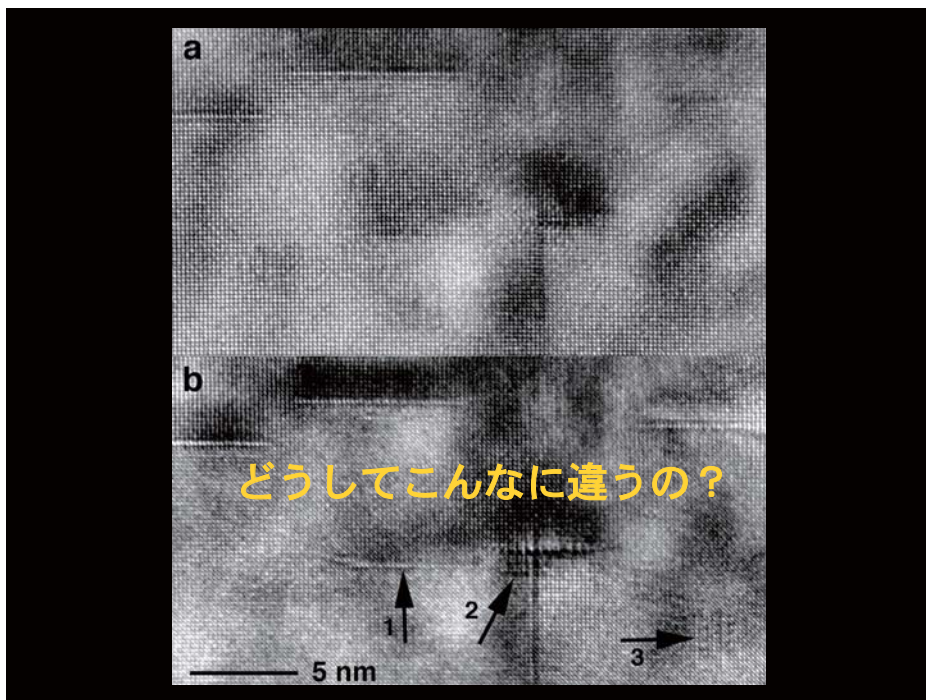




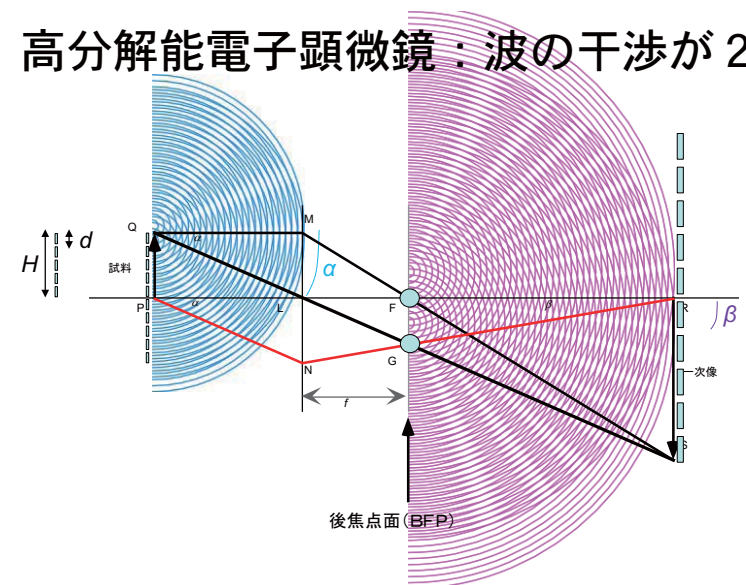
## ここから、位相コントラスト まずは簡単な例から

位相コントラスト：高分解能像

合金の高強度化：Al-Cu 合金



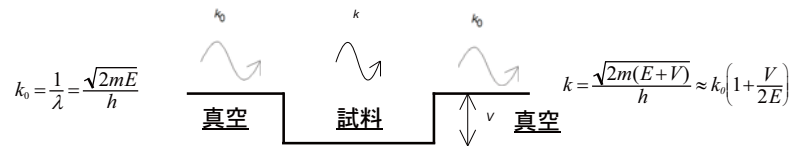
## 高分解能電子顕微鏡：波の干渉が2回



回折パターンを新たな起点として干渉が起こり、  
もとの試料の情報再現される！

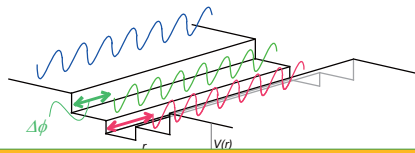


# 電子線が試料を通過するとき。。。



エネルギーが高いほど波長は短い  
(分解能は高い)

試料の中では原子の引力を感じて  
電子線の波長が短くなるんだ？



この位相の差を可視化したい！

# 振幅コントラスト vs 位相コントラスト

Amplitude Contrast vs Phase Contrast

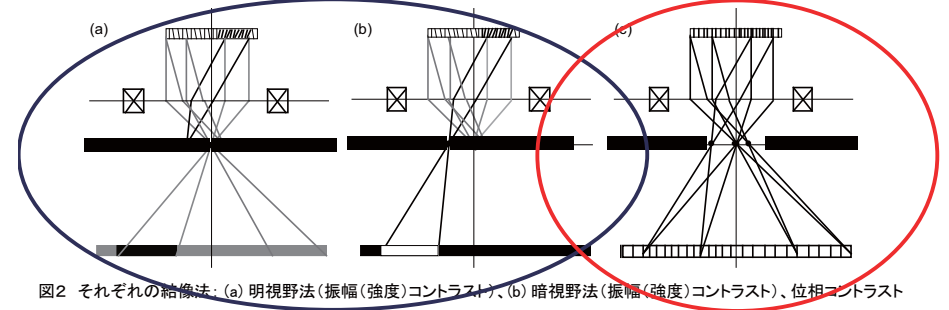


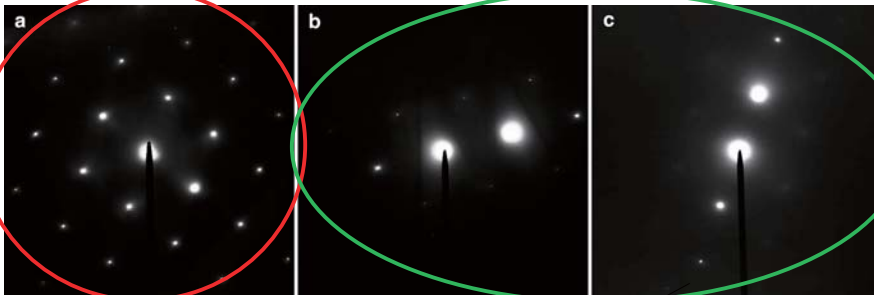
図2 それぞれの結像法: (a) 明視野法(振幅(強度)コントラスト)、(b) 暗視野法(振幅(強度)コントラスト)、位相コントラスト

Amplitude Contrast: 選択した波の振幅の空間的分布

➡ そのまま像面に投影すればよい

Phase Contrast: 波の位相の空間的分布

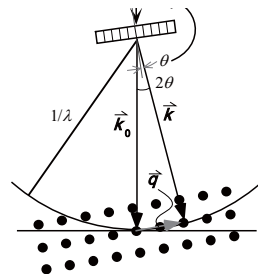
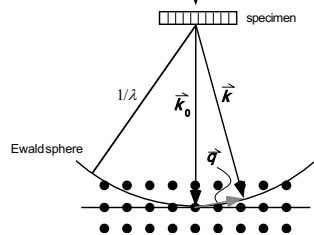
➡ 波を干渉させることによって、位相差を抽出しなくてはならない



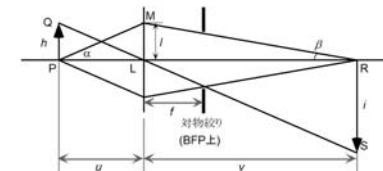
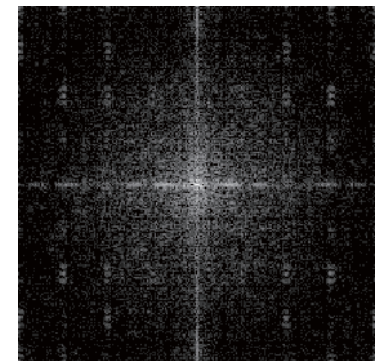
位相コントラストのときに  
に必要なディフラクション  
パターン

Bragg

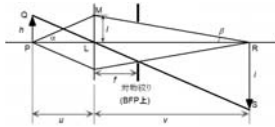
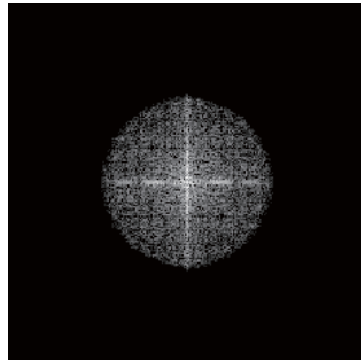
動力学的効果を利用する  
ときに用いられるディフ  
ラクションパターン



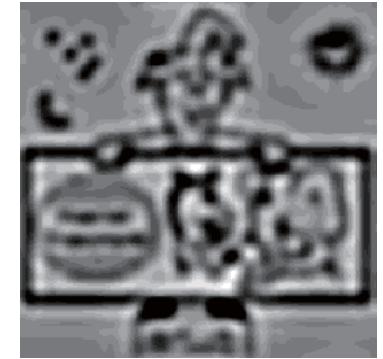
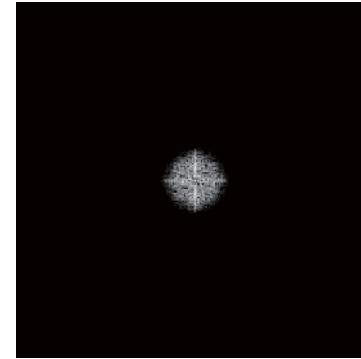
# フーリエ変換と空間周波数



# フーリエ変換と空間周波数

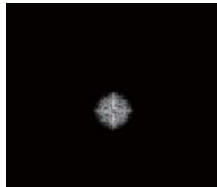


# フーリエ変換と空間周波数

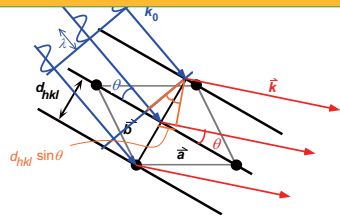


波数空間（後焦点面）でより遠いところほど、  
細かな情報を持っている。

# 回折パターンと干渉模様の関係



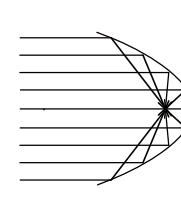
回折パターンの高角側の情報がほしい。



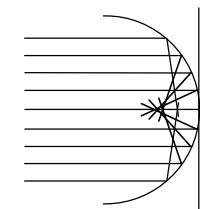
$$\lambda = 2d \sin \theta$$

波数空間（後焦点面）でより遠いところほど、  
細かな情報を持っている。

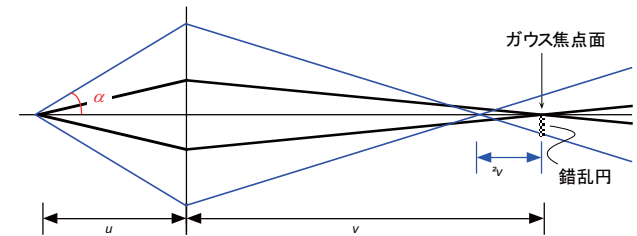
# 球面収差



パラボラアンテナ



‘スフェリカル’アンテナ



$$f = f_0 - C_s \alpha^2$$

レンズの外側を通過した波ほど、より強く曲げら  
れてしまう（焦点距離が短くなる）

# 散乱ベクトル

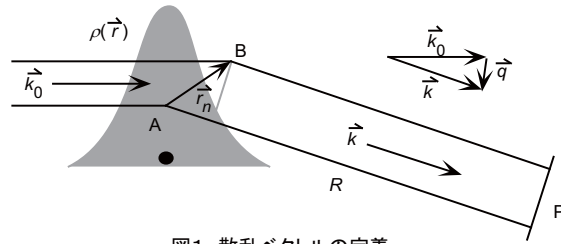


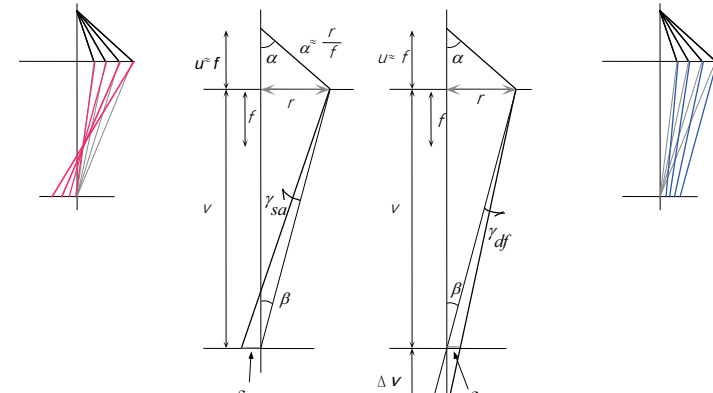
図1 散乱ベクトルの定義

入射波  $k_0$  がどれだけ散乱したかを（角度ではなく波長で規格化した）ベクトルで表す。

$$\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}_0 \quad |\vec{q}| = \frac{2 \sin \theta}{\lambda}$$

これからは  $\theta$  の代わりに  $q$  を用いる。

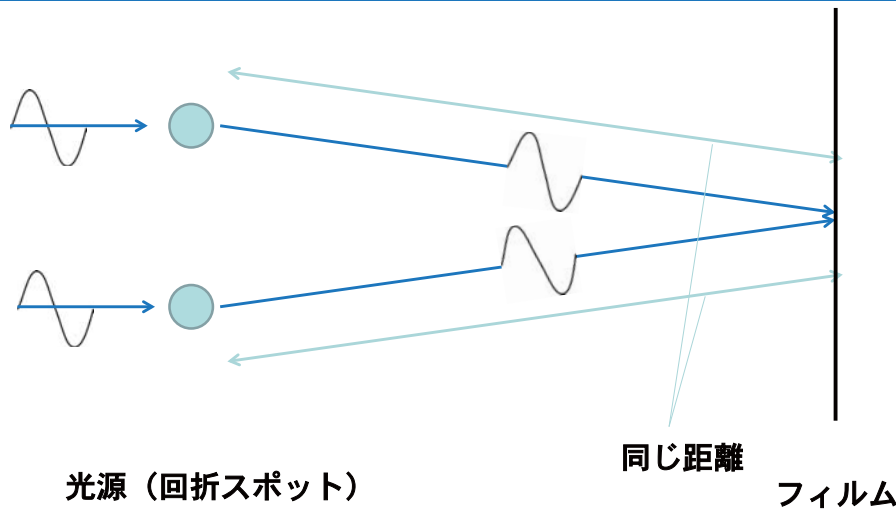
# 球面収差とデフォーカス



レンズの外側（高い周波数に関する情報を持つ）を通過する電子線の位相はずれてしまう

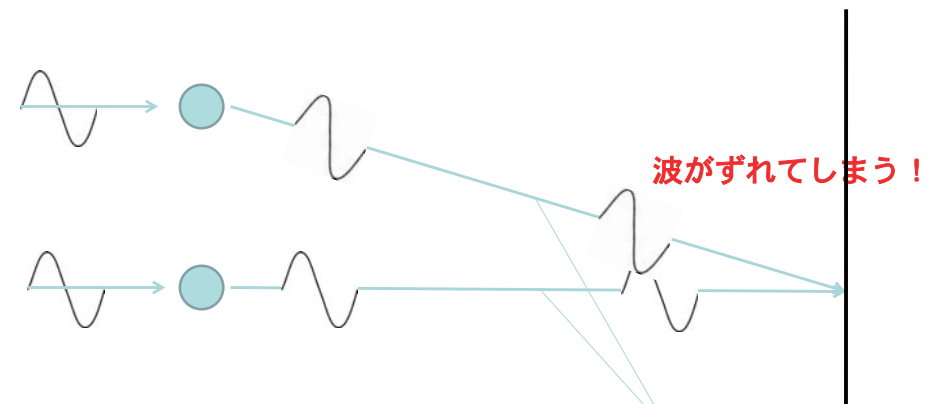
わざとレンズの力を弱めて、球面収差によるビームの曲がりを補正しようとする。（ただし、相殺しない）

光学系の不完全さによる光路差を計算する必要がある



光源から同じ距離（あるいは波長の整数倍）のところは強めあう

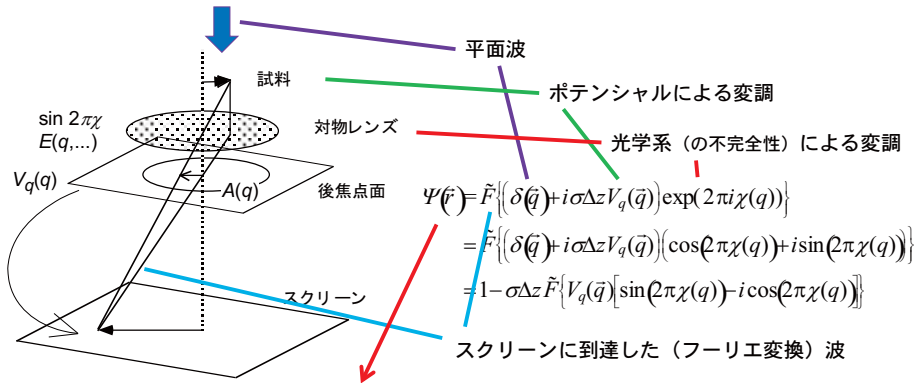
半波長ずれたところは弱め合う！



レンズ系の不完全さによる位相のずれ  
これを定量的に角度の関数として表したい  
→ 位相コントラスト伝達関数



# 位相コントラスト伝達関数：光学系の評価



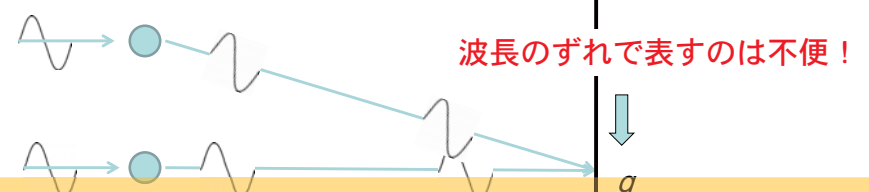
我々は強度を観察する (2乗する)

$$I(\vec{r}) = \Psi^*(\vec{r})\Psi(\vec{r}) = 1 - 2\sigma\Delta z \tilde{F}\{V_q(\vec{q})\sin(2\pi\chi(q))\} + o(\Delta z^2)$$

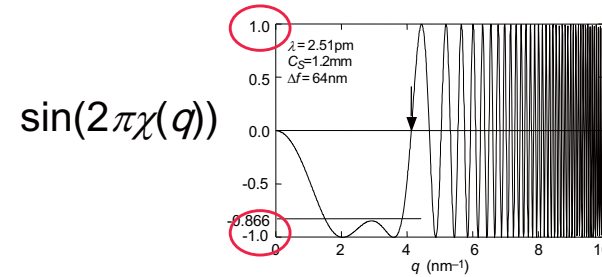
我々が観察するのはポテンシャルのフーリエ変換に  $\sin(2\pi\chi(q))$  がかったもののフーリエ変換

↑ 位相コントラスト伝達関数

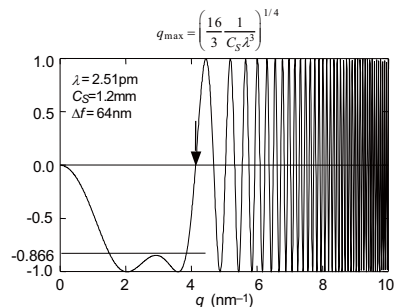
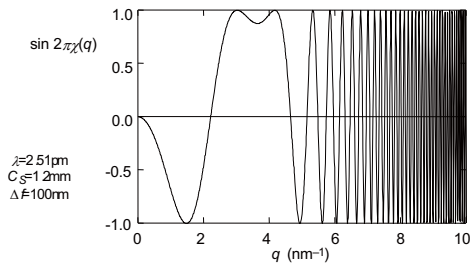
# 位相コントラスト伝達関数の意味



重なったところ (2πずれたところ) は明るく、半波長ずれたところは暗くなるので、**角度の関数としてずれを1から-1の範囲でプロットすればよい!**



# シェルツァーディフォーカス



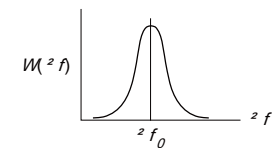
$$\Delta r_{\min} = \left( \frac{3}{16} C_s \lambda^3 \right)^{1/4}$$

# ここまでは球面収差を除いて、完璧な電顕のおはなし。

電子線のエネルギーのばらつき

レンズ電流のばらつき

焦点距離の不確定性



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

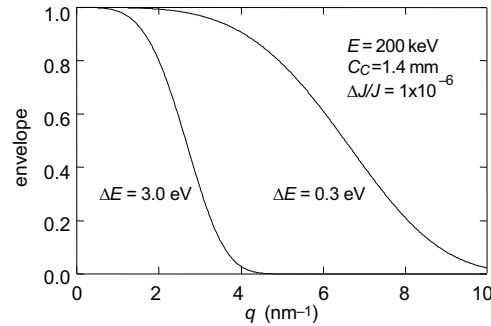
$$I(\vec{r}) \cong 1 - 2\sigma\Delta z \tilde{F}\{V_q(q)\sin(2\pi\chi(q,\Delta f))\}$$

$$\xrightarrow{\Delta f \rightarrow W(\Delta f)d\Delta f} 1 - 2\sigma\Delta z \tilde{F}\{V_q(q)[\sin(2\pi\chi(q,\Delta f))W(\Delta f)d\Delta f]\}$$

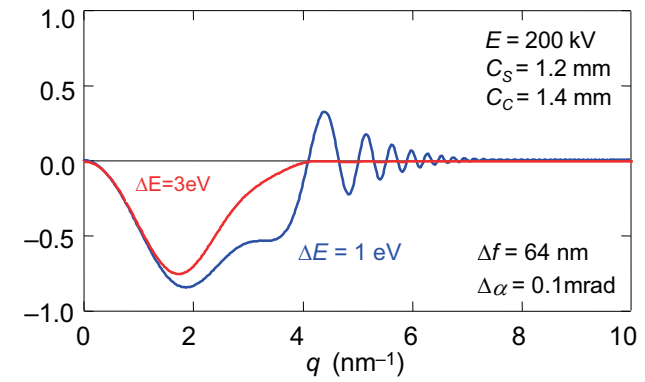
# 包絡関数

# 包絡関数

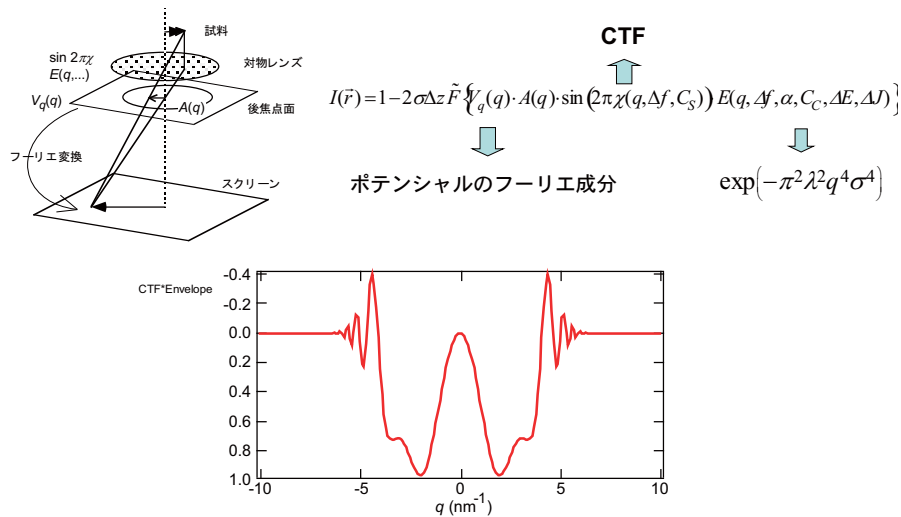
$$\int \sin(2\pi\chi(q, \Delta f)) W(\Delta f) d\Delta f = \sin(2\pi\chi(q, \Delta f_0)) \exp(-\pi^2 \lambda^2 q^4 \sigma^4)$$



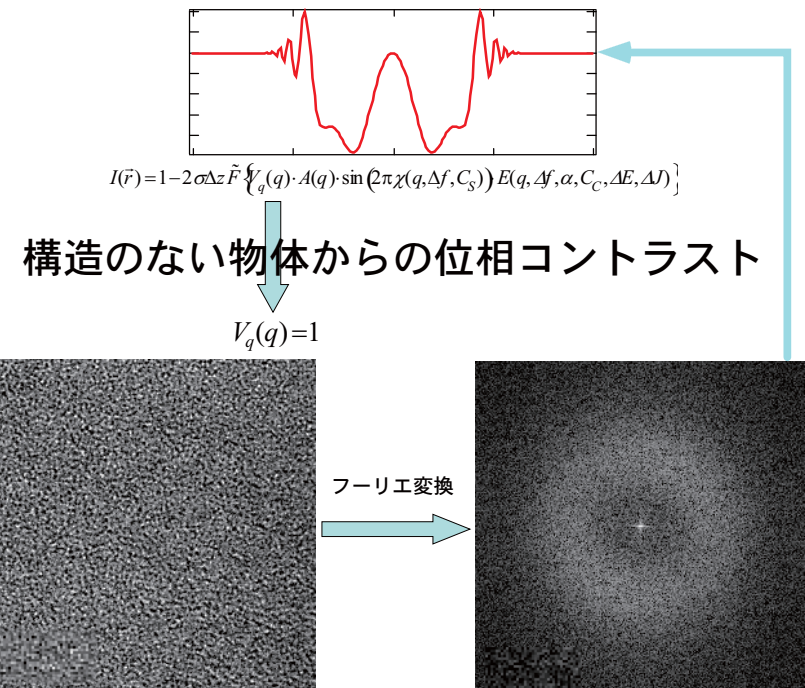
# 実効的なコントラスト伝達関数



対物しぼりを入れなくても分解能は包絡関数によって決まってしまう。

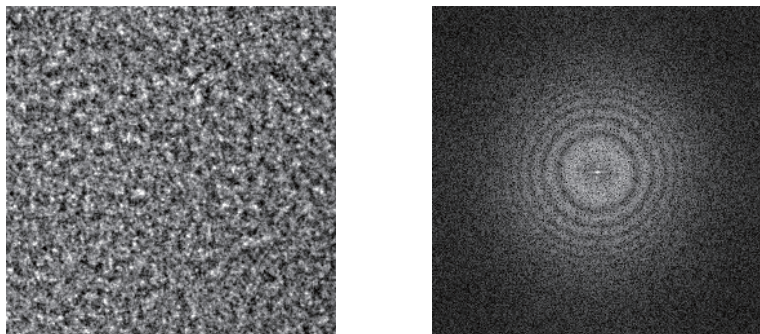


実効的なフィルターとなり分解能を制限する  
 この光学的なアーティファクトのみを  
 可視化する方法はないだろうか？

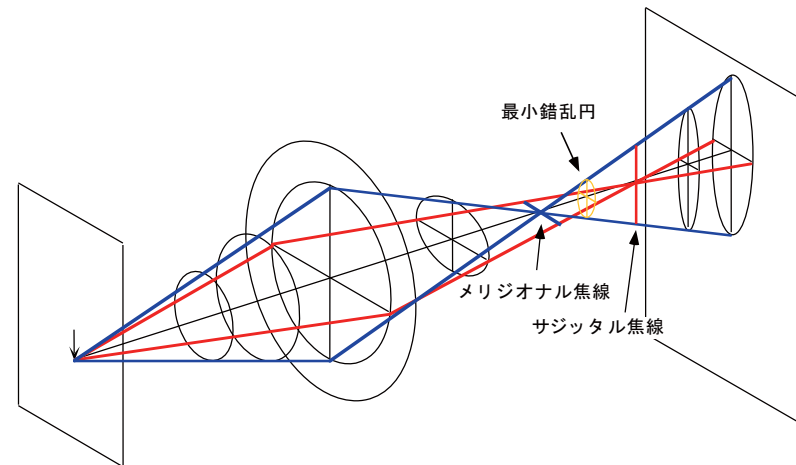


# ディフォーカス量による変化

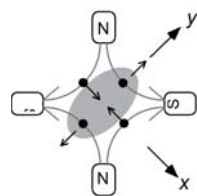
$$\Delta f = -3\mu\text{m}$$



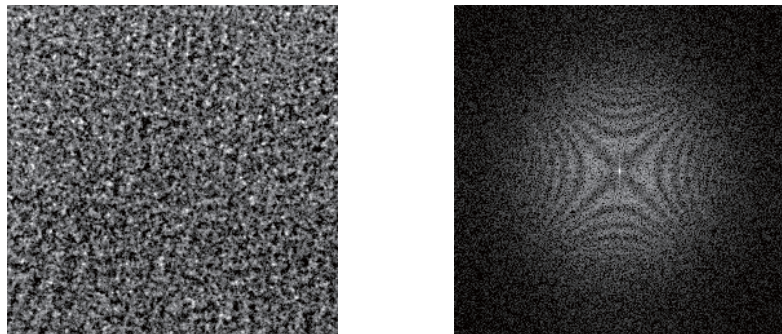
# 非点収差のある場合



# 非点収差の補正



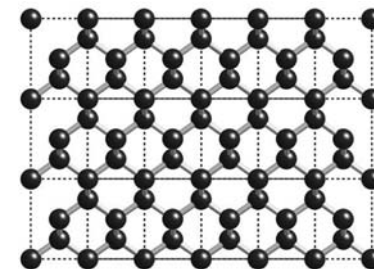
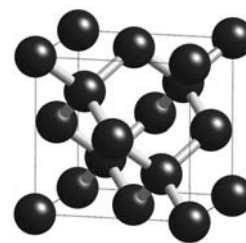
非点補正コイル



# 結晶からの位相コントラスト

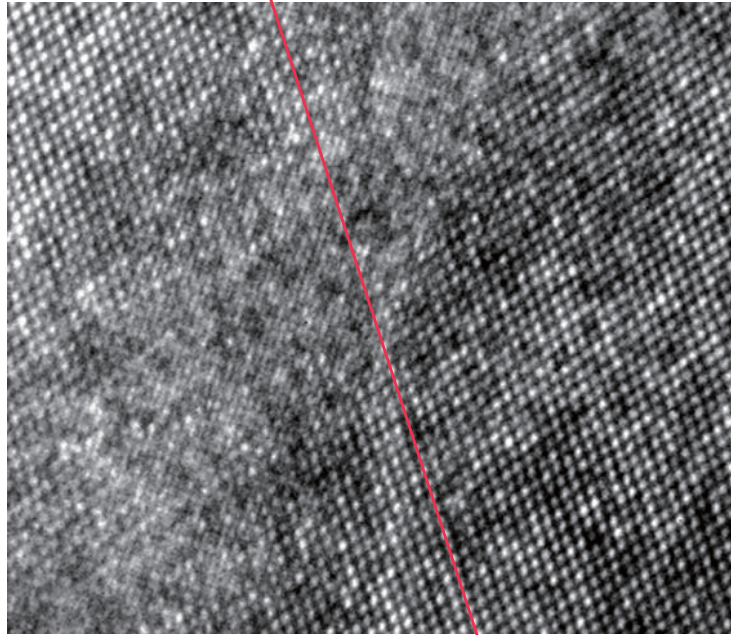
Si

<110>入射





コントラストが逆転している



## シミュレーションとの比較

マルチスライス法

結晶をスライスにわけ、  
一つ一つのスライスを  
回折格子と考える



スライス間の波の伝播を  
フレネル回折で近似する。

$$\text{透過関数: } t(x) = \exp\{-i\sigma v(x)\} = \exp\left\{-i\frac{\pi}{\lambda E} \int_0^{x_2} V(x) dx\right\}$$

$$\text{2次元格子による回折波: } \psi_1^{\text{out}}(x_1) = t(x_1)\psi_1^{\text{in}}(x_1)$$

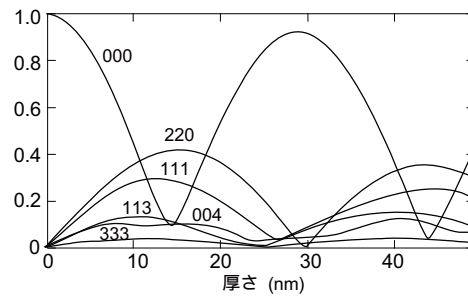
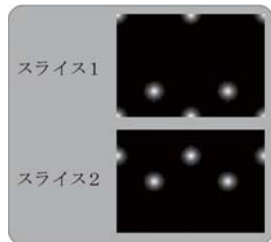
$$\text{個々の波の伝搬関数: } p(x_2 - x_1) = \left(\frac{i}{\lambda \Delta z}\right)^{1/2} \exp\left\{-2\pi i k \frac{(x_2 - x_1)^2}{2\Delta z}\right\}$$

$$\text{次の2次元格子への入射波: } \psi_2^{\text{in}}(x_2) = \int p(x_2 - x_1)\psi_1^{\text{out}}(x_1) dx_1$$

フレネル回折：高次の回折、スクリーンが  
散乱体の直下にあるときに適用できる。

## 回折波の振幅の試料厚さ方向の変化

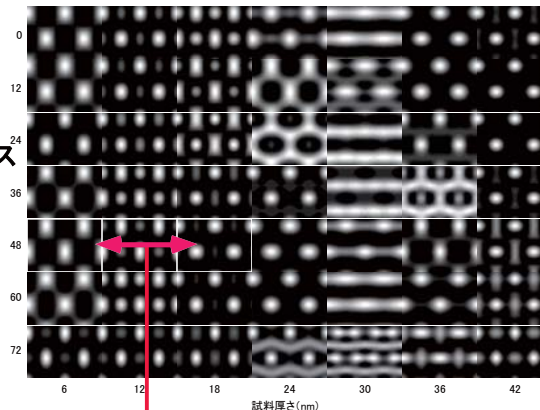
投影ポテンシャル



## シミュレーションとの比較

デフォーカス(nm)

デフォーカス



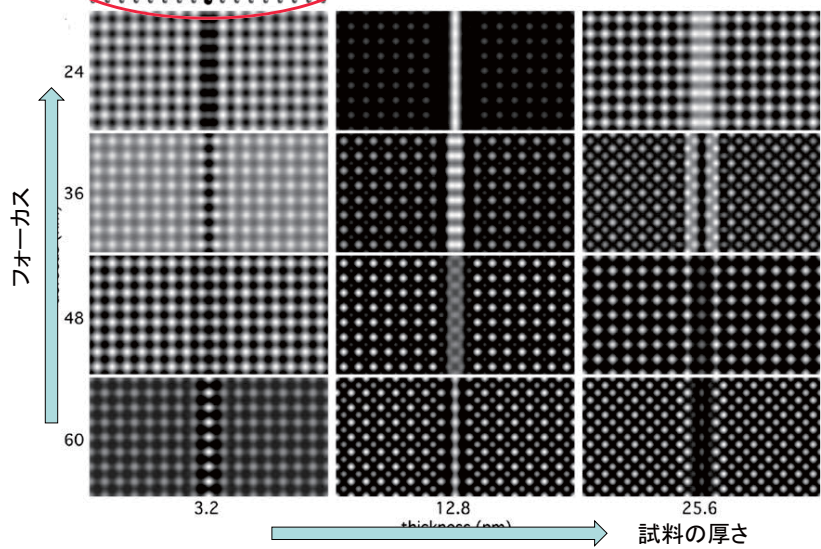
コントラストの反転

厚さ

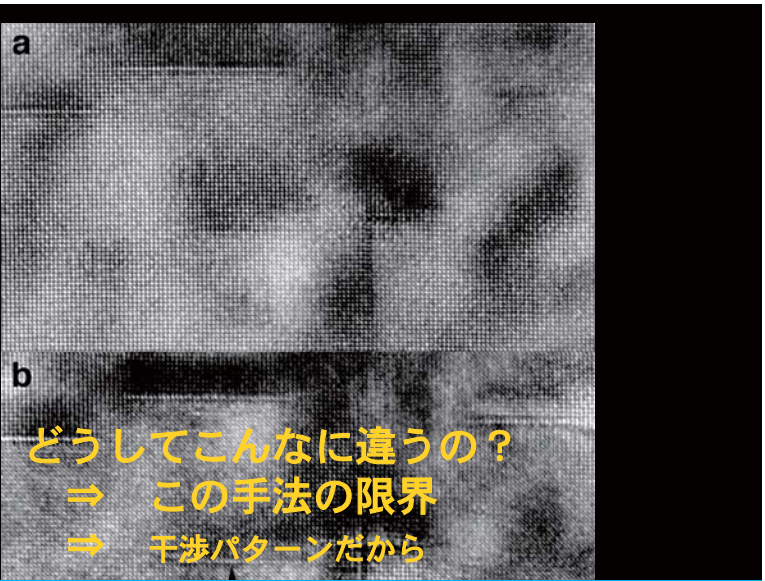
結晶モデル



左の結晶モデル(波のずれを与える)に対して  
 三通りの試料の厚さ(横軸)と  
 四通りのフォーカス量(縦軸)に対して、  
 計12のイメージを計算した例



### 高分解能観察



どうしてこんなに違うの？  
 ⇒ この手法の限界  
 ⇒ 干渉パターンだから

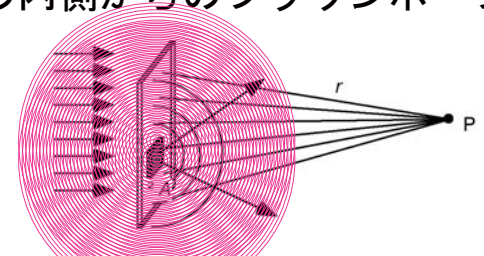
干渉模様は結像パラメータの影響を敏感に受ける

解決策を探せ！ STEMの再登場！

## STEMの光学系

照射系と検出系

### しぼりの内側からのフラウンホーファー回折



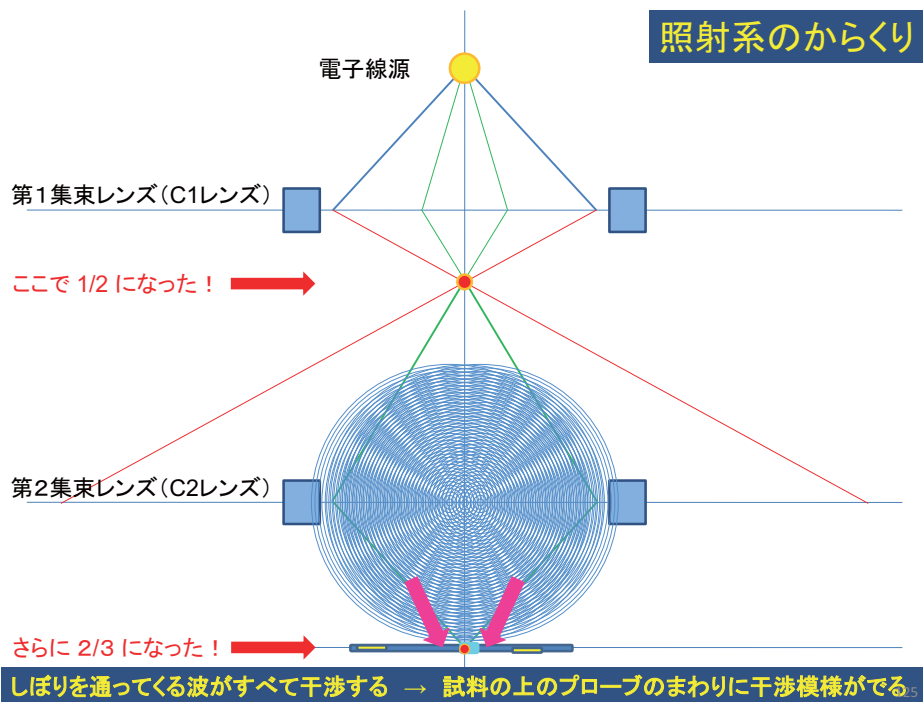
ホイヘンスの原理：波の伝搬は任意の波面から射出する2次波の重畳として記述される。

$$\Psi_Q = \sum_{j=1}^N \frac{b}{r_j} e^{2\pi i(kr_j - vt)} \Delta A_j \quad \rightarrow \quad \Psi_Q = \iint_{\text{aperture}} \frac{b}{r} e^{2\pi i(kr_j - vt)} dA$$

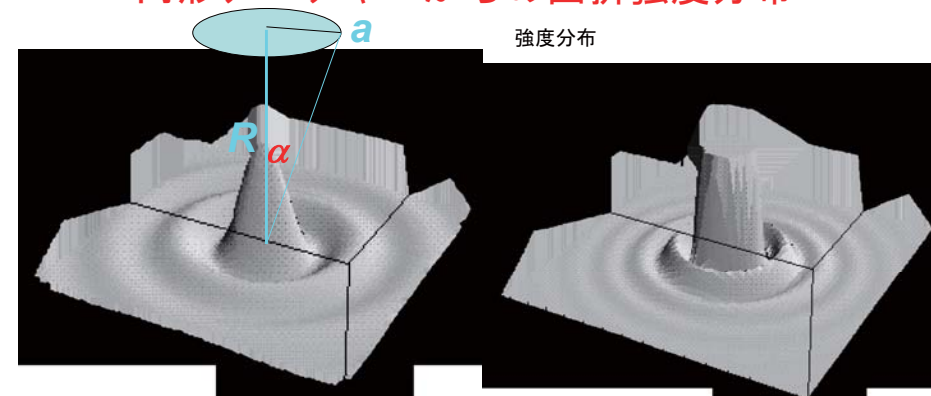
- ・要するにしぼりの中すべてからの波の足しあわせを行う。
- ・観測点 P からしぼり内の各点までの距離が違うので(光路差)位相がずれ、干渉が起こる。



## 照射系のからくり



## 円形アパチャーからの回折強度分布



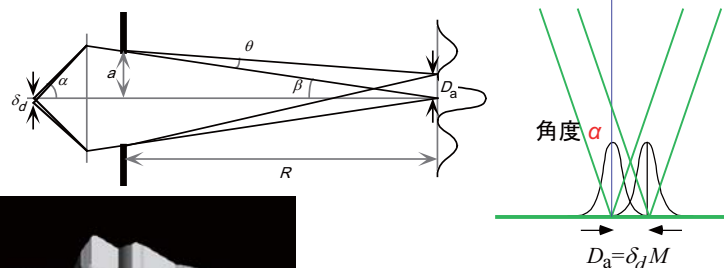
円形であってもアパチャーの各部位からスクリーンまでの光路差によって干渉は起き、ピークの周囲に強度分布が生じる。中央の強度が強い部分は Airy Disc と呼ばれる。

ディスク半径:  $D_a = \frac{3.83 R \lambda}{\pi 2a} = 1.22 \frac{R \lambda}{2a} = 0.61 \frac{\lambda}{a/R}$  角度  $\alpha$

126

## 分解能：レイリー条件

「一つの Airy Disc の中心がもう一つの Airy Disc の最小強度の点にあるとき、その二点はギリギリに分解されている。」



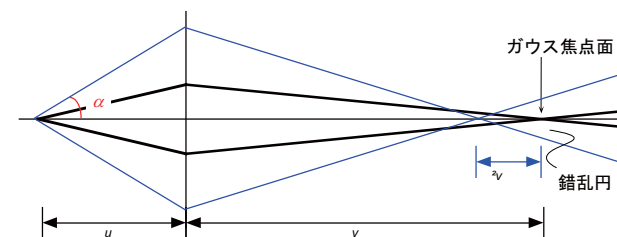
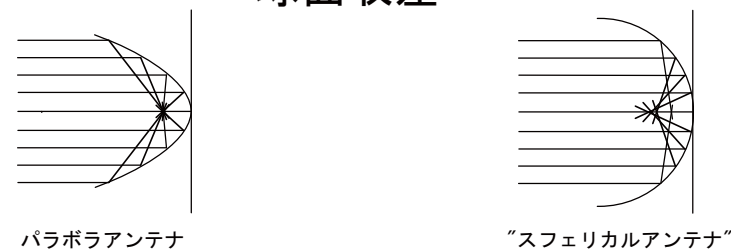
$$\delta_d = D_a \frac{1}{M} = 1.22 \frac{R \lambda}{2a} \cdot \frac{\beta}{\alpha} = 0.61 \frac{\lambda}{\alpha} \quad (\because \beta = \frac{a}{R})$$

レンズから見込む角度  $\alpha$  (同等に  $\beta$ ) が大きいほうが分解能は高い

アパチャーからのフラウンホーファー回折によるビームの拡がり「回折収差」と呼ぶ。(厳密には収差 (aberration) ではない)

127

## 球面収差



$$f = f_0 - C_s \alpha^2$$

128

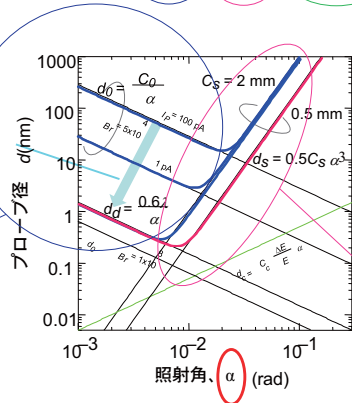


# 微小プローブの形成とSTEM

$$d^2 = d_0^2 + d_d^2 + d_s^2 + d_c^2 = \frac{C_0^2}{\alpha^2} \left( \frac{(0.61\lambda)^2}{\alpha^2} + \frac{1}{4} C_s^2 \alpha^6 + \left( C_c \frac{\Delta E}{E} \right)^2 \alpha^2 \right) \left( C_0^2 = \frac{4I}{\pi^2 B_r} \right)$$

これは暗くした分  
小さくなったということ。

照射角を大きくすれば、プローブサイズは小さくなるが ...

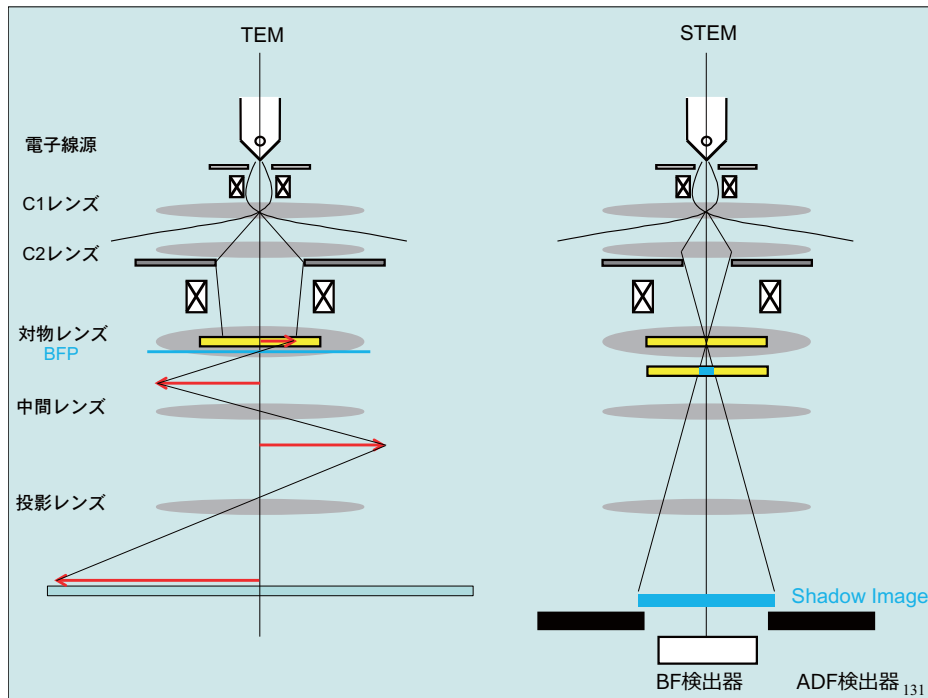


これは色収差  
(波長やエネルギーで曲がり方が異なる)

角度を大きくしすぎると、球面収差の影響が出てくる。

$$d_{0, min} = \left( \frac{4}{3} \right)^{3/8} (C^3 C_s)^{1/4}$$

# STEMモードの光線図



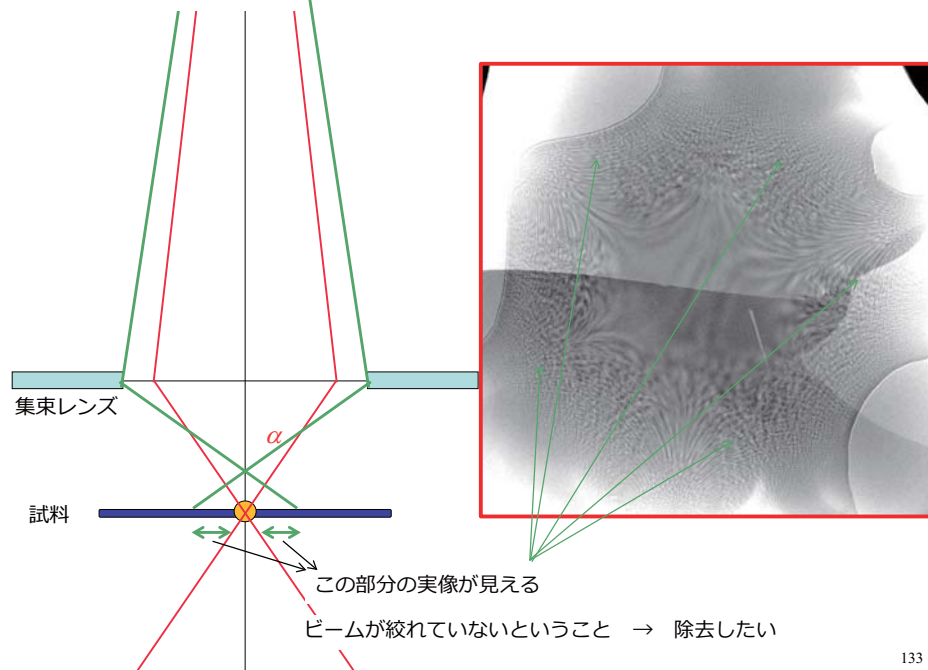
# 電子を集束する操作の実際

ロンチグラムとは何か？

ビームを絞るって、どうやるの？

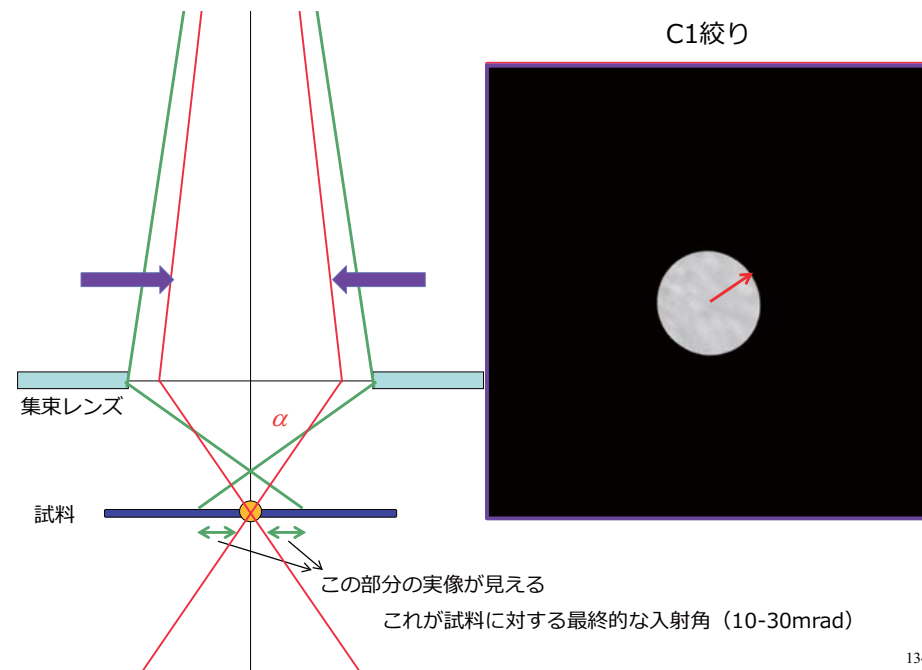


球面収差はどこに見えるか？



133

球面収差の強いレンズの外側の電子線を絞りで除く



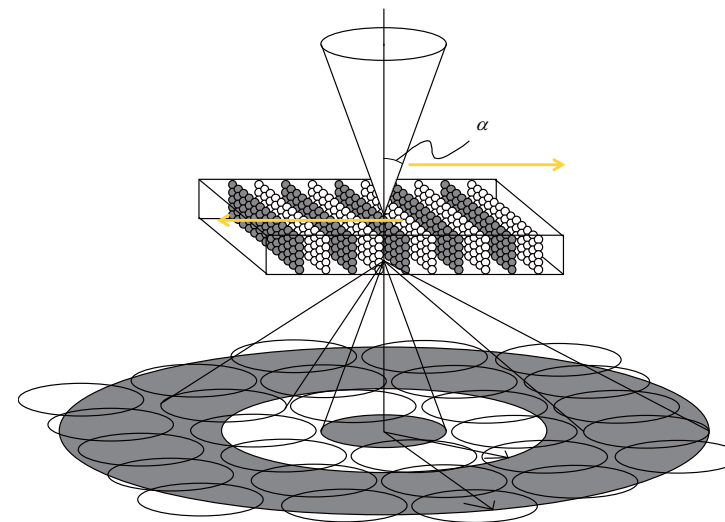
134

STEM + BF / LAADF / HAADF

検出器の配置

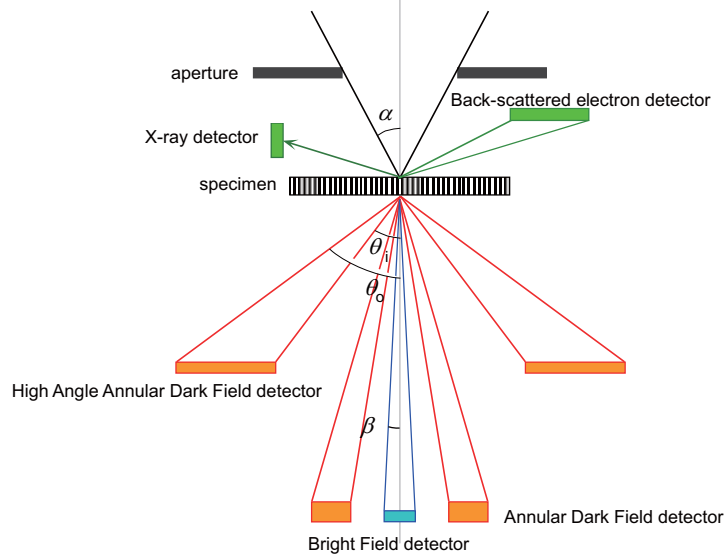
135

円環状検出器

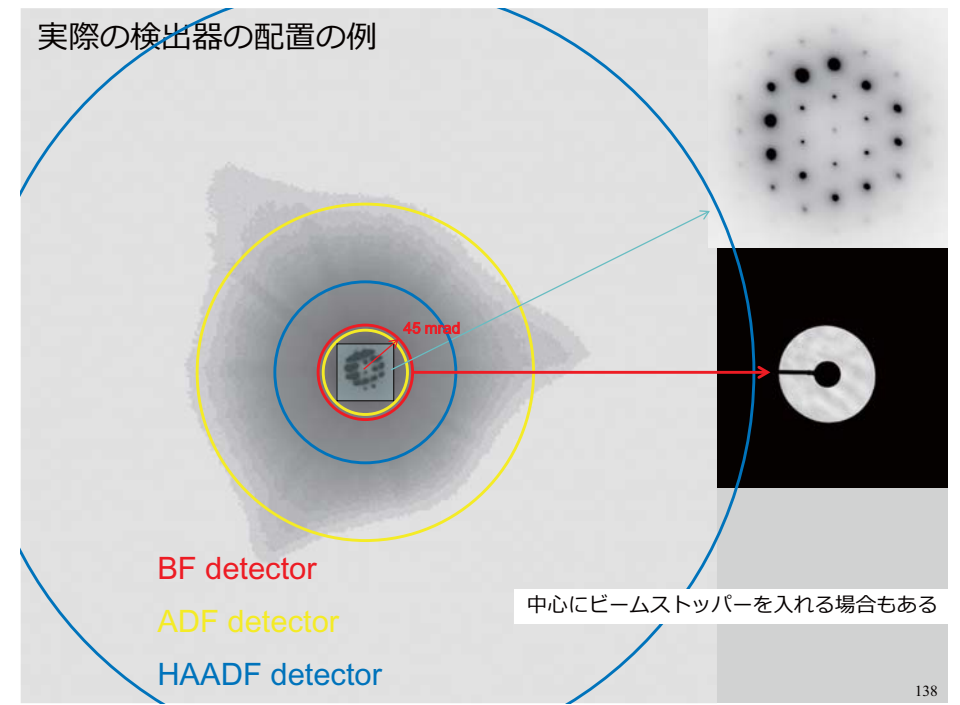


136

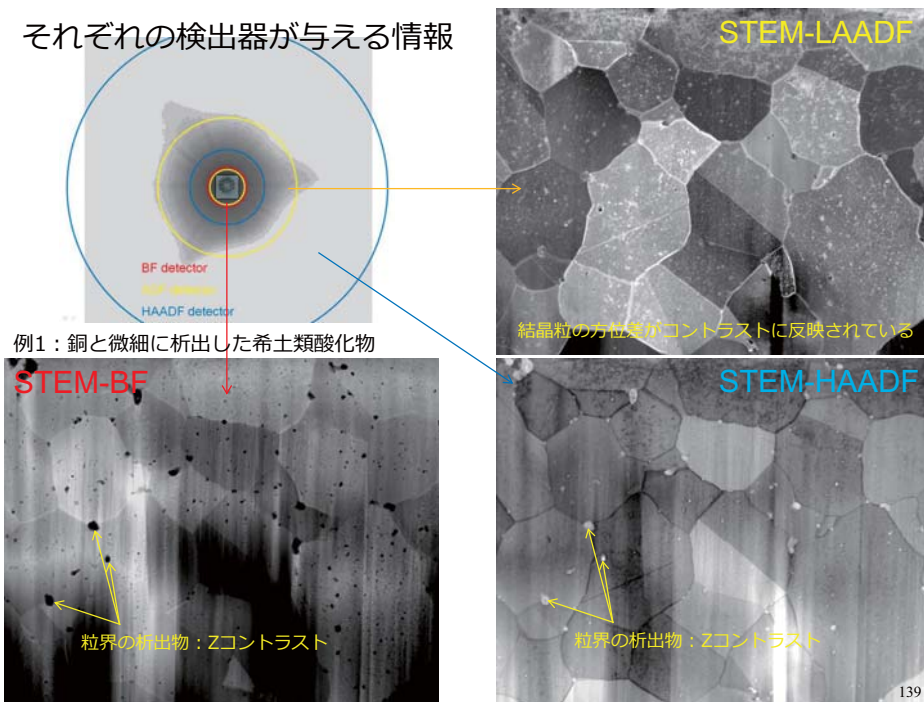
# STEM detector geometry



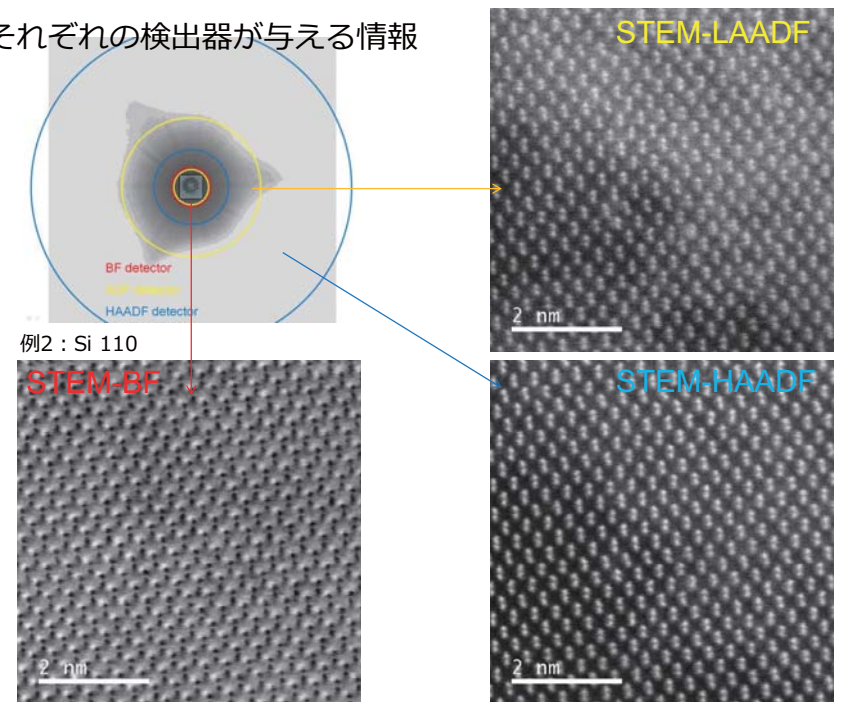
# 実際の検出器の配置の例



# それぞれの検出器が与える情報



# それぞれの検出器が与える情報





## STEM : Zコントラストと動力学的効果

Al-Cu system

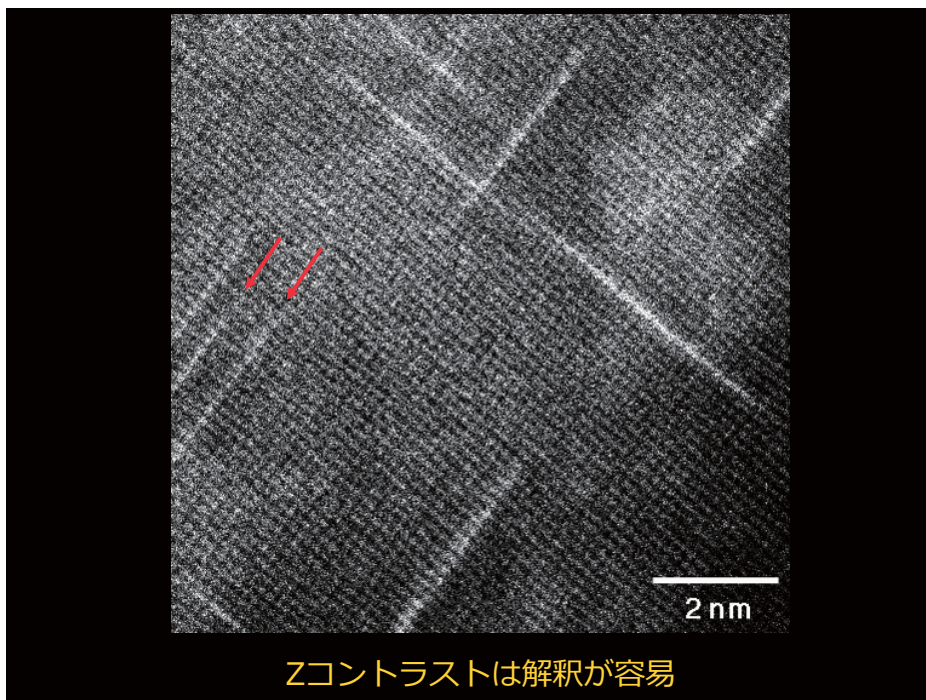
Al-Ag system

141

## GP zone seen by STEM

A periodic table of elements with columns labeled 1A through 0. The elements Al (Aluminum) and Cu (Copper) are circled in red. The table includes elements from Hydrogen (H) to Oganesson (Og), with the lanthanide and actinide series shown below the main table.

142

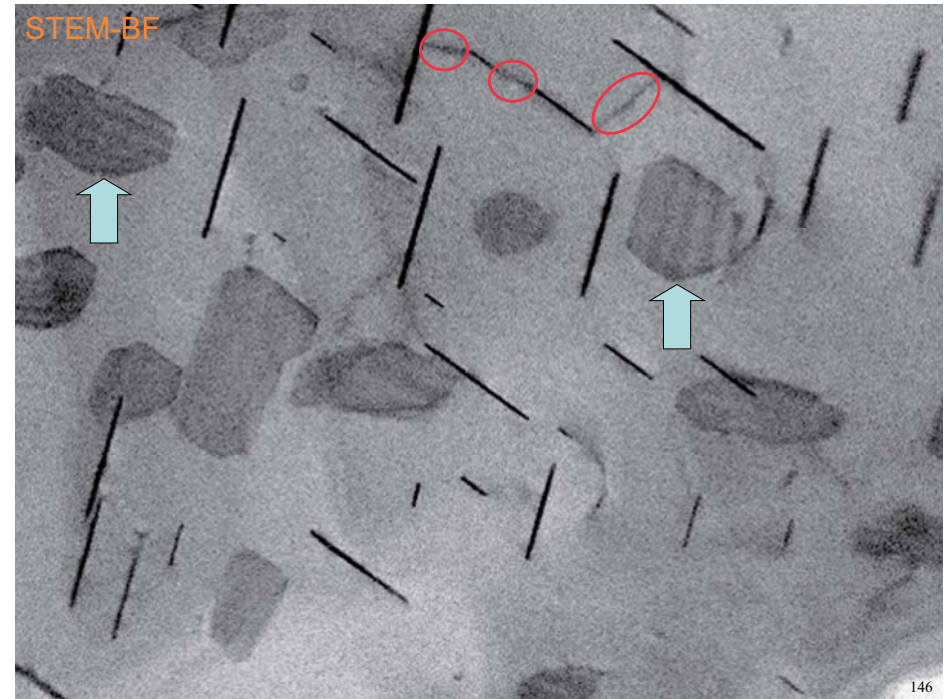
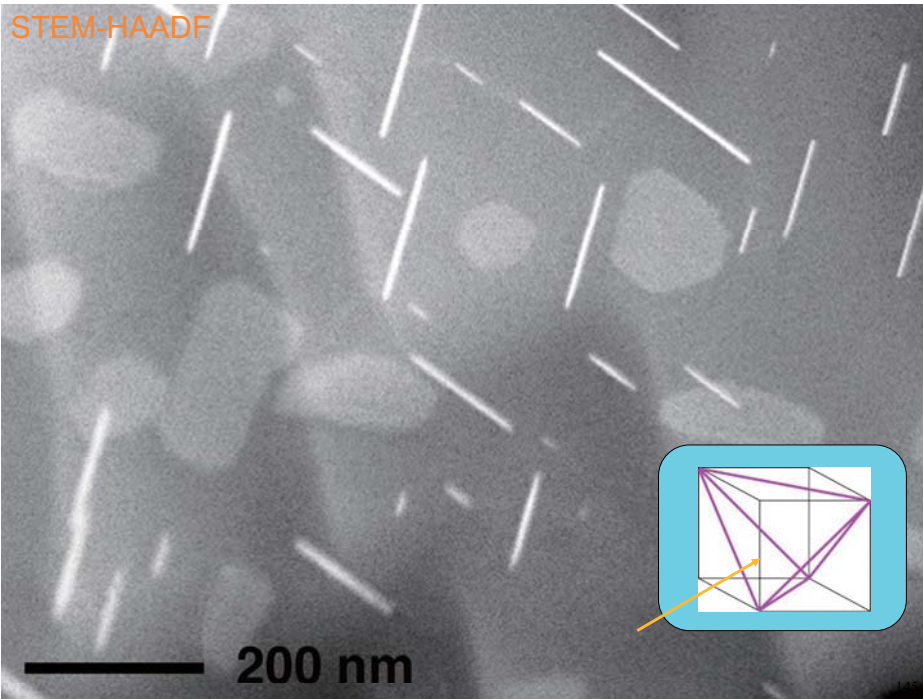


Zコントラストは解釈が容易

## Ag<sub>2</sub>Al precipitates seen by STEM

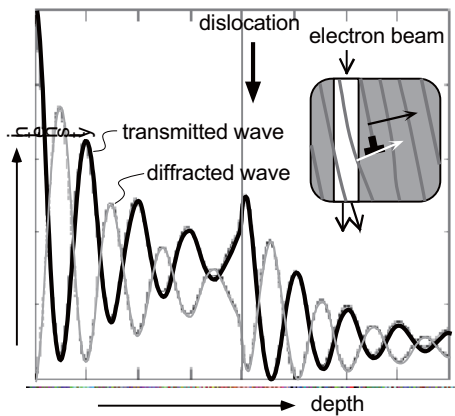
A periodic table of elements with columns labeled 1A through 0. The elements Al (Aluminum) and Ag (Silver) are circled in red. A diagram of a precipitate structure, likely Ag<sub>2</sub>Al, is shown in a blue box on the right side of the table. The diagram depicts a complex crystal structure with multiple atoms connected by lines.

144



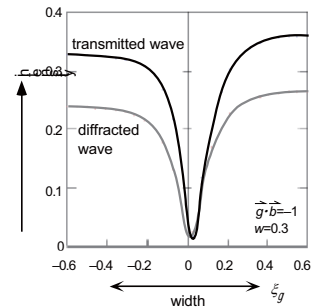
## 二波条件

試料中での透過波と回折波の強度の変化



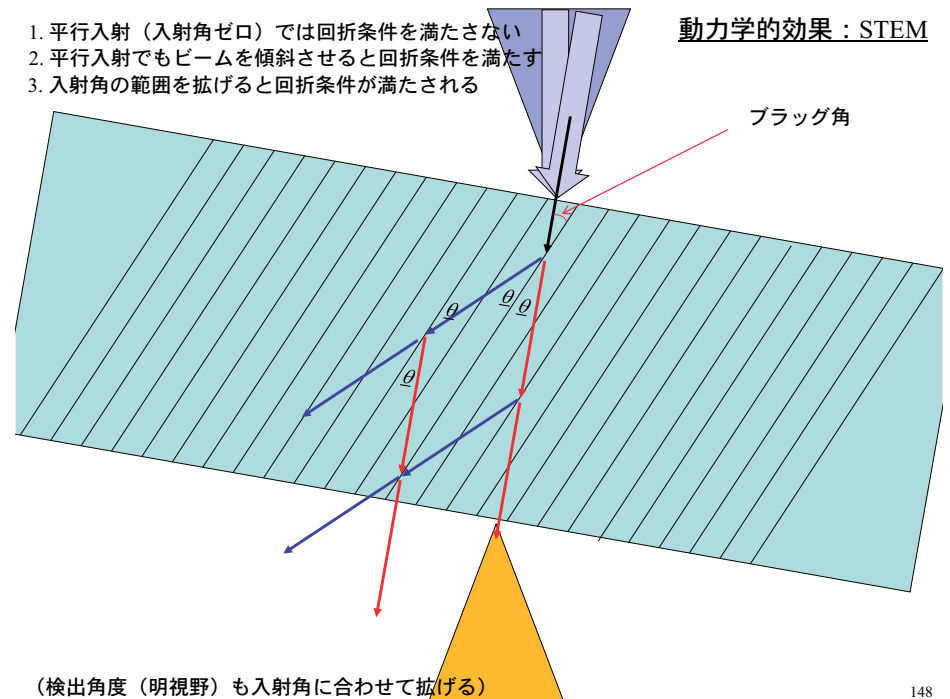
転位の周辺のコントラスト (シミュレーション)

simulated contrast of dislocation

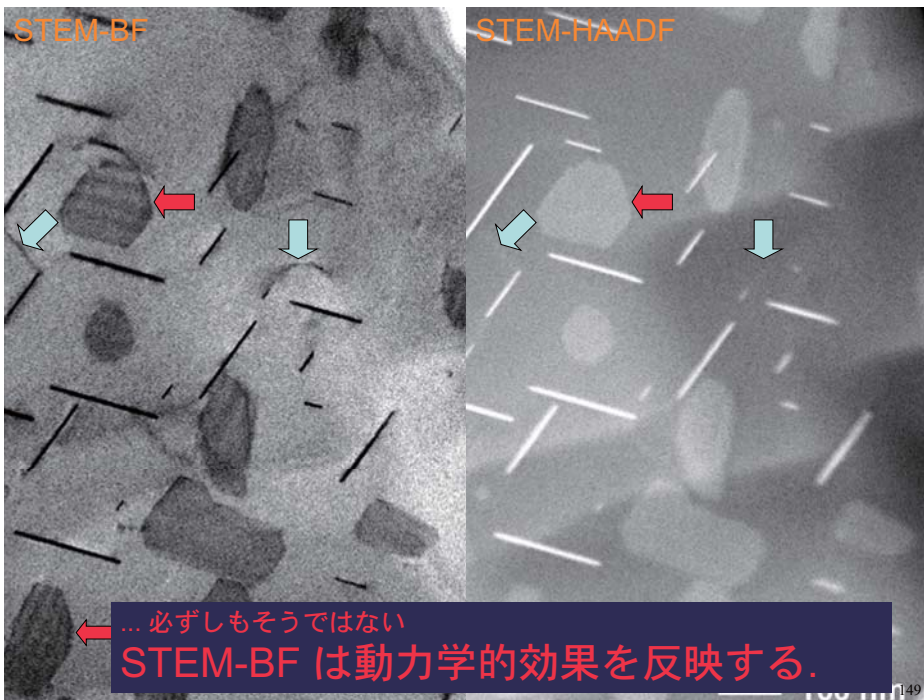


転位の近傍で二波条件が乱される

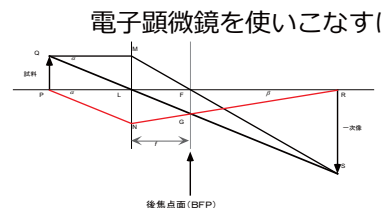
- 動力学的効果：STEM
1. 平行入射 (入射角ゼロ) では回折条件を満たさない
  2. 平行入射でもビームを傾斜させると回折条件を満たす
  3. 入射角の範囲を広げると回折条件が満たされる

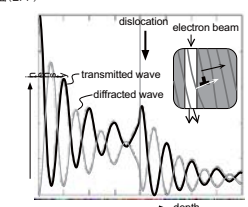


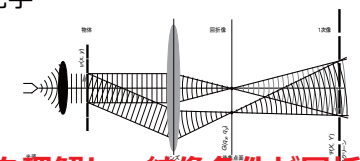


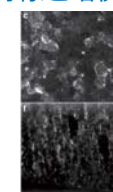


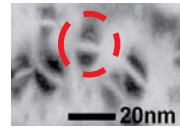
電子顕微鏡を使いこなすには

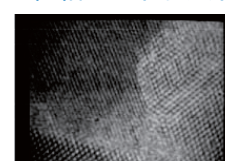
幾何光学 

電子線と試料の相互作用 

波動光学 

明視野像と暗視野像 

動力学的効果 

位相コントラスト 

**光学系を理解し、結像条件が回折パターンと像に与える影響を考慮することが大切**

ARIM-IMR チュートリアルシリーズ「観る」編 3 「回折現象」

本日、ご説明できなかったことは ARIM事業班HPのチュートリアルをご参考ください。

ARIM-IMR チュートリアルシリーズ「観る」編 4 「透過電顕 1: 明視野像と暗視野像」

材料の観察の基本ともいえる走査型電子顕微鏡 (SEM) の入門チュートリアルです。二次電子像、反射電子像、X線に加え、EBSDにも簡単に触れています。粒子としての電子を用いた磁界レンズを組み合わせて電子顕微鏡が生まれました。一方、波としての電子は回折を起こし、この二つを組み合わせたことにより、特定の結晶を結像することができます。

ARIM-IMR チュートリアルシリーズ「観る」編 5 「透過電顕 2: 歪を観る -動力学的効果入門-」

電子顕微鏡では材料中の様々な欠陥を結像することが可能です。その基礎となるのが試料内の透過波と回折波のやりとりで、この動画では動力学的効果と呼ばれる相互作用とその応用例をご紹介します。

ARIM-IMR チュートリアルシリーズ「観る」編 6 「透過電顕 3: 高分解能電子顕微鏡 -位相コントラスト入門-」

高分解能電子顕微鏡とは何かを基礎からご説明いたします。原理的には回折された波が再び干渉することによって試料中の原子配列が再現されるのですが、実際には顕微鏡の光学系が不完全なことによる様々な要因を考慮しなくてはなりません。

ARIM-IMR チュートリアルシリーズ「観る」編 7 「走査型透過電子顕微鏡 (STEM)」

ARIM-IM 入門と材 観察、それ

<https://arim.imr.tohoku.ac.jp/tutorial>

まとめ: 電子顕微鏡技術の発展と材料学の進歩は車の両輪



**Seeing is believing.**

**しかし結像原理を理解していないと誤った情報を得る!**

... 動力学効果、位相コントラスト、3Dトモグラフィー ...