

1. 組織観察

1-7 透過型電子顕微鏡を用いた組織観察(続き)

山本 剛久¹⁾ 小平 亜侑²⁾



1-7-7 はじめに

前回⁽¹⁾に引き続いて TEM を用いた組織観察法やその実例を概説します。すでに紹介している参考文献等を必ず参考にしてください。

1-7-8 回折図形と結晶方位の合わせ方

1-7-8-1 電子線の入射方向と回折斑点の関係

図 1 (a), (b) は、単純立方構造結晶の [001] 方向へ電子線を入射した時、および、その時に得られる回折図形を示しています^{†1}。図 1 (a) に示すように、結晶に対する電子線の入射方向は結晶から電子銃に向かう方向を基準にします。この時に得られる回折図形(図 1 (b)) は、[001] 入射、[001] Zone、[001] 回折図形など様々に表現されます。入射方向の指数が小さい [001], [011], [111] などの回折図形を低指数入射、低指数回折図形のように表現することもあります。いずれの場合にも注意していただきたいことは、この [001] は結晶の線方向で表記されていることです(結晶から電子銃に向かう方向。図 1 (a))。一方、回折斑点に指数を表記するときには、その回折斑点を与えている回折面の指数で表記します^{†2}。どの入射からの回折図形かという回折図形を区別する指数は線方向、その回折図形上に現れている回折斑点の指数は面の指数であることに注意してください。

回折図形において、透過斑点と回折斑点とを結ぶベクトルは電子線の入射方向と直交関係になり、その長さは回折斑点を与えている回折面の面間隔の逆数となります(図 2 も参照ください)^{†3}。また、このベクトルは回折面の法線方向と平

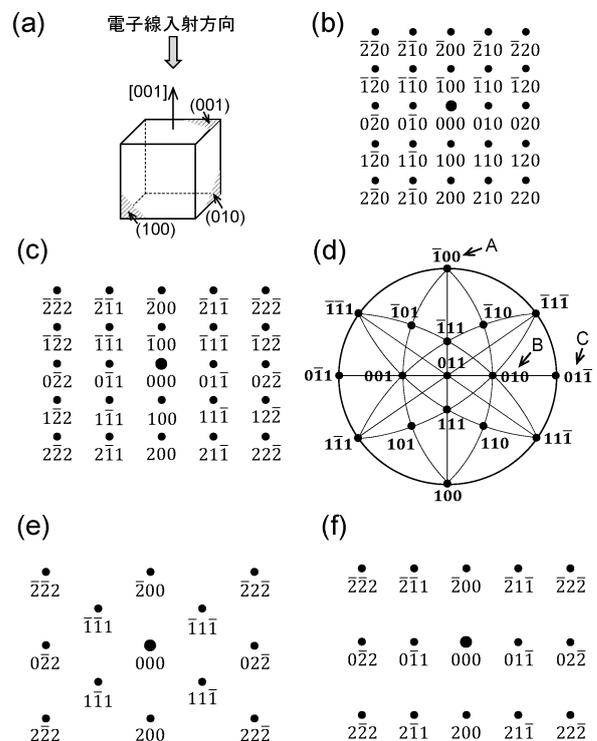


図 1 (a) 電子線の入射方向と結晶の線方向との関係、(b) 単純立方構造結晶の [001] 回折図形、(c) 単純立方構造の [011] 回折図形、(d) 立方晶系の 011 極点図形、(e) 面心立方構造結晶の [011] 回折図形、および、(f) 体心立方構造結晶の [011] 回折図形。

結晶に対する電子線の入射方向は、(a) に示すように、結晶から電子銃の方向を基準として表記します。(b) に示す [001] 回折図形では、結晶の [001] 方向が紙面手前方向に向いています。透過斑点と各回折斑点とを結ぶベクトルは、電子線の入射方向((a) では [001] 方向)と直交関係にあります^{†3}。同一の結晶における種々の回折図形を描くときには、各回折斑点の方位に関する対応関係が矛盾しないように回折斑点の指数を決めなければなりません。例えば、(b) に示した [001] 回折図形では、 $\bar{1}00$ と 100 を入れ替えて指数を付しても構いません。この回折図形だけを考える場合には、回折斑点の指数付けにこのような任意性が含まれます。回折図形を互に対応させるためには、極点図形を参照すると容易に行えます。(d) に示した 011 極点図形を基準として用いると、中心の 011 極点に対して上方向に $\bar{1}00$ 極点(矢印 A)、右方向に 010 極点(矢印 B) が位置しています。この位置関係と、(b) に示した回折図形における 000 に対する $\bar{1}00$ と 010 回折斑点の位置関係を、それぞれ対応させます。また同様に、011 極点に対して上方向に $\bar{1}00$ 極点(矢印 A)、右方向に 011 極点(矢印 C) が位置しています。この位置関係と、(c) に示した回折図形における 000 に対する $\bar{1}00$, 011 回折斑点の位置関係をそれぞれ対応させます。

一方、消滅条件を反映させなければならない面心立方構造や体心立方構造の場合には、消滅側を考慮する必要のない回折図形から、該当する回折斑点を削除します^{†4}。面心立方構造の消滅条件は、 h, k, l が偶数奇数混合となるとき、体心立方の場合には $(h+k+l)$ が奇数となる場合です。

^{†1} 線方向、面の指数は、結晶学で用いられるミラー指数を用います。本文中において指数と表記します。

^{†2} 回折斑点の指数には、面を表す () をつけないのが慣例です。

^{†3} 正確にはゼロ次ラウエゾーン (Zeroth-order Laue zone; ZOLZ) の範囲に存在している回折斑点を指しています。例えば、参考文献(6) 99頁、(8) 174, 179頁などを参照ください。

* 名古屋大学大学院工学研究科; 1) 教授 2) 技術補佐 (〒464-8603 名古屋市千種区不老町) 2022年7月20日受理 [doi:10.2320/materia.61.686]

行です。回折斑点に指数を付すときには、 180° の関係とならない二つの回折斑点の指数が分かれば、あとはこれらの加減算で原則求めることができます。図1(b)の例では、消滅側を考慮する必要がないため¹⁴、 $[001]$ と直交し、かつ、もっとも透過斑点に近い回折斑点(もっとも格子面間隔の大きい面)は、 $100, 010, \bar{1}00, 0\bar{1}0$ となります($\dagger 2$ にも記載しましたが、回折斑点の指数には、面を表す()をつけないのが慣例です)。 $\bar{1}00, 0\bar{1}0$ は、 $100, 010$ のマイナス側(反転方向)ですので、基本的な二つの回折斑点は $100, 010$ となります。この様にして、 $[001]$ 回折図形中の回折斑点に指数を付します。図1(c)に示した $[011]$ 回折図形では、同様にして $100, 01\bar{1}$ の候補が挙げられますので、図に示すように指数を付すことができます(詳細は図1の説明を参照ください)。同じ結晶について $[001], [011]$ などの回折図形を互いに相関させるためには、指数の任意性を排除するようにさらに注意が必要となります。図1の説明を参照ください。図1(e), (f)には、消滅則を考慮しなくてはならない面心立方構造と体心立方構造に関する $[011]$ 回折図形についても示しています。図1(c)に示した単純立方構造の $[011]$ 回折図形から、消滅条件となる回折斑点を削除するだけで得られます。

ところで、立方晶系に属する結晶の場合には、 (hkl) 面の法線方向(透過斑点と回折斑点とを結ぶベクトル)は、同じ指数を用いて表記した線方向 $[hkl]$ と一致しますから、線方向と面の指数関係を容易に理解できます。一方、対称性が低下した結晶系では、必ずしもこれらが一致するとは限りませんので注意が必要です。回折図形を計算表示できるソフトが色々準備されていますので、積極的に利用してください⁽²⁾。もしくは、線方向と面の位置関係を表す極点図形をそれぞれ手元に置いておくことも方法の一つです⁽³⁾。

1-7-8-2 回折斑点とカメラ長の関係

図2は、対物レンズの後焦点面に形成される回折図形と蛍光板上に投影される回折図形との関係を表した模式図を示しています。TEM試料は非常に薄いため、逆格子点は図2に示すようにロッド状に伸長します。このロッド状に伸長した逆格子点の中で、半径 $1/\lambda$ (λ は用いている電子線の波長)のエバルト球と交差する逆格子点が、回折斑点として回折図形上に現れます¹⁵。蛍光板にはこの回折図形が拡大投影されます。この拡大率に相当するのがカメラ長(L)です。透過斑点Tと (hkl) 面の逆格子点Pとを結ぶベクトルは、 (hkl) 面の逆格子ベクトル \mathbf{g}_{hkl}^* となりますから、TPの長さ $|\mathbf{g}_{hkl}^*|$ は、 (hkl) 面の面間隔 d の逆数 $1/d$ となります。 $|\mathbf{g}_{hkl}^*| (= 1/d)$ が、撮影された回折図形上でのT'とP'間の長さ s へと、このカメラ長の値に従って拡大投影されます。一方、回折図形上に現れる hkl 回折斑点は (hkl) 面で生じたブラッグ

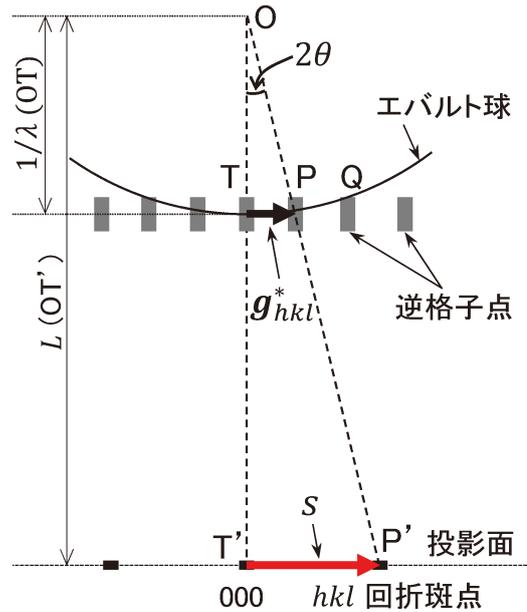


図2 逆格子点、エバルト球、カメラ長の関係などを表した模式図。

Pは、 (hkl) 面の逆格子点を表しています。透過斑点TとPを結ぶベクトルは、 (hkl) 面の逆格子ベクトル \mathbf{g}_{hkl}^* となります((hkl) 面の法線方向と平行¹³)。撮影される回折図形は、エバルト球と交差している逆格子点の配列が拡大投影された図形となります。図に示した相似関係から、 $1/\lambda: |\mathbf{g}_{hkl}^*| = L: s$ の関係が得られます。 $|\mathbf{g}_{hkl}^*|$ は (hkl) 面の面間隔 d の逆数 $1/d$ となります。計算を行うときには各変数の単位に気を付けてください。また、回折図形上の長さは角度の情報も含んでいます。図において角度 ΔTOP は、 (hkl) 面でのブラッグ回折角度 θ の2倍となります。回折図形上で測定される透過斑点から回折斑点までの長さ(例えば図中の s)は、 2θ に対応していることとなります。一方、エバルト球と僅かにしか交差していない逆格子点Qの強度は非常に弱くなります。結晶を傾けると(エバルト球を少し右回転方向に傾けると)、エバルト球は逆格子点Qの中心に近い箇所を交差するようになるので、逆格子点Qの強度が増加します。つまり、回折図形上での回折斑点Qの強度が増加します。図9も参照してください。

回折に起因していますので、そのブラッグ回折角度を θ とすると図中のT'P'の長さは 2θ とも相関します(後述する図8も参照ください)。つまり、回折図形上の長さ(距離)は、角度の情報も与えています。

図2に示した相似関係から、以下のような関係式が得られます。

$$1/\lambda: 1/d = L: s \quad (1)$$

この関係式から回折斑点の指数を求めることができます。図3は、単純立方構造結晶に対して適当な方位から撮影した回折図形を示しています。この回折図形中に矢印Pで示した回折斑点の指数を求めます。まず、図3に示すように透過斑点Tからの長さ s を計測します。この s を式(1)に代入して面間隔 d を求めます。格子定数が a である単純立方構造結晶の (hkl) 面の面間隔 d_{hkl} は、以下の関係式で与えられます。

$$1/d_{hkl}^2 = (h^2 + k^2 + l^2)/a^2 \quad (2)$$

この関係式を用いて、上で求めた面間隔 d と一致する d_{hkl} を探せば、それがその回折斑点の指数 hkl となります。

^{†4} 消滅側とはブラッグの回折条件を満たしているにもかかわらず回折が生じない指数条件です。例えば、参考文献(6)77頁、(8)135頁などを参照ください。

^{†5} 紙面の都合上説明を省略していますので、例えば参考文献(6)75頁、83頁、(8)126頁などを必ず参照してください。

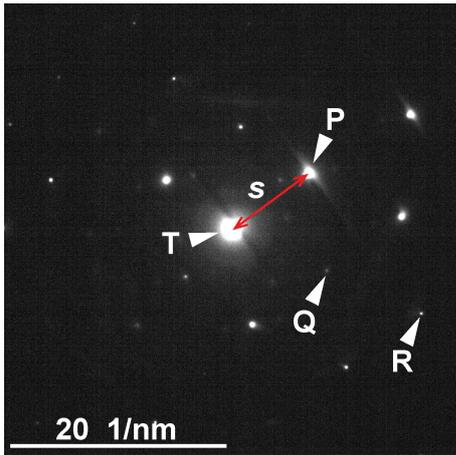


図3 低指数入射ではない方向から撮影した単純立方構造結晶の制限視野回折図形の一部。

図中 T は透過斑点, P, Q, R は回折斑点です。図は CCD カメラで撮影しています。スケールバーは、CCD カメラで撮影した時に自動的に表示されるスケールを表しています。単位が長さの逆数になっていることに注意してください。図中の回折斑点 P の指数を求めます。図中のスケールバーを用いて、TP の長さ s を測定します。この長さの逆数 $1/s$ が回折斑点 P を与えている回折面の面間隔 d となります。ただし、CCD カメラを操作するためのソフトが正しく校正されているか予め確認しておくことが必要です。格子定数が分かっている結晶を用いて回折図形を撮影して図形上に表示されるスケールの精度を確認しておくとも良いでしょう。一方、フィルムを用いて撮影している場合には、長さ s の計測に用いた回折図形写真の引き伸ばし倍率 M (計測時にネガフィルムを直接用いる場合には $M=1$)、撮影時に使用したカメラ長 L を用いて、 $d=(ML\lambda)/s$ から求めます。計算するときには、各変数の単位に十分気を付けてください。ところで、図中に示した回折斑点 Q, R は透過斑点に対して等間隔に並んでいます。このような場合には、TR の長さを計測して、2 で除すと読み取り誤差を少しは小さくできます。また、回折斑点 Q は強度が低いため、図では恐らく確認できないかと思えます。このような強度の弱い回折斑点を確認したり、回折斑点間の距離や回折斑点の強度分布など色々な情報は、Digital Micrograph 上で対応できます。図 4 を参照ください。

ところで、 s の測定には数%程度の誤差が含まれますから、高指数面の場合や、複雑な結晶構造の場合には、往々にして候補となる回折面が多数現れてしまいます。この場合には、回折図形を平行照射条件下で正しく撮影することや⁽¹⁾、基準となる回折斑点(予め指数が確定している回折斑点など)を用いて s の誤差を低減することが必要となります。基準となる回折斑点を得るために、結晶を適切に傾斜させて低指数入射での回折図形を取得してしまうことも方法の一つです⁽⁶⁾。

1-7-8-3 その他に知っている便利な方法

Digital Micrograph⁽⁷⁾ を用いた s の測定：図 4 は、Digi-

⁽⁶⁾ 低指数入射の場合には、回折斑点の指数付けが容易となります。参考文献(2)で紹介したソフトを用いても容易に回折図形を描くことができます。

⁽⁷⁾ 前回は説明したように Digital Micrograph は Gatan.Inc. が提供している TEM の操作系や CCD, EDS などの設備を統合制御するソフトウェアです。単にシステム制御のための機能だけではなく、画像処理や画像のデータ解析、定量、定性分析など非常に多くの機能を提供しています。

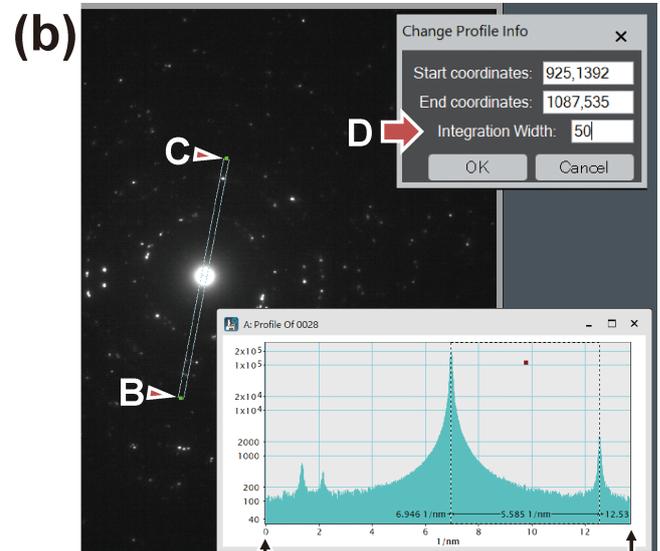
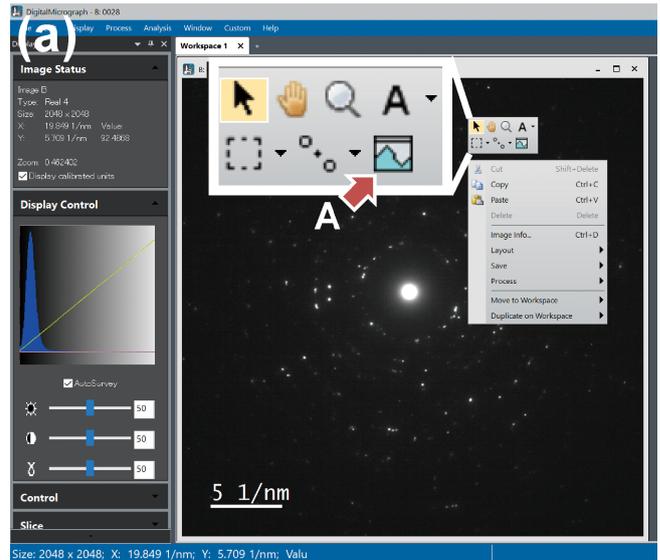


図4 Digital Micrograph に読み込んだ回折図形とその解析に関する例。

(a)に示すように、DMへ読み込んだ回折図形上で右クリックするとプルダウンメニューが現れます。このメニュー上の矢印 A は、画像上の強度プロファイルを表示するためのコマンドボタンを示しています。このコマンドボタンをクリックしてから、マウスを用いて回折図形上をドラッグすると、(b)に示すように、その範囲の強度プロファイルを表示できます。ドラッグした時には、その範囲が線状で指定されますが、その線をダブルクリックすると(b)の右上に示すメニューが現れます。矢印 D のメニューに数字を入力することで、ドラッグした範囲の横幅を指定できます。この例では、50 pixel を入力しました。すると、ドラッグしたときには矢印 BC 間が線状でしたが、この幅が50 pixel の細長い長方形に広がります(bはこの状態を示しています)。横幅を変えると、その幅方向の積算値が、BC 方向に対して表示されます。この時の強度プロファイル(b)の右下に示しています。BC 間に含まれる透過斑点や回折斑点の強度、および、その距離が確認できます。この例では、さらに、縦軸表示を対数値に変更しています。対数値表示ですと、強度の弱い(直接視認できない)回折斑点も確認することができます。この強度プロファイル上でドラッグすると、その間の距離も表示できます。紙面の都合上細かい操作方法や表示される文字が小さくなっていますので、機会があればぜひ一度実機で試してください。また、ここでは回折図形について説明していますが、観察像などでも同様に行えます。

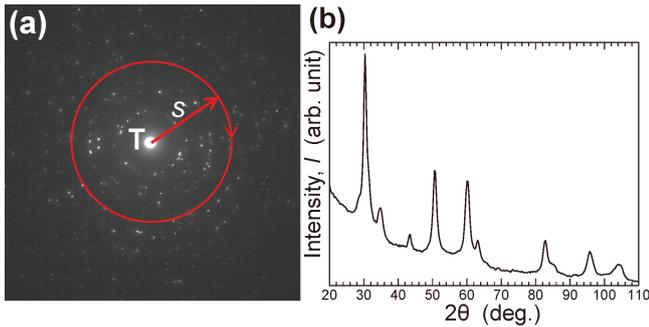


図5 回折斑点の解析に関する一例。

(a)に示す回折図形は、径の大きな制限視野絞りに多数の結晶粒を含めて取得した制限視野回折図形を示しています。多数の結晶粒が含まれているので、回折斑点の配列がリングに近い形状で観察されています。透過斑点Tから同じ距離にある回折斑点は、同じ面間隔の結晶面で回折が生じています。そこで、透過斑点を中心として円周状に回折斑点の強度を積算して、半径sに対してプロットを行うと、粉末X線回折の時に得られるチャートと同様のプロットが得られます。(b)は電子線の波長(200 kVで取得していますので0.00251 nm)での散乱角度からCu K α 線(0.154 nm)での散乱角度に変換してプロットを行っています。このようなプロット表示を行うと、回折図形に含まれている結晶相の区別を行うときに重宝します。変換ソフトとしては、IP Analyzer⁽⁴⁾などが知られています。

tal Micrograph(以下、DM)を用いてsを求める方法を示しています。図4(a)はCCDカメラで撮影した回折図形をDMに読み込み、回折図形上で右クリックしたときに現れるメニューを示しています。このメニューで矢印Aのコマンドをクリックし、図4(b)に示すように透過斑点と回折斑点を通るようにドラッグすると、その間の強度プロファイルが現れます。詳細は図面の説明を参照してください^{t8}。

円周方向の積算：図5は、多数の結晶粒を含めた回折図形について、透過斑点を中心とした円周方向に回折斑点の強度を積算して、透過斑点からの距離に対して表示する方法を示しています⁽⁴⁾。得られる情報は、X線を用いた $\theta-2\theta$ 法で得られるX線チャートと同様な表示となります。例えば、異相が含まれていると予想される組織を観察しているとします。この時に、異相が含まれているか否かを回折図形から調べる場合、組織のコントラストなどを参考にして異相が容易に見つけられるのであれば対応は簡単です。そうではない場合に、やみくもに結晶粒ごとの回折図形を取得し、それぞれに指数付けを行って解析していくことは現実的ではありません。この様なときには、図5で示した方法が有効です。詳細は図5の説明を参照ください。

低指数回折図形を探すのが手取り早い：候補となる結晶構造があり、観察している相が、その結晶構造なのか否かを確

^{t8} 使用しているTEMにDM制御のCCDが設置されている場合には、取得した回折図形と撮影条件などのデータとが連動されています。この場合にのみ、図4(b)で示すような回折図形上の距離が正しい値として(誤差などは別として)表示されます。撮影条件が連動していない回折図形をDMに読み込んだ場合には、単に図形上での物理的な長さ(多くの場合ピクセル数)が表示されますので、注意してください。

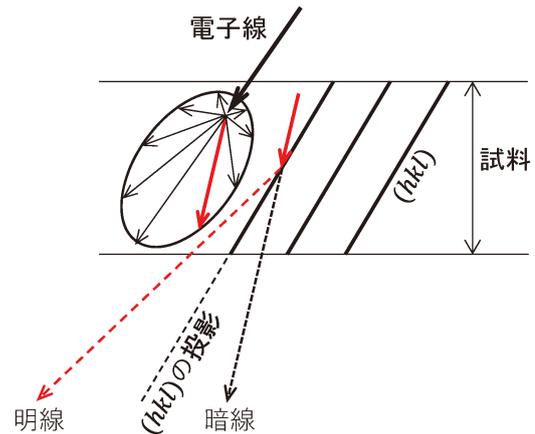


図6 菊池線に関する模式図。

試料に入射した電子線の一部は、試料との相互作用により非弾性散乱します(図中左に示した楕円状の散乱)。この非弾性散乱した電子で、(hkl)面とブラッグ条件を満たす電子(図中実線の赤矢印)は、試料から赤点線矢印のようにコーン状に散乱します(図はその断面を模式的に示しています)。これが菊池線の明線です。ブラッグ回折を起こす電子(赤点線矢印)の分だけ強度が低下して、そのまま透過していく電子線(黒点線矢印)は菊池線の暗線です。これらの菊池線は、(hkl)面の傾斜とともに傾きますので、試料傾斜に対して敏感となります。

認する場合には、適当な回折図形を撮影して前述のように指数付けを行うことで確認しても構いません。ただ、上述したように曖昧性が多分に含まれるときには、低指数入射の回折図形を取得してしまうことが確実です。この方法については後述しますので参照ください。

1-7-8-4 結晶方位の合わせ方

菊池線について：電子線の一部は試料内で非弾性散乱を生じます^{t9}。この非弾性散乱された電子が試料内で回折すると、回折図形上には線状の明るいコントラストが現れます。このコントラストのことを菊池線と呼称します。例えば、結晶をある特定の方向へ傾斜させてその組織を撮影する場面はしばしば生じます。この時には、結晶の傾斜角度を敏感に反映する、この菊池線を使用します。

図6は菊池線について模式的に示しています。試料内で生じた非弾性散乱電子の一部が、ブラッグ回折条件を満たす結晶面において、その回折角度方向へコーン状に広がります^{t10}。このコーン形状の断面に対応する線状のコントラストが回折図形上に菊池線として現れます。試料が傾斜すると回折面も傾斜し、コーンの方向もその傾斜とともに変化しますので、菊池線は、結晶の傾斜とともに回折図形上を移動し

^{t9} 加速された電子線が物質に入射すると、特性X線、二次電子、吸収など様々な相互作用が生じます。この時に、入射した電子線はエネルギーを失いながら散乱します。この時の散乱を非弾性散乱と呼称します。対してエネルギーを失わずに散乱することを弾性散乱と呼称します。菊池線については、例えば参考文献(6)101頁、(8)175頁などを参照してください。

^{t10} コッセルコーン(Kossel cone)と呼ばれます。例えば参考文献(8)175頁などを参照してください。

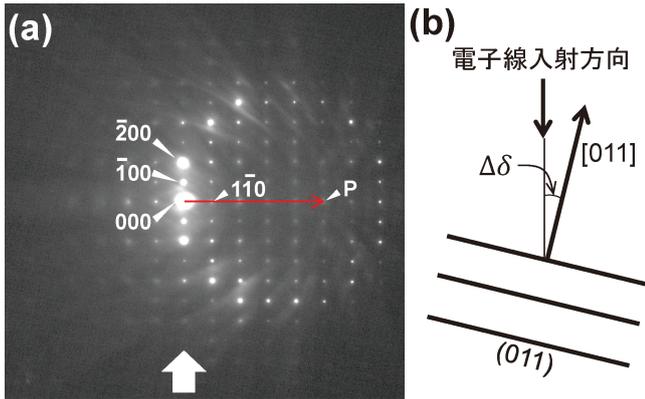


図7 (a)[011]入射から僅かに傾斜させたときの回折図形、および、(b)その時の結晶面の傾きを(a)に示したブロッグ矢印の方向から描いた模式図。

(a)に示した回折図形中に多数認められる線状や帯状の白いコントラストが菊池線(菊池バンド)になります。結晶を僅かに傾斜させても、回折斑点の配列は[011]回折図形から変化していません(ただし、回折斑点の強度は変化しています)。ここでは正確に求めることはしませんが、この回折図形中の菊池線は、矢印Pで示す位置におおよそ集まっているように見えます。結晶の[011]方向は、この回折図形中に示した赤矢印の方向へ傾いている状態になります。この傾斜角度 $\Delta\delta$ ((b)に示す角度)は、いずれかの回折斑点を用いて大よそ求めることができます。例えば、 $\bar{1}00$ 回折斑点を用いて $\Delta\delta$ を求めます。図に示した回折図形は、SrTiO₃結晶を用いて撮影しています(格子定数は0.3905 nm)。SrTiO₃の(100)面でのブラッグ回折角度を θ とすると、回折図形上の000と $\bar{1}00$ 間の長さ s は、 2θ に対応します。 $2d_{100} \sin \theta = \lambda$ の関係式から $2\theta \sim 0.37^\circ$ と求められます。透過斑点から回折斑点Pまでの長さを s' とすると、 $\Delta\delta = 0.37 \times s'/s$ から $\sim 1.8^\circ$ と求めることができます。ここで説明したように、回折図形上での長さは、角度にも対応していることを理解しましょう。

ます。この動きを回折図形と比較してみます。図2に示したように、回折斑点はエバルト球と交差した逆格子点を反映しています。エバルト球が少し傾いた(試料を傾斜した)状態を考えてみます。逆格子点は伸長したロッド状ですから、エバルト球が少し傾いても直ちに逆格子点がエバルト球から離れることはありませんので、交差している逆格子点の位置関係は変化しません。つまり、回折図形上に現れる回折斑点の位置関係には変化が生まれません。僅かな傾斜を知るためには、回折図形よりも菊池線を用いることが有効です。

図7は[011]入射から僅かに結晶を傾斜させたときの回折図形を示しています。回折斑点を確認すると、それらの配列は[011]入射時と変化していません(各回折斑点の強度は変化しています。これは、図2に示したように僅かな傾斜によるエバルト球の傾きによってロッド状の逆格子点との交差具合が変化するためです)。一方、回折図形中には多数の明線が観察されます。これらの明線が菊池線です。この菊池線をよく眺めてみると、図中矢印Pの箇所に集まっていく様子が分かります。この集まる場所(交差する場所)が結晶の[011]方向に対応します。結晶の[011]方向は、透過斑点と矢印Pとの長さに相当する角度 $\Delta\delta$ だけ、電子線に対して傾いていることとなります。このように菊池線は、回折図形と比べてより敏感に試料の傾斜を反映します。

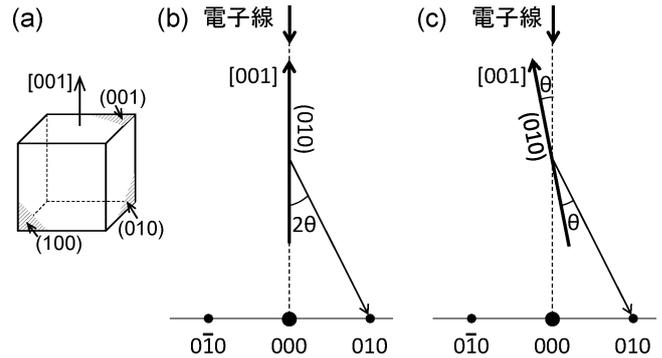


図8 回折図形と正確なブラッグ回折との関係¹³。

(a)に示した結晶の方位関係を参考にして、(b)を確認してください。電子線は結晶の[001]方向に入射していますので、(010)面は電子線に対して平行です。回折図形には、この(010)面で回折が生じた010回折斑点が現れます。この時の回折角度を θ とすると、 2θ と回折斑点は図に示すような関係になります。回折を起こす面に対して平行入射の状態では、ブラッグ回折が生じていることとなります。この一件矛盾するよう見える現象は、図2に示したように逆格子点がロッド状に伸長していることで説明できます。回折斑点は、エバルト球がロッド状である逆格子点の一部と交差することで現れるからです。ただし、エバルト球は逆格子点の中心位置で交差しているわけではないので、(b)に示した状態は、正確なブラッグ回折の条件下にはありません。この時の回折波の強度は大きく低下しています。これに対して(c)は、結晶を θ 回転させて、(010)面を電子線の入射方向に対して傾けた状態を示しています。X線回折でしばしば見るいつものブラッグ回折に関する図面と同様です。電子線が(010)面に対して θ 傾いており、回折波はその面に対して θ 傾いて進行していきます。この時には、正確にブラッグの回折条件を満たしていますので、010回折斑点の強度は非常に強くなります(菊池線が010回折斑点に重なっている状態です)。図2に示したエバルト球が、この θ 分だけ正確に傾いている状態とも言えます。明るい線状の菊池線を回折斑点に重ねると、という表現がしばしば用いられますが、単に重ねるといふ意味合いだけではなく、回折斑点の強度を大きく高めているという意味も含まれています。

この $\Delta\delta$ は、図7中に示した透過斑点から点Pまでの長さとして、透過斑点といずれかの回折斑点との長さを比較することで求めることができます。図7の説明を参照してください。

菊池線と回折面：図2にエバルト球と逆格子点の関係を示しました。この時の入射電子線とその回折斑点を与える回折面との位置関係は、図8(a)に示すように平行になっています¹³。入射した電子線が、その方向と平行な面でブラッグ回折を生じていることになってしまいます。この矛盾は、図8(a)のような関係であっても、図2で示したように、エバルト球は伸長したロッド状の逆格子点と部分的に交差できるためです。入射電子線とブラッグ回折を生じさせる面との位置関係を正しく描くと図8(c)のようになるはずですが、つまり、正確なブラッグ回折を(010)面で生じさせるためには、入射電子線に対してブラッグ角度 θ となるように結晶を傾斜させる必要があります。

図9(a)は[011]回折図形を示しています。この回折図形中に矢印Pで示した200回折斑点を与える結晶面を、正確にブラッグ条件となるように傾斜させたときの回折図形を図9(b)に示します。傾斜の方法は図12の説明を参照してください。

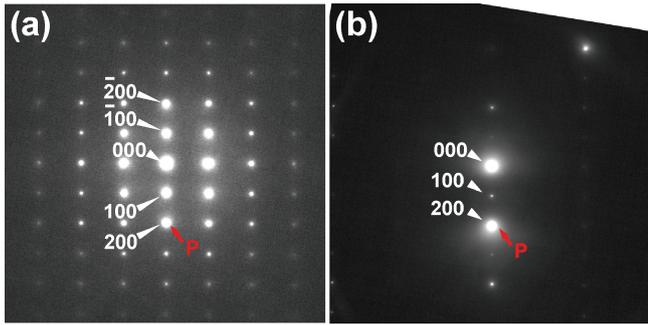


図9 二波条件の回折図形の例。(a)[011]入射, (b)[011]入射から傾斜させ200回折斑点を強く励起させたときの回折図形。

(b)の回折図形では、透過斑点と200回折斑点の二つが強く励起(明るく)されています。この回折条件では、透過波と(200)面で回折した回折波で像が再生されることとなります。結晶を傾斜させる具体的な方法については図12を参照ください。

い。図9(a)に示した同じ回折斑点の強度と比較してみてください。回折斑点の強度が大きく増加している(この状態を強く励起していると表現します)ことが分かるかと思えます。これは、回折斑点に対応する菊池線が丁度この回折斑点上に重なっているためです。このように透過波と一つの回折波のみが強く励起されている状態を二波条件(二波励起)と呼称します。結晶中では、透過波とこの回折波のみが強く励起された特別な状態になります。暗視野観察などにおいて重要な照射条件となります。

ところで、観察される像は、回折図形上に現れている透過斑点(透過波)と回折斑点(回折波)で構成されますので、それぞれの強度(回折斑点の明るさ)が像の再生に強く関係します。図9(b)に示したように、特定の回折波が非常に強く励起されているときには、この回折波の影響のもとで像が再生されます。つまり、菊池線を回折斑点に重ねるということは、回折斑点の強度を高め、その影響下での像を観察する、という意味合いにもなります。例えば、図8で説明したように、正しくブラッグ回折条件に設定(傾斜)するためには、結晶の傾斜角度を計算して、その角度に結晶を傾けても構いません(現実的ではありませんが)。TEMはこの作業を、“回折斑点の強度変化を直接視認しながら調整できる”，という優れた利点を有しているのです。

菊池マップ：結晶をある特定の方向へ傾斜させたいときに、予め準備しておく便利な図が図10に示す低指数入射時の基本的な回折図形を整理した図面です(菊池マップとしばしば呼称されます)。結晶を特定方向へと傾斜させるための地図のような役割を果たします。このマップ上に描く各回折図形の回折斑点指数は、図1の説明でも述べたように、互いに矛盾が生じないように考慮しなければなりません。極点図形を用いて指数を付してください。

回折図形を用いた結晶の傾斜について、極点図形を参照して説明します。図11(a)-(c)には、001, 011, 111極点図形を示しています。001と011極点図形を比較すると、結晶を001から011へ傾斜するときには、図中に矢印で示した軸を中心

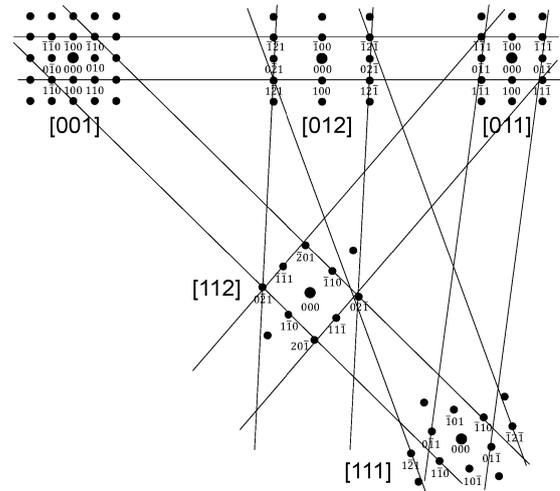


図10 単純立方構造結晶に関して、主な低指数回折図形とその位置関係を表した模式図。図中の細線は、各回折図形間を傾斜させていくときの目安となる回折斑点をつないでいます。

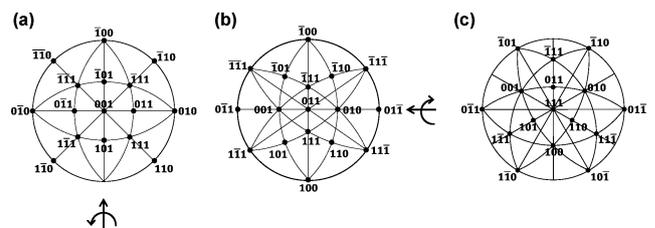


図11 (a)001, (b)011, (c)111極点図形。

各極点図形の外周円に位置している極点の位置関係と、図10に示した対応する回折図形における回折斑点の位置関係を互いに確認してみてください。図1の説明も参照してください。[001]から[011]へ結晶を傾斜させるためには、(a)中に示した矢印のように回転させます。この時には、 $\bar{1}00$ と100とが共通の極点となります。回折図形上でこれらの回折斑点を維持するように結晶を傾斜させていきます。具体的な傾斜方法は、図12を参照してください。

として極点図形を回転させればよいことが分かります。つまり、001と011極点図形において共通に含まれている $\bar{1}00$ と100極点を維持しながら回転させることとなります。回折図形においても同様に、 $\bar{1}00$ と100回折斑点を維持したまま結晶を傾斜させればよいこととなります(図10の[001]と[011]回折図形で確認ください)。011極点図形を見ます。011極点から下方向に111極点があります。結晶を011から111へ傾斜させるためには、この方向と直交する $0\bar{1}1$ と $01\bar{1}$ 極点を結ぶ矢印で示した軸を回転軸として回転させると、111極点が極点図形の中心に移動できることが分かります。つまり、011と111回折図形中とともに存在している $0\bar{1}1$ と $01\bar{1}$ 回折斑点を維持するように傾斜させれば良いこととなります(図10の[011]と[111]回折図形で確認ください)。

傾斜方法を具体的に図12に示します。図は、[011]から[111]入射へ傾斜させる過程を示しています。互いの回折図形に共通する回折斑点が消えないように結晶を傾斜させてい

きます。二軸ホルダーはX軸、Y軸まわりの傾斜ができます(以下、X軸方向、Y軸方向と表記します)。それぞれのペダル(もしくはボタン)を踏むと、菊池線が蛍光板上のどの方向へ移動するかを予め確認しておきます(図12(a)に示しています)。図12(b)はX軸方向へ少し傾斜させたとき、図12(c)はそのあとにY軸方向へさらに傾斜させたときの回折図形を示しています。X軸方向へ傾斜させると、結晶の[011]は+X方向に移動しています(図12(b))。Y方向に傾斜させると、さらに+Y方向に移動しています(図12(c))。このように、X、Y軸傾斜を互いに調整し、回折斑点Pを維持しながら(菊池線が乗っている状態)結晶を傾斜させていきます。やがて約35.3°傾斜させると[111]回折図形が現れま

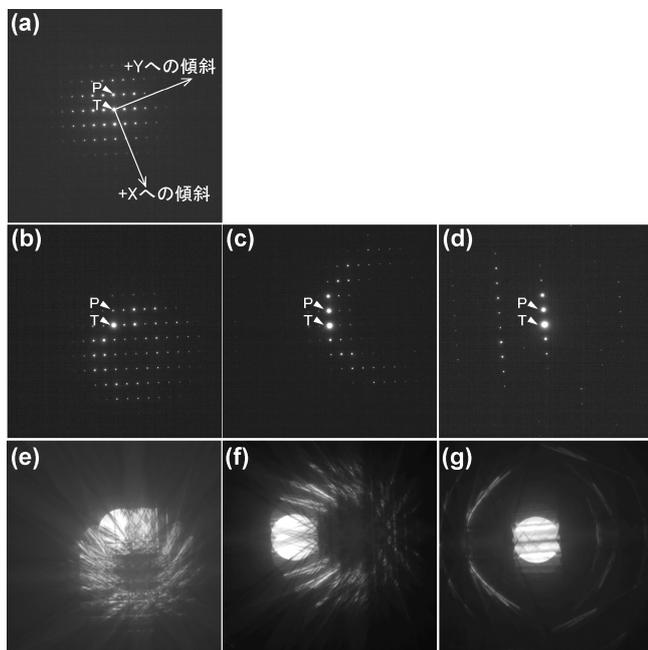


図12 (a)は[011]入射、(b)は二軸傾斜ホルダーのX軸傾斜のみを行った時、(c)は(b)の状態からさらにY軸傾斜のみを行った時、(d)はX、Y軸傾斜を組み合わせたさらさらに傾斜させたときの回折図形(正しくは制限視野回折図形)を示しています。(e)、(f)、(g)は、試料上に電子線を収束させて取得した収束電子線回折図形を示しています。(b)と(e)、(c)と(f)、(d)と(g)はそれぞれ同じ電子線入射方向です。X、Y軸傾斜を行うと、結晶の方向(ここでは[011])が、(a)に示すように、回折図形において+X、+Y方向へ移動します(用いている機種によります)。(a)の状態では結晶の[011]方向が紙面手前方向に向いています。この状態からX軸傾斜を行うと、[011]方向が(b)に示すように+X方向に移動しています(配列している回折斑点全体を眺めると、配列の中心位置が図中右下方向(+X方向)に移動している様子が分かります)。この傾斜から+Y方向のみに傾斜させると、(c)に示すように、結晶の[011]方向が右斜め上方向((a)に示した+Y方向)へ移動していることが分かります。X、Y軸傾斜を組み合わせたまま、図中に示した回折斑点Pを失うことなく傾斜させていくと、やがて[111]が現れます。(b)-(d)の回折図形では、菊池線が明瞭に現れていません(試料が薄い箇所では回折図形を取得しているためです)。対して、(e)-(g)では明瞭に菊池線を確認することができます。いずれも結晶の[011]方向を容易に知ることができます。試料が電子線に対して脆弱でない場合には、電子線を試料上で収束させて回折図形を確認しながら傾斜させる方法が便利です。

す^{†11}。途中には、図10に示したような他の低指数入射回折図形も現れます。傾斜時に菊池線が見えにくいときには、試料の厚い箇所へ移動すると明瞭に観察できます。

図12(e)-(g)に示した回折図形は、(b)-(d)に示した回折図形と同じ傾斜条件で取得しています。これらの回折図形は、電子線を試料上で収束させて撮影した収束電子線回折図形です^{†12}。(b)-(d)に示した回折図形(正しくは、制限視野回折図形)と比較すると、収束電子線回折図形では菊池線が鮮明に現れていて、結晶の低指数入射方向の位置を容易に判断できることが分かります。試料が電子線に対して脆弱でない場合には、この方法を用いて傾斜を調整することを勧めます。図12の説明を参照ください。

試料を傾斜させると、観察視野内において試料の位置が移動していきます。この移動する量は、観察している場所が、試料の中心位置から離れているほど大きくなります^{†13}。観察する箇所はできるだけ中心位置に近いことが適しています。また、慣れてくるとX、Y軸傾斜量と回折図形上での菊池線の移動量とが感覚的に大よそ対応するようになりますので、像を直接見ながら傾斜させることもできるようになります。像を直接見ながら傾斜できるようになると、傾斜とともに移動していく試料位置を適宜修正しながら傾斜させることができますので、回折図形を見ながら試料を傾斜させるときにしばしば生じる視野消失(観察すべき場所が分からなくなってしまふこと)の問題に悩まされることが無くなります。

ところで、目的とする入射方向へ結晶を回転させるためには、少なくとも低指数入射をはじめに見つけなければなりません。多結晶試料の時に、低指数入射の回折図形をひとまず得るための簡易的な方法を以下に紹介します。

結晶粒のコントラストを利用する：小さい対物絞り径を用いた明視野像で、結晶粒の明るさを確認します(図13(a))。他の結晶粒よりも黒っぽい結晶粒が散見されるかと思えます。このような結晶粒は、低指数に近い可能性が高いと判断できます。低指数入射時には多数の回折波が生じています。小さい対物絞り径を用いると、これら多数の回折波を制限しますので、像の明るさが大きく低下します。図13(a)に矢印Aで示す結晶粒の回折図形を図13(b)に示します。多数の回折斑点が確認されていますので低指数入射に近いことが予想できます。この回折図形をよく見ると図中の矢印方向に菊池線が何となくですが集まっていく様子が分かるかと思えます。こ

†11 二軸傾斜ホルダーの傾斜角度は、直角関係となるX、Y軸まわりの回転角度でそれぞれ表示されます。実際の傾斜角度は、この二つの軸まわりで回転させたそれぞれの角度の合成角度として計算されます。ホルダーの取扱説明書には、X軸、Y軸傾斜角度とその時の合成角度との対応表が掲載されています。

†12 収束電子線回折図形は、電子線を試料上で収束させた状態でDiff modeに切り替えれば取得できます。試料上で収束させているので、回折斑点はディスク状に変化します。このディスク径は収束角度が大きいほど(穴径の大きな集束絞りを用いるなど)大きくなります。参考文献(7)を参照ください。

†13 試料の中心位置とは、ホルダーへ試料を設置するときの設置スペースの中心(X軸、Y軸の傾斜軸が交わる位置)のことを指しています。

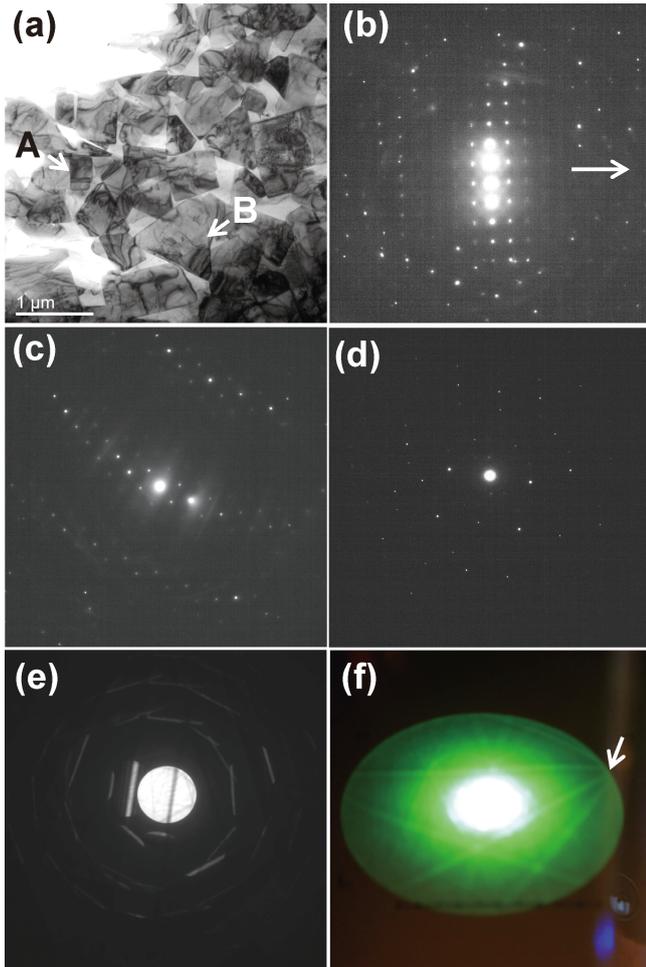


図13 (a)はWC-Co超硬合金の明視野像、(b)は(a)において矢印Aで示したWC粒子の回折図形、(c)は(a)において矢印Bで示したWC粒子の回折図形、(d)は低指数入射ではない制限視野回折図形、(e)は同じ方位での収束電子線回折図形、(f)は(e)よりも小さなカメラ長で撮影した収束電子線回折図形。(f)は蛍光板を直接カメラで撮影した画像。

(a)に示した明視野像において、やや黒く観察されるWC粒子Aでは、(b)に示すような低指数入射に近い回折図形が得られる確率が高くなります。また、対称性の低い結晶構造(この例で用いたWCは六方晶系です)の場合には、結晶粒形状が異方性を有していることがあります。例えば、WC粒子の場合には、粒子形状が六角柱に近い形状となります。(a)に示したWC粒子Bは、三角形に観察されています。つまり、六角柱の底面である(001)に近い回折図形が得られる可能性が考えられます。事実、(c)で示すように[001]入射に近いことがわかります(回折斑点の配列が六角形です)。(d)は適当な方向からの回折図形を示しています。菊池線も明瞭に観察されないために、この回折図形からどのように結晶を傾斜すればよいのか見当が付きません。図12で示した収束電子線回折を用いても傾斜方向を決めることができません。ところが、収束電子線回折の状態(f)のようにカメラ長を小さくすると、多数の菊池線を確認することができます(カメラ長は、(e)では80 cm、(f)では15 cmです)。低指数入射方向を見つけるための方法の一つです。

の方向に結晶の低指数方位が位置しています。回折図形を見ながらでもいいですし、像を見ながらでも構いません。その位置が中心に来るように傾斜させていくと低指数入射の回折図形を見つけることができます。また結晶粒形状からも予想

できる場合があります。図13の説明を参照ください。

電子線を収束して回折図形を取得する方法：回折図形を観察するときには、制限視野絞りを挿入して、その位置合わせを行い、回折モード(Diff mode)に切り替えます。ここで紹介する方法は、電子線を収束させて、その状態のまま(制限視野絞りを挿入することなく)Diff modeに切り替えてしまう方法です(関連する内容については図12でも説明しています)。図13(d)-(f)にその例を示します。図13(d)は、適当な方位から取得した制限視野回折図形です。この回折図形からは低指数方向が見当つきません。この同じ方位で取得した図13(e)に示す収束電子線回折でも同様です。ところが、この状態でカメラ長を短くして、より広範囲の回折図形を見ると、図13(f)に示すように多数の菊池線を見ることができます。図の例では、矢印で示す方向に低指数方位が位置していることを予想できます。この位置が分かれば、あとは結晶を傾斜させながら、この菊池線が集まっている箇所を蛍光板の中心位置へ移動させていけば、低指数入射の回折図形を得ることができます。低指数方位を見つけることができれば、図10に示した低指数入射回折図形のどれに相当しているのか判断ができます。該当する回折図形がない場合には、透過斑点と回折斑点間の長さから、菊池マップ上のおおよその位置を知ることができます。それでも不明なときには、ひとまず、透過斑点に最も近い回折斑点を維持しながら傾斜します。他の低指数入射へと傾斜できる確率が高くなります。

1-7-9 暗視野観察

暗視野観察法は、回折斑点のみを対物絞りで選択して観察する方法です(前回の説明¹⁴⁾も参照ください)。回折図形では透過斑点が中心位置となるように調整しているはずですから、目的とする回折斑点を選択するときには、対物絞りの位置を中心位置から移動させることになります。簡易的に暗視野観察を行うときには、この方法でも構いません。ただし、対物絞りが中心位置からずれているために、像質が低下します(歪んだ像になります)。暗視野観察に限らず、対物絞りの位置は常に中心位置にしなければなりません。そのため、目的とする回折斑点をBeam tiltを用いて中心位置(もとの透過斑点位置)に調整することが必要となります。

図14は矩形形状のWC粒子がCo相で結着された超硬合金において、Co相を暗視野観察で確認した例を示しています。TEMには、明視野モード(Bright field mode, 通常使用している観察モードです。以下BF mode)と暗視野モード(Dark field mode, 以下DF mode)が用意されています。暗視野観察では、上述したように試料への照射条件を変更しますので、明視野観察時の光軸を維持できるように、二つの照射条件が用意され、それぞれを個別に調整できるようになっています¹⁴⁾。まず、DF modeに切り替えます。BF modeの

¹⁴⁾ 暗視野観察を行った時には、次の利用者のために必ず照射条件などをもとに戻しておきましょう。

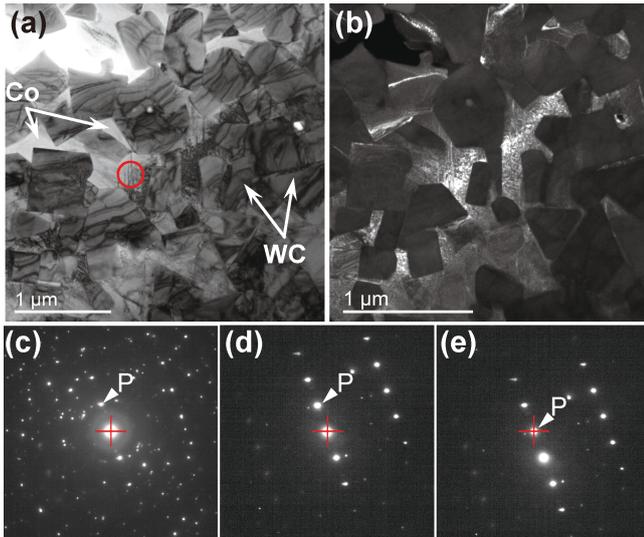


図14 (a)はWC-Co超硬合金の明視野像，(b)は(e)の回折図形に示した回折斑点Pを用いた時の暗視野像，(c)は(a)において赤線で示した領域を含みさらに広い領域から取得した制限視野回折図形，(d)は(a)に示した赤線の領域から取得した制限視野回折図形，(e)はBeam tiltを用いて(d)に示した回折斑点Pの位置を中心へ移動させたときの回折図形．(c)-(d)に示した十字の赤線は蛍光板の中心位置を示しています．(a)に示した赤線の領域はCo相内に位置していますので，(d)の回折斑点PはCo相からの回折斑点となります．(d)では中心位置に透過斑点が位置しています．Beam tiltを調整して，(e)に示すように回折斑点Pを中心位置へ移動させます．この回折斑点Pのみを含むように対物絞りを挿入して暗視野像を観察すると，(b)に示すように回折斑点Pを与えているCo相部分が明るく観察されます．

時と同様に，集束レンズの調整，回折図形の透過斑点の調整などを行います．回折図形の透過斑点は中心位置に来るようきっちりと調整してください．まず，Co相からの回折斑点を特定します(この操作はBF modeで行っても構いません)．制限視野絞りをCo相のみの箇所へ移動して(図14(a)赤丸で示した箇所)，Diff modeに変更し，回折図形を確認します(図14(d))．この時に現れる回折斑点は，Co相に由来していますので，そのいずれかの回折斑点を暗視野観察に使用します．ここでは図14(d)に示す回折斑点Pを用いることとします．この回折斑点PをBeam tiltを用いて中心位置へ移動させます(図14(e))．このときには，試料に対する電子線の傾きが変化しますので，回折図形中の菊池線の現れ方や回折斑点の強度なども変化します．絞り径の小さな対物絞りを，この回折斑点位置(中心位置)へ移動させて，回折斑点のみが含まれるように正確に対物絞りの位置を調整します．Diff modeを解除して得られる像が暗視野像となります(図14(b))．Co相が存在する部分で，かつ，図中矢印で示した回折斑点Pに寄与している領域が明るく観察されています．暗視野観察では回折斑点を用いますので，明視野像と比較すると像の明るさが大きく低下します．電子線をやや収束させるなど，撮影時には明るさの調整が必要となります．また，双眼顕微鏡で暗視野像を確認しながら，傾斜を僅かに変

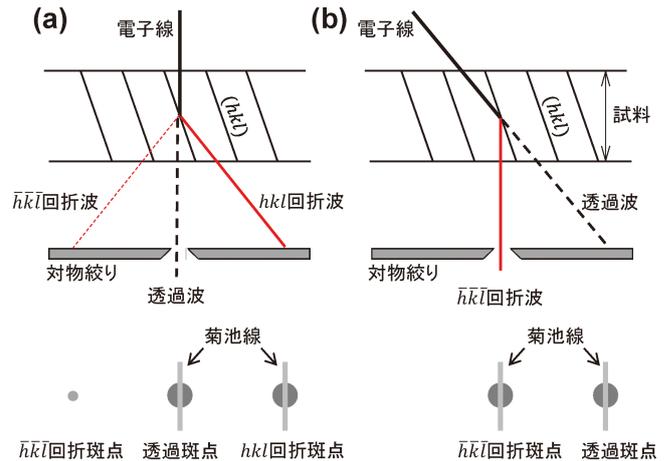


図15 二波条件下での電子線入射方向と回折図形の模式図．(a)は，(hkl)面の二波条件を示しています．試料に入射した電子線が，(hkl)面において赤線の方向へ回折を生じています．明視野観察では，透過斑点が対物絞りを通過するようにして観察を行います．一方，暗視野観察は，回折斑点を通過させるようにして観察します．(a)に示す状態で暗視野観察を行うためには，対物絞りを移動させてhkl回折斑点を通過させることとなります．この時には，光軸に対して斜め方向の電子線を後段の電磁レンズ群へ入射させることとなりますので，像質が大きく低下してしまいます．一方(b)では， $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 回折斑点が中心位置(調整する前の透過斑点の位置)となるように，Beam tiltを用いて入射電子線を傾斜させ， $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 回折斑点の強度が高くなるように調整しています．この状態に調整すると，暗視野観察に用いる回折波は光軸に沿って後段の電磁レンズ群へ入射できるようになります．暗視野観察時には，使用する回折斑点を中心位置となるように調整することを勧めます．

化させて明るさをより適切に調整することもあります．この操作は，図14(e)に示す回折斑点Pの強度を増加させることに対応しています．大きく傾斜させてしまうと，図14(e)に示した回折斑点そのものが消失してしまいます．変化させる傾斜角度は極わずかです．暗視野観察時に像を明るくするためには，用いる回折斑点の強度を高くすることが必要ですので，この回折斑点に菊池線を重ねてしまうことが手取り早い方法です(図14(e)では回折斑点Pの強度を高くしています)．

ところで，暗視野観察の場合には，ある特定の回折波のもとでどのような組織が現れるか，などの結晶学的な知見と組織とを関連付ける観察手法がしばしば用いられます．このために使用するのが，図9で説明した二波条件となります．図15は，この二波条件に関する模式図を示しています．まず，BF modeにおいて(hkl)面の回折を二波条件となるように試料の傾斜を調整します(図15(a))．二波条件ですから，この(hkl)面の回折に対応する菊池線が，回折斑点の位置に重なっています．次に，DF modeに切り替えます．DF modeの光軸が適切に調整されているときには，BF modeと同様の二波条件が確認されます．そして，この回折面の位置はそのままに(試料の傾斜は変えることなく)，Beam tiltを用いて，透過斑点に対してhkl回折斑点と対称位置にある $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 回折斑点が中心位置となるように調整します．菊池線が $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 回折斑点に重なり， $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 回折斑点の強度が高くなります．図

15(b)は、この時の入射電子線の傾きと透過斑点、 $h\bar{k}l$ 回折斑点の様子を示しています。透過斑点が右方向に移動しており、 $h\bar{k}l$ 回折斑点が中心位置に移動していることがわかります(二波条件に限らず、Beam tilt を用いて試料に対する入射電子線の傾きを変化させると、回折図形の位置は移動します)。BF mode と DF mode とを切り替えると、回折図形が図に示のように切り替わるのが確認できます。

図16は、二波条件で転位を観察した例を示しています。用いる二波条件(回折斑点)によっては存在しているはずの転位が、像から消失する様子がわかります。また、この正確な二波条件から僅かに傾斜角度を変えて撮影すると、転位コア近傍の強く歪んだ結晶面部分のみを選択的に高いコントラスト強度で観察することもできます。この観察法は Weak beam 法と呼称されています^{†15}。その例を図17に示しますので参考にしてください。

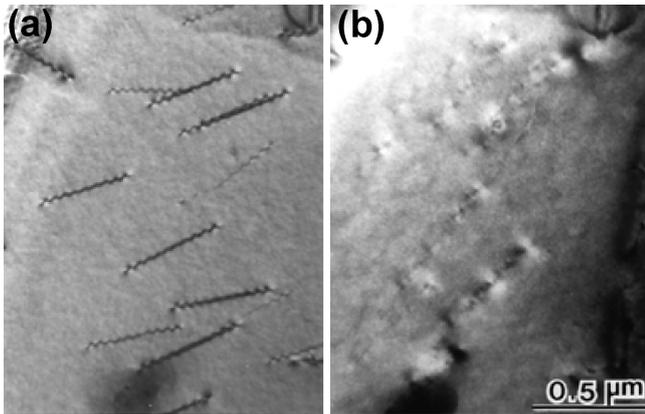


図16 二波条件下で観察を行った転位の像，(a)回折斑点110を励起，(b)回折斑点222を励起。
(a)の条件では線状の転位が観察できますが，(b)の条件では，転位のコントラストが消失しています。

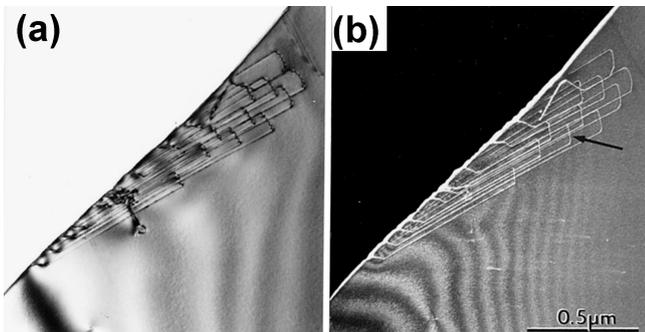


図17 試料端から発生した転位の観察例，(a)二波条件下での明視野像，(b)二波条件から僅かに傾斜を調整して転位コアのコントラスト強度を高くした状態での暗視野像(Weak beam 像)。

†15 Weak beam 法は、観察像のバックグラウンド強度を低減させて、対象とする像のコントラストを相対的に顕在化させる観察法です。例えば、参考文献(6)197頁を参照してください。

高分解能法は、透過波と複数の回折波とを干渉させることで原子構造や格子面を投影させる観察方法です。いずれも対物レンズが高分解能仕様になっていることが必要です^{†16}。原子配列を反映させた像を構造像、格子面を反映させている像を格子像と呼称します。これらの像を観察するときには、電圧中心や対物レンズ非点の調整具合が、得られる像質に強く影響します。図18は電圧中心の調整を模式的に示しています。集束レンズなどの基本的な光軸が調整されている状態で対物レンズの Focus 値を規定値(リセット)にして、Brightness ダイアルで電子線を蛍光板程度の大きさまで広げます。調整に使用するための試料位置を中心位置に移動させます。実際に調整してみると分かるかと思いますが、この調整に使用する試料形状は角のような尖っている箇所が含まれていると容易になります。この状態で HT wobbler を作動させると、電子線の径が増減しながら振動することがわかります。この時に、観察される像の中心位置は振動していると思います。この振動が止まり、一点を中心として像が伸縮するように Beam tilt ダイアルで調整します。大きくずれているときには、1万倍程度で一度調整を行ってから、10万倍程度の倍率で再度調整を試みてみてください。Beam tilt を変化させますので、電子線の中心位置や回折図形の位置がずれます。再度正しい状態に調整を行います。この操作を数回行いながら、適切な状態に電圧中心を追い込んでいきます。

次に、対物レンズの非点調整を行います。高分解能像を観察する倍率にして、試料端の部分を中心位置に移動させます。多くの場合、試料作製時に生じた僅かなダメージ(アモルファス)が試料端で確認することができます(図19)。このアモルファス部分では、粒子状のコントラストが確認できる

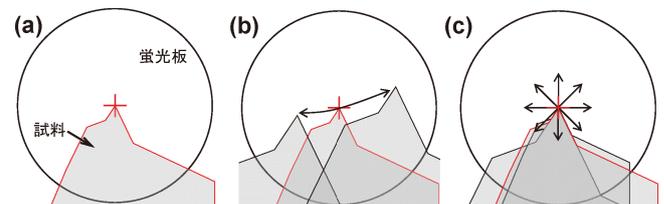


図18 電圧中心の調整に関する模式図。

図中の円は蛍光板を表しています。慣れるまでは、試料端がとがっている箇所を使って調整することを勧めます。(a)に示すように試料の先端を中心位置に移動します。Objective HT wobbler を作動させると、(b)のように試料位置が振動しながら像の大きさが変化します。この時の試料移動の方向や像の伸縮具合は使用時の光軸状態に依存します。Beam tilt を用いて、この振動が小さくなるように調整していきます。電圧中心の調整ができていない状態では、(c)のように、一点を中心として、像が対称的に伸縮する状態となります。ただし、用いている機種仕様などによっては、必ずしも振動の中心が蛍光板の中心と一致しない場合もあります。

†16 多くの TEM では搭載している対物レンズの仕様は明記されています。確認してください。

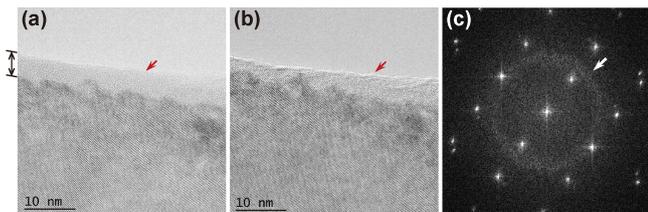


図19 非点調整に関する模式図。

(a)は非点が正しく調整されているとき、(b)は調整できていない時の、試料端における高分解能像を示しています。高分解能像を撮影するときの非点調整は、多くの場合、試料端に生じているダメージ箇所を利用します。ここでは、そのダメージ箇所がよく視認できるように、より多くのダメージが生じるようにして試料調整を行っています。(a)に示す両矢印の部分にイオンリングによって生じたダメージ箇所となります。ここで示したような厚いダメージ層が現れている箇所は、高分解能像の撮影には適していませんのでご注意ください。(a)と(b)の試料端の像を比較すると、非点が正しく調整されている場合には、試料端箇所が非常に薄いコントラストで観察されていることがわかります。対して、非点がある場合には、Focus値を変化させても試料端部分のコントラストは薄くはなりません。また、非点が正しく調整できていないときには、(b)に示すように、試料端部分が一定方向(右方向)に伸長している様子がわかります。Focus値を変化させたときに、アモルファス箇所の粒子状コントラストが、(b)のように伸長せずに、均一に変化するよう調整します。試料端部分のコントラストが最も薄くなるFocus値に調整し、この試料端部分が見えない程度となるように調整します。CCDカメラを用いている場合には、操作ソフトにLive FFTコマンドが装備されています。このLive FFTを使うと、CCDカメラを用いて高分解能像を観察しながら、その像のFFT図形をon timeで確認することができます。(c)はその時の画面を示しています。図中矢印で示している白いコントラストのリングは、(a)や(b)で示したダメージ箇所のアモルファスに起因しています。非点の調整は、このリング状のコントラストが円状になるように調整します。ただし、最終的には(a)に示したように、試料端のコントラストが最も薄くなり、かつ、粒子状に観察されるように視認しながら追いつくことが適しています。

と思います。対物レンズのFocusをリセットし、できればFocus値の変化量ができるだけ少なくなるように、Z値の調整を優先して、粒子状のコントラストが最も低くなるように調整します。次に、Focusダイヤルを左右に僅かに回転させると、この粒子状に見えるコントラストが一方へ伸長し、それが“もやっと”見えて、次に、最初とは直角方向に再び伸長するのが見えるかと思います。この伸長がなくなるように、Objective lens stigmaダイヤルを用いて調整します。コツとしては、“もやっと”見える状態にしておいて、Objective lens stigmaダイヤルの片方ずつ調整し、その“もやっと”見えるコントラストがさらに低くなるように調整します(定性的な表現ですが)。その後、Focusダイヤルを左右に僅かに回転させながら、粒子状コントラストの伸長がなくなるように調整します。図19では、ダメージ箇所がよく分かるように通常よりも試料端部分のダメージ箇所を厚くした試料を用いて示しています。非点が正しく調整できていると、試料端部分のコントラストは非常に薄くなります。図19の説明を参照してください。また、CCDカメラが装備されている場合には、Live FFTのコマンドをクリックします。すると、図19(c)に示すようなFFT図形がLiveで表示されま

す。図中矢印で示した白いコントラストが円状になるようにObjective lens stigmaダイヤルで調整します。ただし、最終的には像を直接視認しながら微調整を行う方が優れています。

次に観察視野を探します。適切な高分解能像を得るためには、試料調整時に生じたダメージが少ないこと、試料厚みが薄いこと、正しく結晶方位を電子線に対して合わせられていること、が最低条件となります。これらを考慮して観察視野を探してください。ダメージについては、上述した非点調整時に用いた試料端のアモルファス部分の幅で大よそ確認できます。この幅が小さい箇所を選択します。また、回折図形にハロー(もやっとしたリング状のコントラスト)が現れている箇所は適していません。ダメージが少ない場合には、コントラストが非常に優れた回折斑点が現れているはずですが(感覚的な表現ですが、きりっとした鮮明な回折図形です)。試料厚みについても試料端のコントラストを確認してください。もっともコントラストが薄くなるようにしたときに、試料端がほとんど見えなくなるような状態が薄い箇所に相当します(厚い場合には試料端のコントラストが高いままとなります)。回折図形で菊池線が現れていないことも目安の一つです。

大よその視野が選択できたら、その箇所の結晶方位を低指数入射へと傾斜させるか、もしくは、必要な結晶方位へと傾斜させます。ただし、どのような方位からでも高分解能像が得られるわけではありません。観察できる分解能は、対物レンズの分解能に依存します。また、電子線の入射方向に対して原子が一行に配列する結晶方位でなくてはなりません。従って、多くの場合は低指数入射に限定されます。予め結晶模型などを用いて、電子線の入射方向を検討しておくことも重要です。電子線が、その結晶方位に正しく入射するよう正確に合わせてください。傾斜の僅かなずれば、高分解能像の像質に強く影響します。できれば菊池線を用いて入射方向を正確に調整することが好ましいのですが、高分解能像を撮影するときには、試料の厚さが非常に薄い箇所で行います。ですので、このような箇所では菊池線が現れにくく、微妙な傾斜のズレを合わせこむことが難しくなります。回折図形において、透過斑点から遠い回折斑点が対称的に同様の強度となるように正確に傾斜を合わせ込みます。また、試料が電子線照射に対して脆弱ではないときには、電子線を収束させて、合わせてしまうことも簡便な方法です。図20の説明を参照ください。

次に正確に対物絞りを挿入し、再度、対物レンズの非点調整を行ってから撮影します。撮影時にFocus値を僅かに変えてみてください。観察される像が変化することに気づくと思います。高分解能像は干渉像ですので、得られる像はFocus値に依存して変化します(試料の厚さにも依存します)。初心者の場合には、Focusを僅かに変化させて最もきれいだと思ふときのFocus値で撮影して構いません。一方、低指数入射ではなく、ある方向の回折斑点の列が強く励起されている状態で同様に観察すると、その回折斑点を与えている結晶面(もしくは、その結晶面と平行な結晶面)が線状

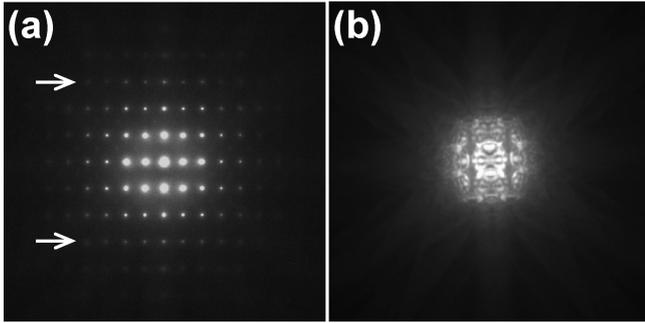


図20 高分解能像を撮影するときの結晶方位の合わせ方について。低指数入射に調整した時の(a)制限視野回折図形、(b)収束電子線回折図形の例。

高分解能像を得るときには、電子線の入射方向を正しく調整することが重要です(この照射状態を軸上照射と呼称することがあります)。(a)に示した例では、[011]入射に調整を行っています(図21(a)の高分解能像撮影時に用いた回折図形です)。透過斑点を中心として、例えば、図中矢印で示したような外側の回折斑点の強度が均一になるように、僅かな傾斜角度を調整しながら、軸上照射の状態に追い込んでいきます。参考までに(a)と同一の方向から取得した収束電子線回折図形を(b)に示しています。中心部分の模様を確認してください。僅かですが傾斜の調整がまだ十分ではないことが、模様対称性から判断できます。

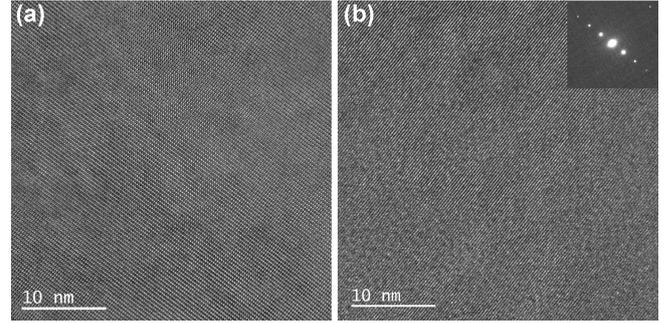


図21 (a)高分解能像、(b)格子像の一例。

図19で使用したダメージの多い試料での高分解能像と格子像を示しています。(a)に示す高分解能像は、[011]入射に調整を行って像を撮影しています。この方向からの原子配列を反映した点状のコントラストが観察されています。ただし、やや黒い雲状のコントラストが多数認められています。これらは、試料調整時に生じたダメージに起因しています。よく確認すると、点状のコントラストが変化している(画面左上)箇所も確認されます。(b)に示す格子像では、線状のコントラストが観察されています。像中に示した回折図形と対比すると、線状のコントラストと直角方向に回折斑点が現れています。像では、線状のコントラスト以外にも、全体的にまだらなコントラストも表れています。これも試料調整時に生じたダメージに起因しています。図19と図20で示したように、高分解能像や格子像の像質には、試料の調整状態が強く影響します。ここで適切ではない例として示したように、試料調整時に生じてしまったダメージが像質を大きく劣化させてしまいます。観察時に、ここで示すようなダメージに起因するコントラストが現れている場合や、図19に示すような試料端部分のアモルファス領域が厚い場合には、他の適切な観察場所を探すか、もしくは、ダメージを取り除くための試料調整を行って、より良い状態にしてから撮影してください。

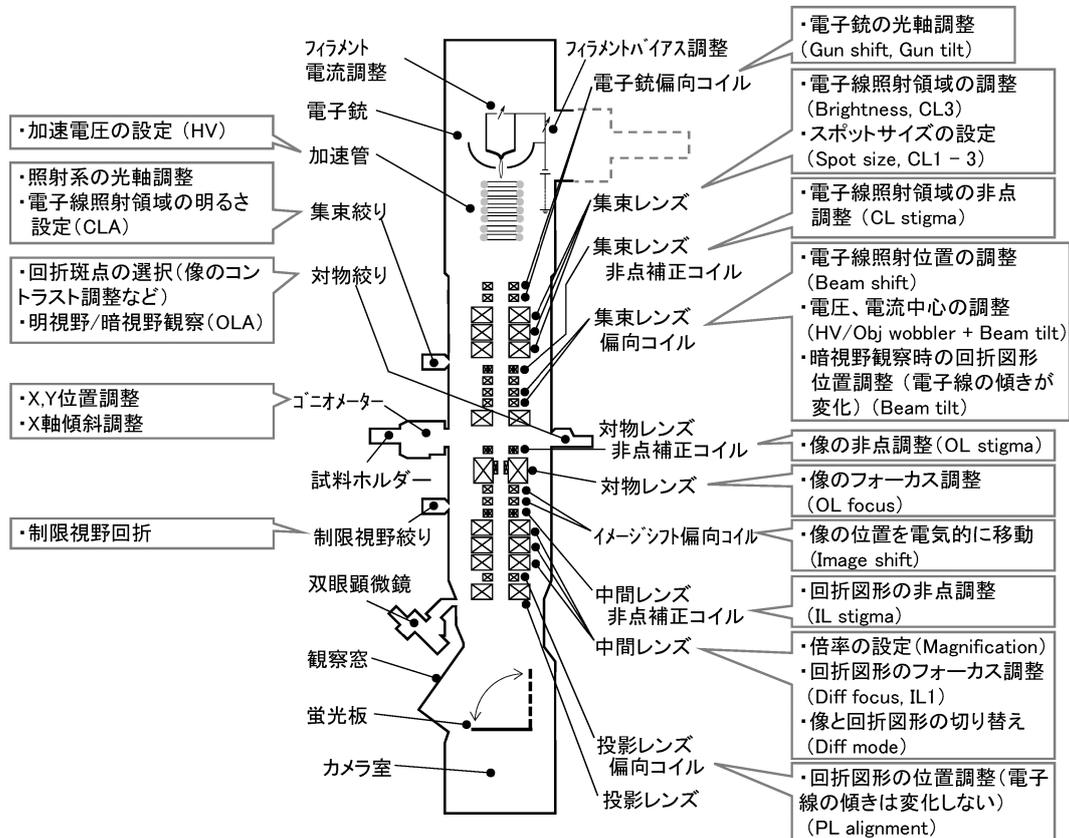


図22 TEMのカット図中に操作内容やダイヤル等の名称を記載した模式図。

