

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	多極子のコンビネーション収差を用いた透過型電子顕微鏡の軸上収差補正に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	細川史生
Author(English)	Fumio Hosokawa
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10615号, 授与年月日:2017年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:三宮 工,吉本 護,舟窪 浩,北本 仁孝,中村 吉男,大島 義文
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10615号, Conferred date:2017/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

平成 29 年度 学位論文

多極子のコンビネーション収差を用いた
透過型電子顕微鏡の軸上収差補正に関する研究

東京工業大学大学院

総合理工学研究科 物質科学創造専攻

細川史生

目次

1 章. 本研究の目的とその背景.....	1
1.1 電子顕微鏡とは.....	1
1.1.1 電磁界レンズの収差.....	1
1.1.2 材料開発への貢献.....	3
1.2 収差補正の研究の始まり.....	6
1.2.1 球面収差および色収差の補正条件.....	6
1.2.2 4 極子系補正装置.....	6
1.2.3 6 極子系補正装置.....	7
1.3 研究の目的と論文構成.....	9
1.3.1 研究の目的.....	9
1.3.2 論文構成.....	11
参考文献.....	14
2 章. 電子顕微鏡の収差と分解能の定義.....	16
2.1 序論.....	16
2.2 Airy disc と回折収差.....	17
2.3 球面収差.....	18
2.4 色収差.....	19
2.5 理論分解能.....	20
2.6 部分干渉性 (partial coherence).....	27
2.6.1 電子源の逆空間での強度分布による部分干渉項.....	27
2.6.2 電子源の非単色性による部分干渉項.....	29
2.7 STEM HAADF 像.....	32
2.7.1 試料面での電子プローブと STEM.....	32
2.7.2 Imaginary potential による HAADF 像の形成.....	35
2.8 まとめ.....	39
参考文献.....	40
3 章. 多極子展開とコンビネーション効果による収差の汎用表記.....	41

3.1	序論.....	41
3.2	幾何収差と波面収差.....	41
3.2.1	波面収差の波動光学によるシミュレーション例.....	43
3.2.2	幾何光学的収差発生例 (2 回対称 1 次収差).....	45
3.3	軸上収差とフーリエ級数展開.....	46
3.4	プライマリー効果とフリッジ効果.....	51
3.5	複素変数の導入と収差係数の定義.....	53
3.6	コンビネーションアベレーション.....	58
3.7	まとめ.....	62
	参考文献.....	63
4 章	非対称磁場 6 極子による球面収差補正.....	64
4.1	序論.....	64
4.2	磁場 6 極子のプライマリー効果 (3 回非点).....	65
4.3	長い 6 極子場のコンビネーション効果.....	68
4.4	6 極子の連結による球面収差.....	72
4.5	対称 2 段 6 極子と transfer doublet.....	75
4.6	非対称 2 段 6 極子による球面収差補正.....	79
4.7	非対称光学系による寄生収差の低減.....	85
4.8	まとめ.....	86
	参考文献.....	87
5 章	300kV 球面収差補正光学系の開発.....	88
5.1	序論.....	88
5.2	目標分解能.....	88
5.3	光学系構成.....	93
5.4	補正系の色収差.....	96
5.5	開発装置外観.....	97
5.6	Ronchigram による照射光学系の評価.....	98
5.7	Zemlin tableau による結像光学系の評価.....	100
5.8	HAADF 像による 0.47Å 分解能の確認.....	102

5.9	まとめ.....	104
	参考文献.....	105
6 章.	電磁場重畳 4 極子による色収差補正.....	107
6.1	序論.....	107
6.1.1	電場重畳 4 極場.....	107
6.1.2	Scherzer による 4 段 4 極場による色収差補正.....	109
6.2	2 段 4 極子と transfer doublet による色収差補正.....	112
6.2.1	概要.....	112
6.2.2	4 極場のコンビネーションアベレーションによる凹レンズ効果.....	114
6.2.3	発散軌道 $\omega_h(z)$ と収束軌道 $\omega_s(h)$	117
6.2.4	Stigmatic condition による凹レンズの成立.....	119
6.2.5	色収差補正条件.....	120
6.2.6	静電 4 極場によるポテンシャル収差.....	122
6.3	30kV 色収差補正装置の開発.....	126
6.3.1	光学系構成.....	126
6.3.2	補正電圧と起磁力.....	128
6.3.3	色収差補正の動作確認.....	131
6.4	まとめ.....	134
	参考文献.....	135
7 章.	収差補正電子顕微鏡の像のシミュレーション.....	136
7.1	序論.....	136
7.2	相互透過係数 TCC の導出.....	137
7.2.1	球面収差が補正されていない従来の TCC.....	137
7.2.2	球面収差補正に対応するための TCC の拡張.....	139
7.3	収差補正 TEM 像の線型成分.....	141
7.4	収差補正 TEM 像の伝達関数の計算.....	143
7.4.1	偶関数波面収差 $\gamma_e(k)$ による $B_c(k)$	144
7.4.2	奇関数波面収差 $\gamma_o(k)$ による $B_c(k)$	146
7.4.3	df 、 A_3 、 P_3 による $B_c(k)$	150
7.5	相互透過係数 TCC による収差補正 TEM 像のシミュレーション.....	151

7.6 GPU を利用した並列計算による高速シミュレーション.....	155
7.6.1 背景.....	155
7.6.2 マルチスライス法の概要.....	156
7.6.3 GPU による像シミュレーション計算の並列化.....	158
7.6.4 ベンチマークテスト.....	160
7.7 まとめ.....	165
参考文献.....	166
8 章. 結論.....	167
8.1 収差補正の視点からの収差の理解.....	167
8.2 球面収差補正装置の開発.....	167
8.3 色収差補正装置の開発.....	168
8.4 収差補正像シミュレーション.....	168
8.5 研究総括.....	169
参考文献.....	170
謝辞	171
業績リスト	172

1章 本研究の目的とその背景

1.1 電子顕微鏡とは

1.1.1 電磁界レンズの収差

透過型電子顕微鏡は 1931 年 M.Knoll と E.Ruska により発明された [1]。理想的な光学系をもつ顕微鏡の場合、その解像限界は結像媒体の波長程度となる。電子の波長は加速電圧により決まり、それは水素原子半径を容易に凌駕可能であるため、電子顕微鏡はその発明当初から、原子を個別に見分ける分解能が期待された。当時、光学顕微鏡においては、屈折率の異なる、凹レンズと凸レンズの組み合わせによる収差の相殺により、その分解能が波長レベルまで達していた。同様に電子顕微鏡においても、波長限界に近い分解能が早期に達成されると期待されたのである。しかしながら、電子顕微鏡に用いられる電界型および磁界型レンズにおいては、光学顕微鏡のレンズとは決定的に異なる状況が見出された。回転対称な電磁界を用いる限り、通常のレンズとして使用する条件では凹レンズが実用的に作製できないことが理論的に証明されたのである。光学顕微鏡においては、凸レンズと凹レンズを組み合わせで光学系を作製することで、収差補正光学系が作製されていた。ところが、電子顕微鏡では凹レンズが作製できないので、achromatic な光学系が達成されず、3 次の球面収差も必ず正の値になることが、1936 年 Scherzer により理論的に示された [2]。Achromatic でない電子光学系においては、色収差により波長（すなわちエネルギー）の異なる電子に関して、そのフォーカス面が連続的に分布し、像のボケを生ずる。また、3 次の球面収差が存在する光学系においては、物面の 1 点から射出する電子は、その射出角の 3 乗に比例して、像面におけるガウス結像点から外れた位置に着地する。Scherzer は、回転対称な電磁界を用いた電子の結像においては、この色収差と球面収差が不可避となることを、近軸軌道方程式を用いて以下のように証明した。

回転対称電磁界における電子の近軸方程式は、式 (1-1) で表されることが知られている。

$$Ur'' + \frac{1}{2} U'r' = -\frac{1}{4} U''r - \frac{1}{8m} e r B^2 \quad (1-1)$$

ここで、 U は軸上電位、 r は電子の軸からの距離（すなわち軌道）、 m は電子の質量、 e は素電荷、肩付きのプライムおよびダブルプライムは、それぞれ、 z による 1 回の微分および 2 回の微分を表す。また、 B は軸上磁束密度である。Scherzer は式(1)を、新たな変数 $R_s=rU^{1/4}$ を導入して以下のように再記した。

$$R_s'' = -TR_s \quad (1-2)$$

$$T = \frac{3U'^2}{16U^2} + \frac{eB^2}{8mU} \quad (1-3)$$

式(1-2)は、軌道と軸上電位を z の関数 R_s として表した、 R_s に関する近軸軌道方程式である。軸上電位 U は電子の速度に相当すると考えることができる。式(1-3)より、電子が運動を行っている限り T は常に正であり、運動速度が遅いほど T は大きくなる。 T が常に正であることより、式(1-2)による R_s の軌道は必ず z 軸に向かって凸となる。また、速度の遅い電子に対しては、 (R_s''/R_s) で表される軌道の相対変移力は大きくなる。 R_s の符号は r の符号で決まり、 R_s が z 軸をよぎる近傍では r が z 軸に向かっていることとなる。すなわち、電子に働く最終的な力は軸に引き付けられる方向に働き、遅い電子ほど、より強く引き付けられることになる。**Scherzer** はこのような議論により、回転対称電磁界レンズによる色収差が、必ず同じ符号に（正符号と定義される）なることを証明した。また、近軸軌道の焦点距離 f は式 (1-4) にて表される[2]。

$$\frac{1}{f} = \int_{-\infty}^{\infty} T dz \quad (1-4)$$

ただし、式(1-4)においては、電界が存在する場合は、**einzel lens** による電界（レンズの入り口と出口の電極が等電位の静電レンズ）を想定している。式(1-4)、式(1-3)によれば f は必ず正であり、すなわちそれは凸レンズとなることを意味する。

3 次の球面収差に関しては、近軸軌道の解を用いた光学計算より、式 (1-5) が **Scherzer** により導かれた。収差係数を C_s として、物面からの射出角 α が 1 である場合、像面での着地点のずれ Δ は以下ようになる。

$$\begin{aligned} \Delta &= C_s \alpha^3 \\ &= C_s = \frac{M}{16U_0^{1/2}} \int_{\text{object}}^{\text{Image}} U^{1/2} \left[\frac{5}{4} \left(\frac{U''}{U} + \frac{U' r'}{U r} - \frac{U'^2}{U^2} \right)^2 + \frac{U'^2}{U^2} \left(\frac{r'}{r} + \frac{7U'}{8U} \right)^2 \right. \\ &\quad + \frac{e}{mU} \left(B' + B \frac{r'}{r} - \frac{5BU'}{4U} \right)^2 + \frac{eB^2}{mU} \left(\frac{r'}{r} + \frac{U'}{4U} \right)^2 \\ &\quad \left. + \frac{U'^4}{64U^4} + \frac{e^2 B^4}{4m^2 U^2} + \frac{eB^2 U'^2}{32mU^3} \right] r^4 dz > 0. \end{aligned} \quad (1-5)$$

ここで M は倍率、 U_0 は物面の軸上電位であり、積分は物面から像面まで行う。式 (1-5) で表される球面収差係数 C_s は、物理量の 2 乗和で構成されており、必ず正となる。つまり、

光学における場合と異なり、複合レンズにより球面収差をゼロにすることは不可能である。

以上のように、回転対称の電子レンズを用いるかぎり凹レンズしか構成できず、色収差と球面収差が不可避となることが、電子顕微鏡技術の発達初期において判明した。以降、電子顕微鏡の歴史的発展過程では、その分解能を向上させるために、レンズの色収差係数と球面収差係数をできるだけ小さい値となるようなレンズ設計がなされてきた。磁界型レンズは電界型レンズよりも収差係数を小さく設計できるため、結像レンズには、磁界型レンズが用いられる。これに対して電界型レンズは電子銃の引き出し部分、加速部分等において用いられる。分解能を決定する対物レンズの磁場は、磁束密度を集中させる目的で精密加工されたポールピースにより形成される。ポールピースにて形成される回転対称な磁場を、電子の進行軸上の 1 部分に集中させることにより収差係数は小さくなるのであるが、ポールピースの磁気飽和により収差係数も下限がある[3][4]。permendur のような飽和磁束密度の高い材料を用いても、加速電圧 200kV の電子に対して対物レンズの球面収差係数の限界は、0.5mm ~ 0.4mm 程度であり、得られる分解能は 2Å ほどである。球面収差により波長限界には遠く及ばないとはいえ、電子顕微鏡の利点は、このような高い分解能で局所観察が可能な点にある。

1.1.2 材料開発への貢献

前節に述べたように、電子顕微鏡は、光学系の収差により波長限界にはるかに及ばない。しかしながら、結像媒体の十分な短波長性により、電子顕微鏡の解像度は試料の原子構造を解明できる能力を有するものである。電子顕微鏡の技術的発展は、材料科学に飛躍的な進歩をもたらした。界面、微結晶、微粒子の構造等の、ナノメートルレベルの空間的ポテンシャル分布が解析できるのは、電子顕微鏡のみである。材料科学における代表的な電子顕微鏡の貢献例は、結晶内の転移の発見、G・B ゾーンの発見、カーボンナノチューブの発見[5]、準結晶の発見[6]（ノーベル賞）があげられる。これらは、透過電子顕微鏡の局所観察・高い空間分解能という利点を最大限発揮した成果といえる。また、電子顕微鏡の持つ高い解像能力は、生物学・医学の学術発展にも大いに利用されてきた。光学顕微鏡では分かり得なかった、細胞構造、ウイルス形態、タンパク質の構造解析など、形態観察をもとに多くの生命現象が解明され、医療、創薬に貢献してきている。

電子顕微鏡の他に類を見ない形態観察能力は、球面収差等の解像力の阻害要因にかかわらず、圧倒的な科学的知見をもたらしてきた。しかしながら、試料の原子構造を直視するためには、1 オングストロームを凌駕する分解能がどうしても必要である。汎用電子顕微鏡で電子のノックオンによる試料ダメージを誘起することなく、このような分解能を達成するには、光学系の収差の補正がどうしても必要である。

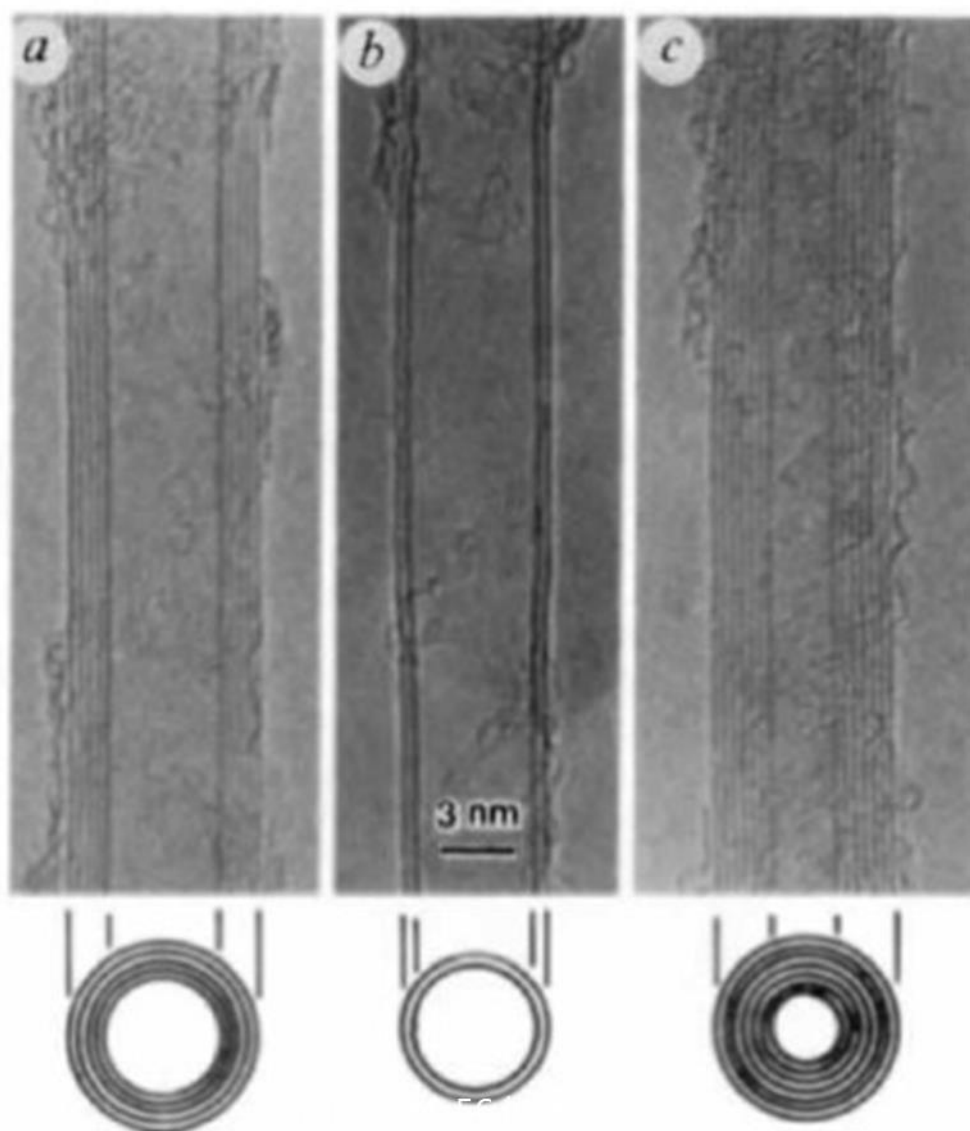


図 1-1 Carbon nanotube の TEM 像 [5]

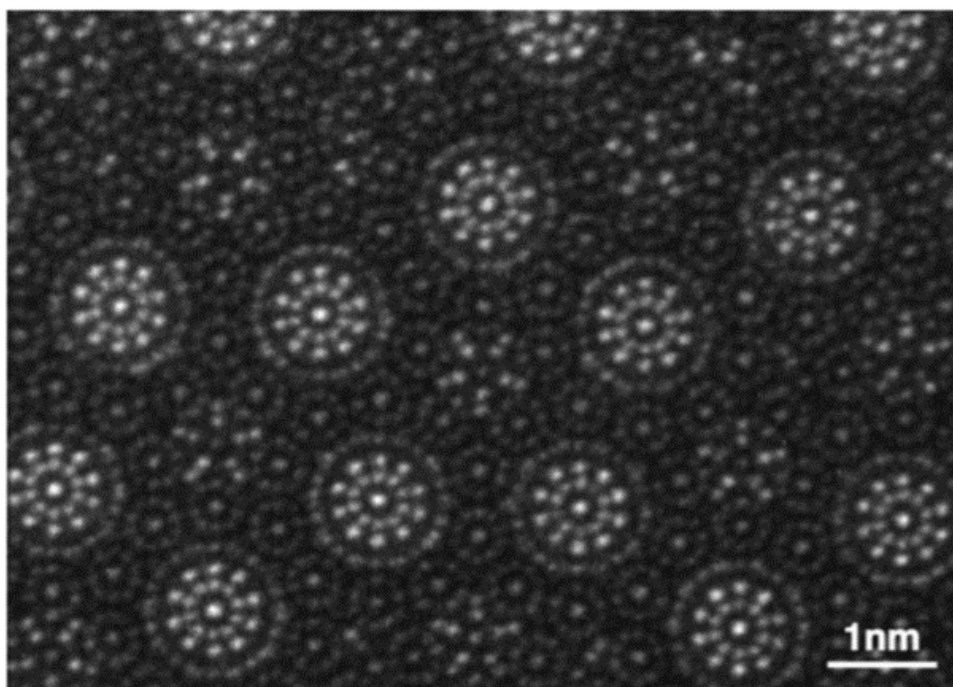


図 1-2 $\text{Al}_{70}\text{Mn}_{17}\text{Pd}_{13}$ (5 回対称: 準結晶) の高分解能 STEM HAADF 像 [7]

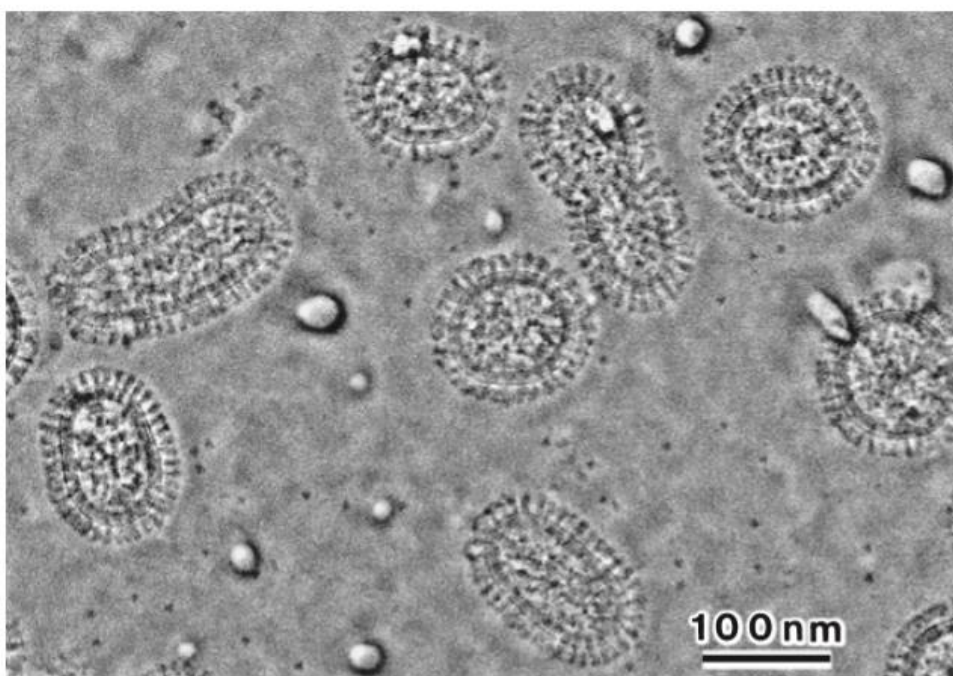


図 1-3 A 型インフルエンザウイルス 極低温位相差 TEM 像 [8]

1.2 収差補正の研究の始まり

1.2.1 球面収差および色収差の補正条件

Scherzer は 1947 年、特殊な条件下では、回転対称レンズに対して逆符号の色収差係数と球面収差係数を持つ、電子光学系が作製できることを示した [9]。

- 1) 回転対称でない電磁界を用いる
- 2) 光軸近くに空間電荷を配置する
- 3) 時間的に強度が変化するレンズを用いる

以上のどれかの条件を満たせば、回転対称レンズの色収差、および、球面収差の補正が、実像結像において可能であることが示された。ここでの 2) と 3) の条件は、技術的には極めて特殊であり、現在のところ実用化に至る研究成果は報告されていない。1) の回転対称でない光学系は、いわゆる多極子を用いて実現可能である。Scherzer により見出されたこれらの収差補正条件のなかで、多極子を用いた回転対称光学系からの逸脱が、収差補正の実現手法として最も有望視された。収差補正系に組み込む多極子としては、Scherzer 自身の発案も含めて、4 極子と 8 極子による光学系が多く研究されてきた [10], [11], [12]。

1.2.2 4 極子系補正装置

多極子の当初における研究においては、そのほとんどが多段 4 極子と 8 極子を光軸方向に配置した光学系に関するものであった。4 極子は、収束軌道と発散軌道をもつ 1 次収差の光学素子であり、その発散軌道には回転対称レンズの色収差を補正する成分がある。8 極子は、収束軌道と発散軌道をもつ 3 次収差の光学素子であり、その発散軌道には回転対称レンズの球面収差を補正する成分がある。さらに 4 極子は補正光学系において、電子ビームを線上にラインフォーカスする目的でも用いられる。4 極子にて多極子上にラインフォーカスされたビームにより、発散と収束差作用を持つ多極子の作用のうち、収差補正に必要な発散作用のみをビームに作用させることができる。4 極子系の収差補正装置はこのような原理に基づいている [13]。4 極子によるラインフォーカスを利用した収差補正装置は、 x 軌道の補正を行う光学面と、 y 軌道の補正を行う光学面が異なるため、収差補正面が一律に定義できない。TEM (Transmission electron microscope) の結像における収差導入面は、対物レンズの後焦点面であり、ラインフォーカスを利用した収差補正装置では、収差補正面に対して、 x の収差補正位置と y の収差補正位置を同時に一致させることはできない。したがって、いわゆる coma free point [14] における収差補正が達成できない。また、収差補正位置と収差導入面が異なることで、後に議論するコンビネーションアベレーション(combination

aberration) の発生も避けられない。4 極子系の収差補正装置は、高倍率の STEM (scanning transmission electron microscope) のような、軸上点のごく近傍における収差の補正では、球面収差補正の成功が報告されたが[15]、TEM のように、軸から多少とも広がった領域までの結像が必要となる場合には、一部の特殊プロジェクト[16] を除いて一般には利用されていない。

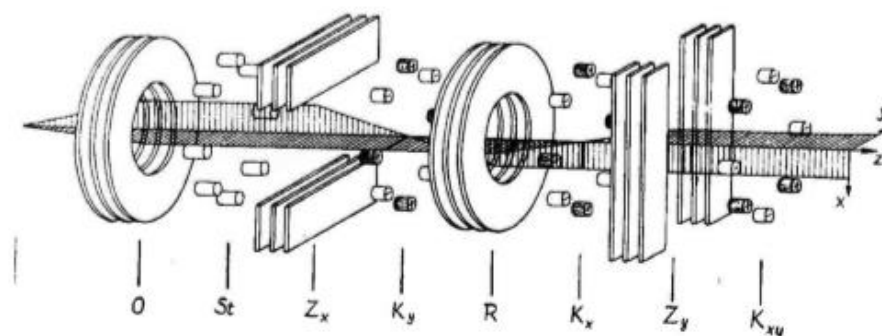


図 1-4 Scherzer によるラインフォーカス球面収差補正装置 [17]。

1948 年～1951 年、Seeliger により制作および実験が行われた装置。

1.2.3 6 極子系収差補正装置

電子光学における収差補正を目的とした 4 極子光学系に関する研究は、光学の考え方に基づいたものであった。4 極子と 8 極子のいわゆるプライマリーな成分、すなわちそれぞれ 1 次の偏向力と 3 次の偏向力を、そのまま収差補正力として利用する考え方である。これに対して、Beck は 1979 年、新たな発想による収差補正方法を提唱した [18]。Beck によれば、2 つの 2 次の偏向素子が、ある程度の伝播距離を置いて配置されている場合、配置した変更素子よりも高い次数の偏向力が見かけ上現れる。この考えによれば、2 次の偏向素子である 6 極子を用いて 3 次の収差である球面収差の補正が可能である。この発想は伝統的な光学の考え方からは、なかなか生まれないものであったと思われる。光学においては、この見かけ上の補正力は、軌道計算のさい必然的に *eikonal* [19] に組み込まれているが、それを明示的な次数の転換とはとらえていなかったと想像される。3 次の収差は 3 次の素子で補正するのが光学の一般的な考え方である。Crewe はさらに、厚みを持った 6 極場が内部に現れる自身の伝播効果により、球面収差の補正項を持つことを見出した [20]。これは、Beck の考えをもとに厚みのある場を級数展開した結果得られた。Beck および Crewe による、本来の偏向次数より高い見かけの偏向力に基づく収差は、コンビネーションアベレーション (combination aberration) または separation aberration などと呼ばれる。彼らの提唱し

た 6 極子のコンビネーションアベレーションは、1990 年 Rose の球面収差補正光学系に用いられた [21]。Rose は、z 方向に同じ厚みをもつ 2 つの 6 極子を、transfer doublet と呼ばれる結像レンズを用いて光学的な等価位置に配置することで、2 次収差、4 次収差がなく 3 次の回転対称収差のみが発生する光学系を考案した。さらに、Haider は Rose の球面収差補正系に、冷却型 CCD カメラとパーソナルコンピュータによる収差測定系を組み込んで、歴史上初の、透過電子顕微鏡の球面収差補正装置を製作した。この装置により、200kV の電子顕微鏡の球面収差係数を、補正前の 1.23 mm から数十 μm まで補正し、補正前の分解能 2.4Å から、補正により 1.2 Å~1.4 Å の到達分解能を得た [22],[23]。

Haider-Rose の球面収差補正装置においては、対物レンズの焦点面が transfer doublet により 1 段目の多極子の作用面と光学的等価面になり、さらに、1 段目と 2 段目の多極子の間の transfer doublet により、焦点面、2 つの多極子の作用面が光学的等価面になっている。6 極子系の収差補正装置の特徴として、レンズの収差導入面と収差補正面を光学的に一致させることが可能となっており、この点において、発散軌道と収束軌道で収差補正の軌道が異なる 4 極子系の収差補正装置と大きく異なっている。

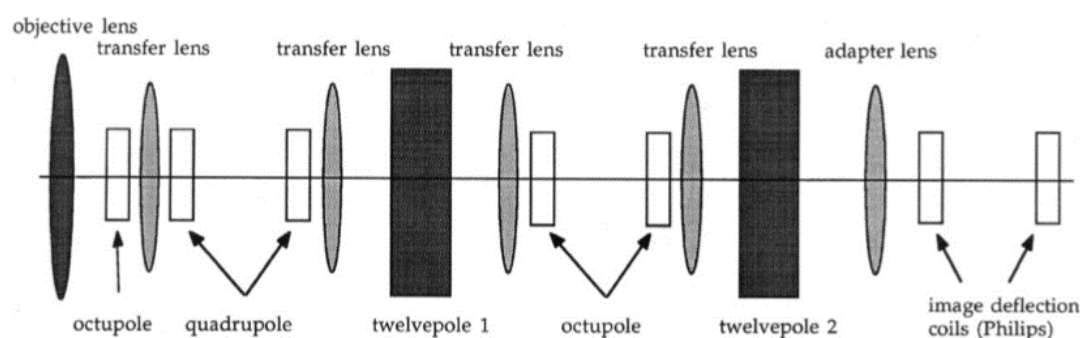


図 1-5 Haider – Rose らによる、6 極場型球面収差補正光学系 [22]

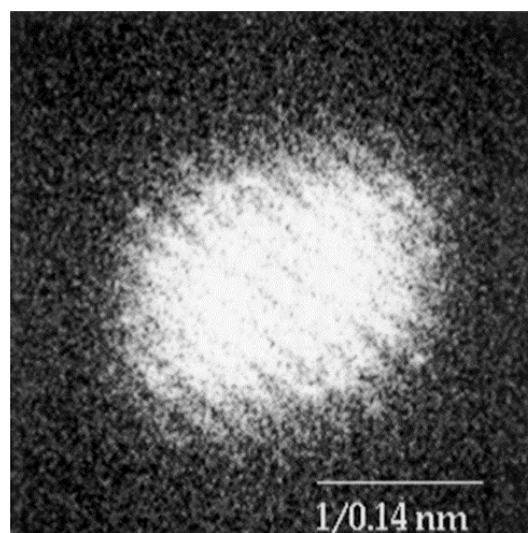


図 1-6 Haider – Rose の球面収差補正装置による到達分解能 ($1.2 \text{ \AA} \sim 1.4 \text{ \AA}$) [23]

1.3 研究の目的と論文構成

1.3.1 研究の目的

本研究を開始した時点では、球面収差補正装置の理論背景を持ち、さらにこれを透過電子顕微鏡に組み合わせる技術を持つのは、Scherzer の研究室の出身者である、Rose、Haider のグループのみであった。電子顕微鏡の収差補正技術は、材料開発におけるブレークスルーをもたらす技術である。球面収差が補正されない電子光学系では、汎用に用いられる電子顕微鏡の分解能は $2 \text{ \AA}$ 程度である。対して元素の共有結合半径は、水素から塩素までの元素では、 $0.3 \text{ \AA} \sim 1 \text{ \AA}$ 程度、カリウムより重い元素では、そのほとんどが $1.0 \text{ \AA} \sim 1.5 \text{ \AA}$ 程度であり、軽元素を含む材料試料の原子構造を直視するには、 $1 \text{ \AA}$ を凌駕する解像度がぜひとも必要となる。球面収差の補正により電子顕微鏡の分解能が $1 \text{ \AA}$ を超えるのは明白であり、そうなれば、光学系に関しては理論上、ほとんどすべての材料の構造を直視することが可能となる。電子顕微鏡の発明以来、半世紀以上にわたって渴望されてきた収差補正の成功例として、Haider – Rose らにより、到達分解能: $1.2 \text{ \AA} \sim 1.4 \text{ \AA}$ が報告されたことは先に述べた。Haider – Rose の補正装置の成功の要因は、trasfer doublet を用いたことにある。Trasfer doublet により、Crewe-Beck らが見出した 6 極場のコンビネーション効果による球面収差項を、有効に取り出すことに成功した。

以上のような背景のもと、本研究の目的を下記の通り定める。

目的：現状の収差補正装置の補正動作を、新たな理論的枠組みで考察し、現状を上回る性能を備えた収差補正光学技術を確立すること。

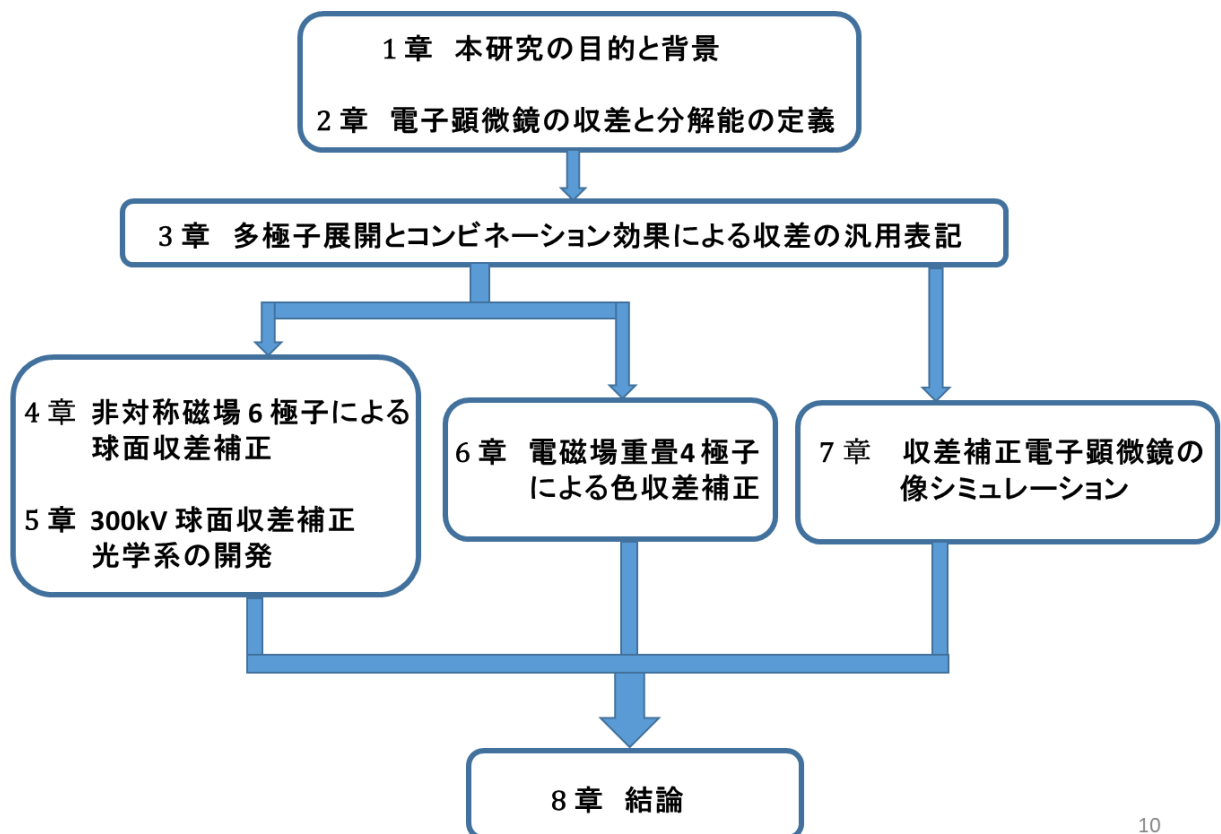
本目的を達成するための具体的な研究要素は、以下の通りとなる。

- A. 電子光学において現在取り扱われている収差の種類と、多極子場において存在可能なポテンシャルの関係を、次数と対称性を比較しつつ明らかにし、一般化すること。収差の性質とポテンシャルの相関を表す規則が判明すれば、今後において光学系に現れる収差の影響を予見し、その補正方法としてのポテンシャルの配置を検討できる。
- B. 6 極子補正系の成功要因と不足分を解析し、より優れた性能をもつ収差補正光学系を考案し、設計すること。
- C. 収差補正系を制作し、動作検証すること。
- D. 収差補正光学系で得られるべき高分解能像を、理論的に計算で再現するプラットフォームを作製すること。

1.3.2 論文構成

本論文は、8 章により構成されている。

1 章	本研究の目的とその背景	
2 章	電子顕微鏡の収差と分解能の定義	
3 章	多極子展開とコンビネーション効果による 収差の汎用表記	[研究要素 A]
4 章	非対称磁場 6 極子による球面収差補正	[研究要素 B]
5 章	300kV 球面収差補正光学系の開発	[研究要素 C]
6 章	電磁場重畳 4 極子による色収差補正	[研究要素 C]
7 章	収差補正電子顕微鏡の像シミュレーション	[研究要素 D]
8 章	結論	



10

図 1-7 論文の構成

各章の概要を以下に示す。

1 章 本研究の目的とその背景

1 章では、まず電子顕微鏡の材料開発における重要性と成果を述べた。その際、電子光学系の特徴である、球面収差と色収差の不可避性に言及し、これまでに達成された、収差補正の手法を説明した。このような背景のもと、本研究の目的と研究要素、および論文構成について述べた。

2 章 電子顕微鏡の収差と分解能の定義

2 章では、電子顕微鏡の分解能がどのように定義されているかについて、TEM および STEM それぞれの結像手法の違いを交えて説明した。その際、電子顕微鏡像に含まれる情報が、どの程度の精度で試料構造を反映しているかは、光学系のみならず試料そのものにも

影響されることに注意喚起した。この事実により、電子顕微鏡の分解能を定義するには、試料構造として理想化されたものを仮定せざるを得ないことを説明した。

3章 多極子展開とコンビネーション効果による収差の汎用表記

3章では、まず幾何収差と波面収差について説明した。その後、任意の多極子場のポテンシャルについて円筒座標 (r, θ, z) によるフーリエ級数展開を用いた解析を行った。フーリエ級数の解析の結果、多極子場を構成するポテンシャルと現在取り扱われている波面収差の関係が、1対1に対応することが確認できた。幾何収差は波面収差の微分で得られることより、多極子場のポテンシャルが、任意の収差の起源と考えることができると結論した。また、異なるポテンシャルがある伝播距離を離れて存在する場合、起源となる収差の単純和以外の収差が、コンビネーション効果として現れる。このような、コンビネーションアベレーションの一般的な生成を表す形式を導出した。

4章 非対称磁場 6 極子による球面収差補正

4章では、まず磁場 6 極子のプライマリー効果、および、自身の場の内部におけるコンビネーション効果について説明し、コンビネーション効果により球面収差の補正項が現れることを示した。すでに Haider らにより開発されている“対称 2 段 6 極子と transfer doublet”による球面収差補正装置の動作を解析し、補正系が倍率的に対称形であることにより収差の低減が起きにくいことを指摘した。また 2 段 6 極子系の詳細な解析により、補正系を非対称にした場合でも、ある光学条件を満たせば補正装置として動作することを見出した。この非対称条件を用いることで、寄生収差が低減されることを特徴とした、“非対称 2 段 6 極子”を用いた収差補正装置を設計した。

5章 300kV 収差補正光学系の開発

5章では、非対称磁場 6 極子による球面収差補正を組み込んだ 300kV 収差補正電子顕微鏡の、光学系開発について述べた。これは科学技術振興機構 (JST) の CREST プロジェクトの「0.5 Å 分解能物質解析電子顕微鏡基盤技術の研究」(代表者: 高柳邦夫 東京工業大学) における球面収差補正の開発に、本研究の理論的成果を適用したものであり、装置開発の成功は本研究の応用的成果となった。CREST における 300kV 収差補正電子顕微鏡は、ボア半径 ($\sim 0.53\text{\AA}$) を上回る解像度を持つ電子顕微鏡を目標に開発されたものであるが、非対称磁場 6 極子による球面収差補正を組み込むことで寄生収差の低減効果[25]により、0.5 Å の目標分解能が達成された。

6章 電磁場重畳 4 極子による色収差補正

6 章では、電磁場重畳 4 極場と **transfer doublet** を用いた色収差補正について述べた。ここで述べた色収差補正装置は、本研究におけるコンビネーションアベレーションの一般化の成果による新たな補正原理を背景に、考案・設計されたものである。コンビネーションアベレーションを 4 極場に適用することで、いままで電子光学では実現されていなかった凹レンズを形成することができた。この 4 極場凹レンズの色収差を対物レンズの色収差と相殺させる光学系を設計する方法を述べた。この新しい補正原理をもって制作した色収差補正装置により、加速電圧 30kV の電子顕微鏡の色収差が、完全に補正されたことを示した。

7章 収差補正電子顕微鏡の像シミュレーション

7 章では、収差補正電子顕微鏡で得られる像の、シミュレーション手法に関して述べた。球面収差の補正を行って得られる像を、シミュレーションにて計算するには、球面収差以外に結像に関与する可能性のある収差すべてを結像計算に考慮する必要がある。ここでは、光学にて確立されたコヒーレンス計算の手法を用いて、一般的な次数と対称性を持つ電子光学的な収差が、パーシャルコヒーレンスにどのように関与するかについて定式化した。また、このような結像計算は、従来の球面収差とデフォーカスのみを考慮した場合と比べて、計算負荷が数十倍となるため、GPU を用いた並列計算手法を取り入れた計算時間の短縮について述べた。

8 章 結論

8 章では、本研究の成果の要約、および結論を述べた。

参考文献

- [1] M. Knoll and E. Ruska, Das Elektronenmikroskop, Z. Physik 78, 318-339 (1932).
- [2] O. Scherzer, Über einige Fehler von Electronenlinsen, Z. Physik 101, 593-693 (1936).
- [3] W. Tretner, Existenzbereiche rotationssymmetrischer electronenlinsen, Optik 16, 155-184 (1959).
- [4] K. Tsuno, Resolution limit of a transmission electron microscope with an uncorrected conventional magnetic objective lens, Ultramicroscopy 50, 245-523 (1993).
- [5] S. Iijima, Helical microtubules of graphitic carbon, Nature 354, 56-58 (1991).
- [6] D. Shechtman and I. Blech, Metallic Phase with Long-Range Orientational Order and No Translational Symmetry, Phys. Rev. Lett. 53, 1951-1953 (1984).
- [7] E. Abe, Electron microscopy of quasicrystals, Chem. Soc. Rev. 41, 6787-6798 (2012).
- [8] M. Yamaguchi, H. Okada, D. Radostin, K. Nishiyama, K. Sugawara, K. Nagayama, Phase contrast electron microscopy of viruses, Kenbikyō 43, 115-120 (2008).
- [9] O. Scherzer, Sphaerische und chromatische Korrektur von Elektronenlinsen., Optik 2, 114-132 (1947).
- [10] R. Seeliger, Die sphaerische Korrektur von Elektronenlinsen mittels nicht rotationssymmetrischer Abbildungselemente, Optik 8, 311-317 (1951).
- [11] G. Moellenstedt, Elektronenmikroskopische Bilder mit einem nach O. Scherzer sphaerisch korrigierten Objektiv, Optik 13, 209-215 (1956).
- [12] W. E. Meyer Das praktische Auflösungsvermögen von Elektronenmikroskopen, Optik 18, 101-114 (1961).
- [13] G. D. Archard, Requirements contributing to the design of devices used in correcting electron lenses, Br. Journal of Applied Phys. 9, 294-299 (1954).
- [14] H. Rose, Correction Of Aperture Aberrations In Magnetic Systems With Threefold Symmetry, Nuclear Instruments and Methods 187, 187-199 (1981)
- [15] P.E. Batson, N. Dellby and O.L. Krivanek, Sub-ångström resolution using aberration-corrected electron optics. Nature 418, 617-620 (2002).
- [16] B. Kabius, P. Hartel, M. Haider, H. Müller, S. Uhlemann, U. Loebau, J. Zach and H. Rose, First application of Cs -corrected imaging for high-resolution and energy-filtered TEM. Journal of Electron Microscopy 58, 147-155 (2009).
- [17] H. Rose, Historical aspects of aberation correction, Journal of Electron Microscopy 58, (2009)
- [18] V. D. Beck, A hexapole spherical aberration corrector. Optik 53, 241-255 (1979).
- [19] M. Born and E. Wolf, Principles of Optics, Cambridge University Press (2002), Cambridge

- [20] A. V. Crewe, and D. Kopf, A sextupole system for the correction of spherical aberration, Optik 55, 1-10 (1980).
- [21] H. Rose, Outline of a spherically corrected semi-aplanatic medium-voltage transmission electron microscope, Optik 85, 19-24 (1990).
- [22] M. Haider, G. Braunshausen and E. Schwan, Correction of the spherical aberration of a 200 kV TEM by means of a hexapole corrector, Optik 99, 167-179 (1995).
- [23] M. Haider, H. Rose, S. Uhlemann, E. Schwan, B. Kabius and K. Urban, A spherical-aberration-corrected 200 kV Transmission electron microscope, Ultramicroscopy 75, 53-60 (1998).
- [24]
<http://www.jst.go.jp/kisoken/crest/ryoikiarchive/busshitu/en/kadai/year01/team05.html>
- [25]
<http://www.hyoka.koho.titech.ac.jp/eprd/recently/research/research.php?id=45>

2 章 電子顕微鏡の収差と分解能の定義

2.1 序論

光学顕微鏡の結像媒体は光であるが、電子顕微鏡は光のかわりに電子を結像媒体に用いる。光学顕微鏡ではガラスレンズにより、光の収束発散を行うが、電子顕微鏡では回転対称な電界または磁界レンズにより、電子の収束を行う。ガラスレンズと違って、回転対称な電磁界では、電子に発散作用を与えることができず、レンズの球面収差と色収差は正の値を持ちこれをゼロにはできない。このような事情により、収差補正光学系を持たない電子顕微鏡の分解能は、レンズの球面収差により分解能が制限されてしまう。**TEM** における分解能は、明確な定式化により定義されており、電子の波長 λ と球面収差係数 C_s が与えられれば一律に分解能が定まる。**STEM** においては、分解能の定義は **TEM** ほど明確でなく、物面上に形成可能な最小電子ビーム径が、ほぼ **HAADF** の分解能であるとして共通に認識されている程度である。**TEM**、**STEM** ともに、電子の入射に対する試料からの射出は、電子が試料内部に進行するにあたっての多重散乱により、線型な投影現象として記述できない。このことにより、分解能を定義するには、多重散乱の効果を無視できる程度の試料状況が仮定されている。すなわち、元素ごとに異なる電子に対する散乱能からみて、せいぜい一回の散乱が起こる程度の薄い（あるいは散乱能が弱い）試料を用いることを前提に、波動光学的結像理論により解能が定義される。本章では、**TEM** および **STEM** における分解能と、それらの結像成分と試料構造の数学的関係について述べる（多重散乱を考慮した一般の結像計算に関しては、7 章にて述べる）。本研究は電子顕微鏡の分解能向上の、理論と手段に関する研究である。研究内容を述べるに先立って、電子顕微鏡の分解能とはどのように定義されているかについて明らかにするのが、本章の目的である。

2.2 Airy disc と回折収差

光軸遠方の光源 S から発散した結像媒体波を、絞り Ap を備えたレンズにより、収束半角 α にて観察面に収束させる。この状況において、レンズによる収差の影響を受けない場合でも収束電子は 1 点に収束せずに広がりを持った分布を持つ。この分布は **Airy pattern** と呼ばれ、中心にあらわれる **Airy disc** と呼ばれる円形領域の直径 D は、電子の波長を λ として (2-1) 式で与えられる。

$$D = 1.22 \frac{\lambda}{\sin \alpha} \quad (2-1)$$

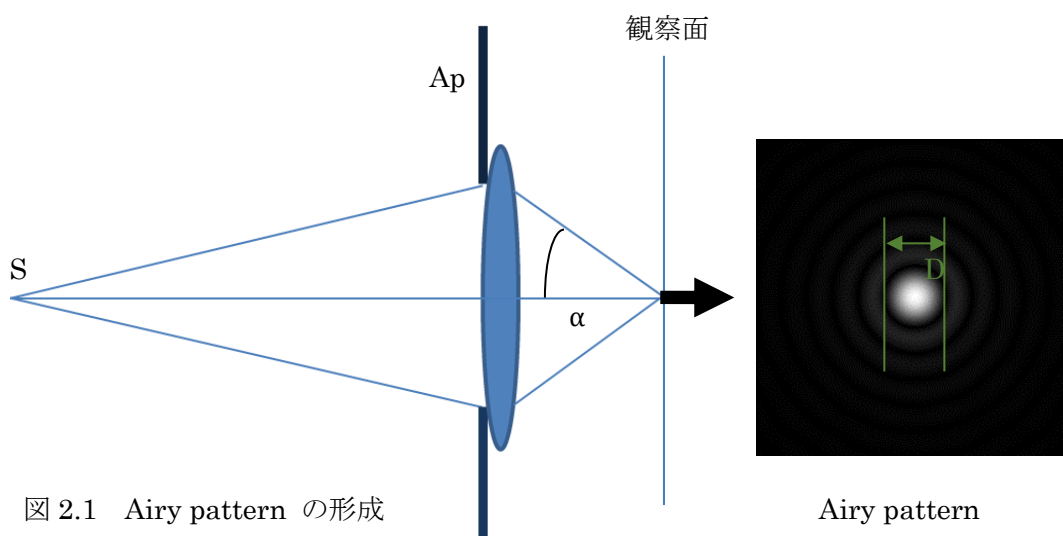


図 2.1 Airy pattern の形成

式 (2-1) の分母は 1 以上には大きくならず、 D は、点光源 S を絞り Ap を持つレンズで結像した時の、原理的な解像限界である。完全レンズにより理想的な光学系を与えられたとしても、顕微鏡には (2-1) 式による解像限界が存在し、それは結像媒体の波長程度となる。

Airy disc の半分の値 r_d ($r_d = D/2$) は、絞り Ap による回折収差と呼ばれる。回折収差は、収束半角 α (または取り込み角 α などともよばれる) を大きくすることで波長限界を上限に小さくなってゆく。汎用電子顕微鏡で使用される磁界型対物レンズの場合、幾何光学的な考察を用いる限り α を 10 mrad 前後の値に設定することで、最も高い分解能が得られることが示唆される。これは、次節以降で述べるように、球面収差、および、色収差などの開口収差に関しては、回折収差とは逆に α が小さいほど収差が小さくなることによる。すなわち、開口収差と回折収差が互いに適正なバランスとなる α により最も高い分解能が与えられることになる。この幾何光学的考察による説明は、STEM において試料上に電子プローブを形成する場合によく用いられる。TEM の場合は、このような幾何光学的な考察は適用されず、後に述べるように、理論分解能と一般に呼ばれる量として、波動光学的な取り扱いを持って定義される。

2.3 球面収差

可視光を用いる光学顕微鏡の場合はその波長領域は 400nm～700nm 程度であり、バクテリアの観察が可能であるが、ウイルスの観察は困難である。これに対して結像媒体に電子を用いると、そのドブロイ波長 λ は、電子の運動量 p 、プランク定数 h により (2-2) 式で与えられる。

$$\lambda = \frac{h}{p} = 1.2264268 \times (U(1+U \times 0.97847537 \times 10^{-6}))^{-1/2} \quad (\text{nm}) \quad (2-2)$$

ここで U は volt を単位とした加速電位であり、電子を 200kV で加速した場合、その波長は 0.00251 nm となり、分解能の波長限界はボーア半径を遥かにしのぐ。このような短波長媒体による結像が可能のため、電子顕微鏡は発明当初、原子分解能がすぐにでも得られると期待された。ところが、電子顕微鏡の対物レンズに用いられる電磁界レンズにおいては色収差と球面収差が必ず正の値をとり、レンズを複数組み合わせてもこれらをゼロにできないことが Scherzer により証明された [1]。レンズは本来、物面の 1 点から射出する光線を像面の 1 点に収束させる、いわゆる線型作用素子である。ところが、収差が存在すると射出光線は像面の 1 点に収束しなくなり、射出の角度や方位に依存して広がった分布になる。収差には、後に述べるように、次数と対称性によって様々な性質のものが存在するが、電子顕微鏡の発明から収差補正が達成されるおよそ半世紀の間は、3 次の球面収差が電子顕微鏡の分解能を制限する収差であった。

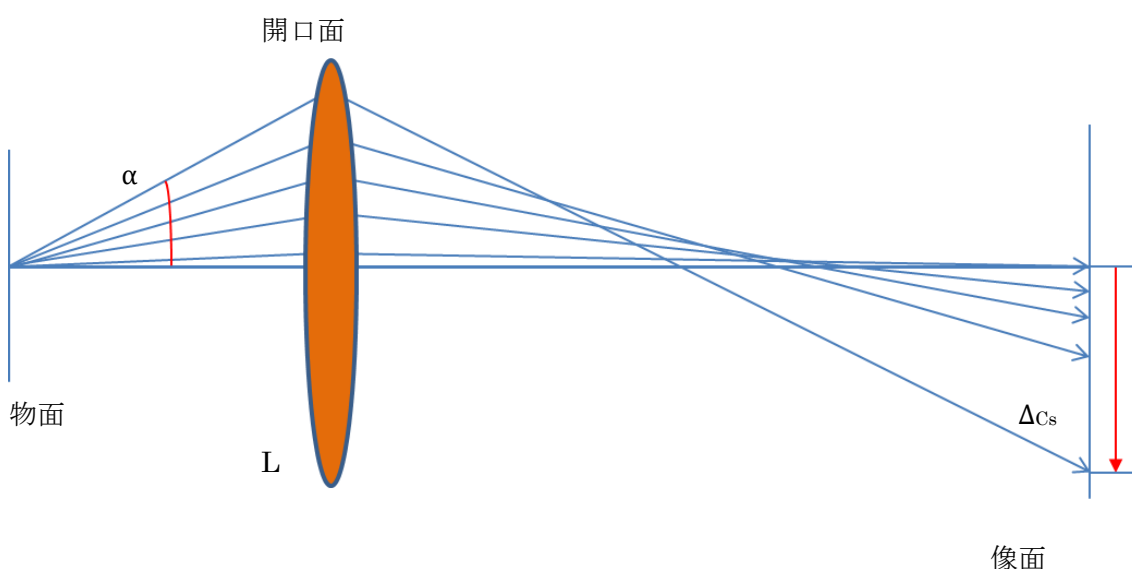


図 2-2 球面収差による各光線の収差

$$\Delta_{Cs} = MC_s \alpha^3 \quad (2-3)$$

3 次の球面収差係数を C_s すると、物面での各光線の着地点のずれ Δ_{Cs} は (2-3) 式により表される。ここで、 M は像の倍率、 α は光線の光軸に対する射出角度である。 Δ_{Cs} は幾何収差と呼ばれるベクトル量であり、レンズ L の球面収差は、幾何収差としては 3 次回転対称の収差として分類される。幾何収差とは光線追跡において着地点のずれを、物面光線の射出角 α の関数として表したものである。

2.4 色収差

電子銃から放出された電荷 $-e$ の電子は、結像媒体として利用するため、加速電位 U によりエネルギー Ue が与えられる。しかし結像時の電子のエネルギーは一様でなく、 Ue 近傍に連続的な分布をとる。この分布は、光源から放出される電子の初期エネルギー分布と、試料内部でのエネルギー損失がおもな原因である。磁界型レンズの偏光力はおよそエネルギーの逆数に比例するため、電子のエネルギー分布に従って、電子の像面での着地点は連続的に分布し、これをレンズの色収差という。レンズの焦点距離決めるコイル電流等、電子顕微鏡の光学系は、加速電位 U に対して設計されており、加速エネルギー Ue に対して焦点距離が f で設計されたレンズは、エネルギーが $(U+de)e$ の電子に対しては焦点距離 $f+\Delta_f$ となる。 Δ_f はレンズの色収差係数 C_c により (2-4) 式で与えられる。

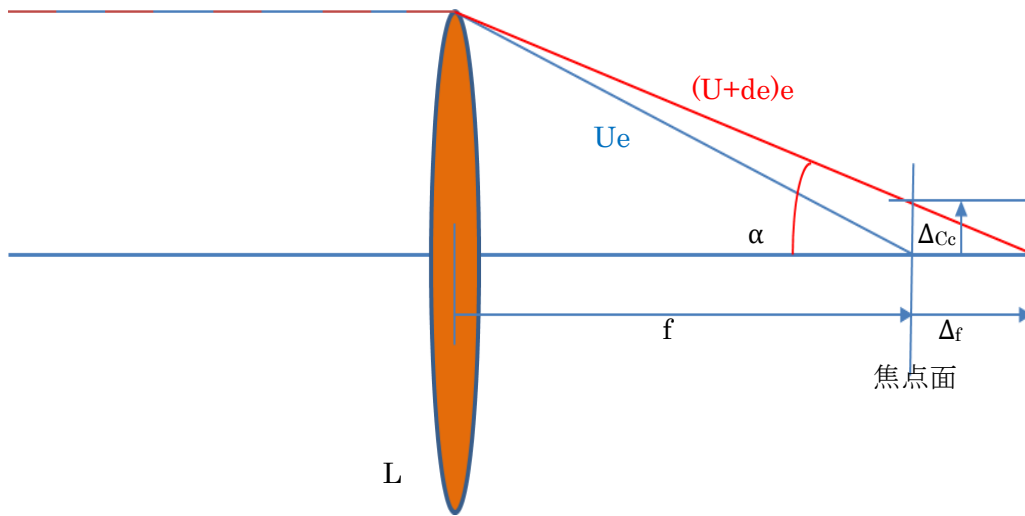


図 2-3 色収差による焦点のずれ

$$\Delta_f = C_c \frac{de(1+2\gamma U)}{U(1+\gamma U)} \quad (2-4)$$

$$\gamma = \frac{e}{2mC^2} = 9.78475 \times 10^{-7} \text{ (1/Volt)} \quad (2-5)$$

ここで、 $(1+\gamma U)$ と $(1+2\gamma U)$ は、それぞれ、電子の加速電位 U と加速電位の微小変化 de に対する相対論補正係数である。色収差による光線の着地点のずれ Δ_{Cc} は(2-6) 式で与えられる。

$$\Delta_{Cc} = \alpha Cc \frac{de(1+2\gamma U)}{U(1+\gamma U)} \quad (2-6)$$

2.5 理論分解能

ここまで、回折収差、球面収差、色収差について述べてきた。これらの収差により、電子顕微鏡の結像においては、物点、または、点光源から射出する電子は、象面の 1 点に収束せずに広がった分布を持つ。この点広がり関数 PSF (point spread function) が顕微鏡の装置的な分解能を決める。透過電子顕微鏡の分解能には TEM (transmission electron microscope) における分解能と STEM (scanning transmission electron microscope) における分解能がある。TEM と STEM は結像方式が異なるため、分解能に対する考え方が異なる。以下、TEM において定義されている理論分解能について述べる。

TEM の場合、試料に対して電子は十分に広がったビーム（平面波）として入射する。本研究では、空間を R 方向に進行する平面波 ψ の位相符号をマイナスと定義する ($\psi(R)=\exp(-2\pi i k R)$)。分解能の定義にあたっては、試料は弱位相物体、すなわち、電子の入射方向の振幅を変えずに（弱物体）、わずかな励起の散乱波の位相のみを変える（位相物体）と考える。試料に入射する波を $\psi_i(r)$ として、これを平面波の基準面すなわち位相ゼロの面とする。

$$\psi_i(r) = 1 \quad (2-7)$$

r は電子進行方向に垂直な面内の位置座標ベクトルである。 $V_p(r)$ を試料電位の投影ポテンシャルとし、これを位相物体と考えるので、試料から射出する波 $\psi_o(r)$ は、入射波 $\psi_i(r)$ が振幅を変えずに位相のみが $V_p(r)$ により変化を受けたものとなる。

$$\begin{aligned} \psi_o(r) &= \psi_i(r) \exp(-i\sigma V_p(r)) \\ &= \exp(-i\sigma V_p(r)) \end{aligned} \quad (2-8)$$

$$\sigma = \frac{2\pi e}{h\nu} \quad (2-9)$$

ここで、 v は電子の速度、 σ は相互作用係数[2],[3]（投影電位を電子の位相変化に換算する

係数) であり、例えば 200kV の加速電圧の場合 $\sigma=7.2884 \times 10^{-3} \text{ 1/(Vnm)}$ となる。

(2-8) 式の位相部のマイナス符号は、進行平面波の位相部にマイナス符号をとったことと相関する。すなわち、正のポテンシャルにより波面は進行し、位相は遅れていくと表現している。投影電位は平均内部電位に投影距離を乗じた程度の値となり、試料の平均内部電位は例えば非晶質カーボンの場合 8 V 程度であるので、試料厚さを 1 nm とすると(2-8) 式の位相部において、 $\sigma V_p(r) \approx 0.058$ となる。このように極限ともいえる厚さの試料の場合、(2-8) 式は簡潔に表される。

$$\begin{aligned}\psi_o(r) &= \exp(-i\sigma V_p(r)) \\ &\approx 1 - i\sigma V_p(r)\end{aligned}\quad (2-10)$$

射出波 $\psi_o(r)$ を与える(2-10)式の右辺は、入射波 ($\psi_i(r)=1$) と散乱波 ($-i\sigma V_p(r)$) の和になっている。散乱波は振幅分布が $\sigma V_p(r)$ で、位相が入射波に対して、空間部分を $\pi/2$ 進んだ波となっている。実際の試料では弱位相物体近似が成り立つのは試料のエッジ等のごく薄い部分であるが、TEM の分解能の定義は (2-10) 式に基づいている。

物面 (試料) からの射出波はレンズにより、後焦点面を経て像面に至る。物面から後焦点面に伝播した波を $\hat{\psi}(k)$ とすると、レンズの作用は無遠慮伝播として働くことより、 $\hat{\psi}(k)$ は $\psi_o(r)$ のフーリエ変換で与えられる。

$$\begin{aligned}\hat{\psi}(k) &= \text{FT}[\psi_o(r)] \\ &= \int \psi_o(r) \exp(2\pi i k r) dr \\ &= \delta(k) - i\sigma \hat{V}_p(k)\end{aligned}\quad (2-11)$$

$\delta(k)$ はディラックのデルタ関数である。また FT をこれ以降フーリエ変換の演算子として使用する。後焦点面では、レンズの収差の影響で波の位相は攪乱される。後焦点面での位相攪乱が、先に述べた像面での着地点のずれである幾何収差を生む。位相攪乱 $\gamma(k)$ は波面収差関数 (wave aberration function) $\chi(k)$ により記述される。球面収差が補正されていない光学系では、 $\chi(k)$ は球面収差係数 C_s とデフォーカス量 df を考慮することで与えられる [4]。

$$\chi(k) = \frac{1}{2} df \lambda^2 k^2 + \frac{1}{4} C_s \lambda^4 k^4 \quad (2-12)$$

幾何収差が光線の着地点でのずれを表すベクトル量であるのに対して、波面収差関数 $\chi(k)$ は、実際の波面とガウス参照球面とよばれる基準波面からの距離を表すスカラー量である。幾何収差と波面収差は、同じ収差という物理量を、それぞれ、幾何光学的に表した量、波動

光学的に表した量である。波面収差に $(2\pi/\lambda)\chi(k)$ を乗じると、位相攪乱を表す関数 $\gamma(k)$ が得られる。

$$\begin{aligned}\gamma(k) &= (2\pi/\lambda)\chi(k) \\ &= \pi \left(df\lambda k^2 + \frac{1}{2}Cs\lambda^3 k^4 \right)\end{aligned}\quad (2-13)$$

波面収差 $\chi(k)$ により位相攪乱 $\gamma(k)$ を与えられた後焦点面での波 $\hat{\psi}_a(k)$ は、以下のように与えられる。

$$\begin{aligned}\hat{\psi}_a(k) &= \hat{\psi}(k)\exp(i\gamma(k)) \\ &= (\delta(k) - i\sigma\hat{V}_p(k))\exp(i\gamma(k))\end{aligned}\quad (2-14)$$

像面での波は、収差の影響を受けた後焦点面での波 $\hat{\psi}_a(k)$ をフーリエ変換したものとして与えられる。ただし、ここでのフーリエ変換はフーリエ逆変換とすることが多い。というのは、逆変換にすることで、本来レンズ結像では倒立像が得られるところを、計算上では正立像が得られるとして取り扱うことができる。両者の違いは座標反転のみであるので、以下においても、後焦点面の波 $\hat{\psi}_a(k)$ から像面への波 $\psi_{im}(r)$ への伝播を、フーリエ逆変換 FT^{-1} として取り扱う。

$$\psi_{im}(r) = FT^{-1}[\hat{\psi}_a(k)] \quad (2-15)$$

TEM 像 $I(r)$ とは像面の波 $\psi_{im}(r)$ の強度のことである。

$$\begin{aligned}I(r) &= |\psi_{im}(r)|^2 \\ &= \psi_{im}(r) \psi_{im}^*(r)\end{aligned}\quad (2-16)$$

ここで $\psi_{im}^*(r)$ は $\psi_{im}(r)$ の複素共役を意味する。弱位相物体における入射波 $\psi_i(r)$ から TEM $I(r)$ 像形成の様子を図 2-4 に示す。

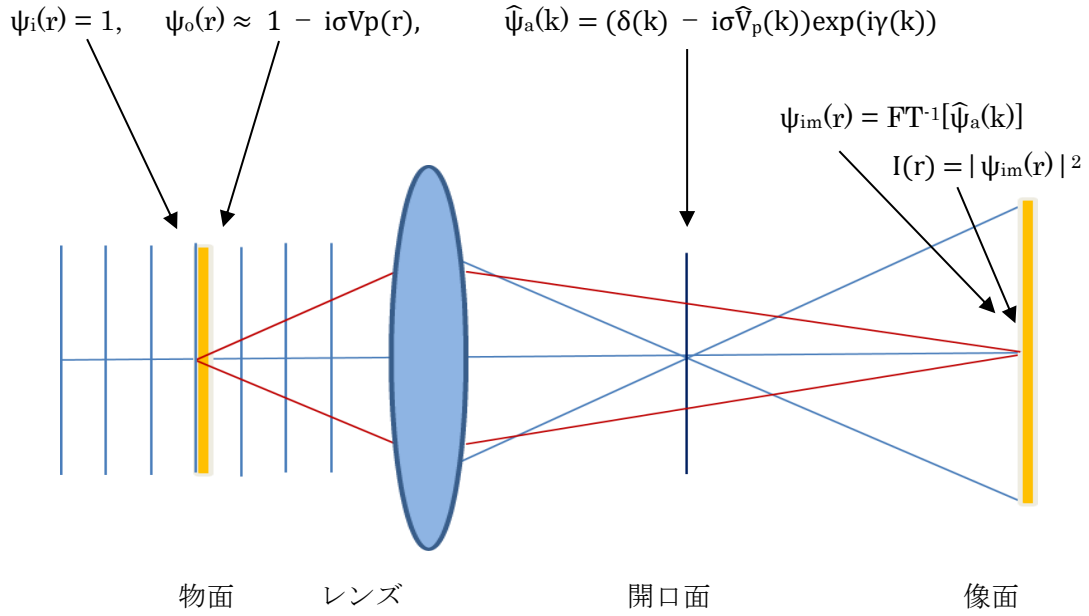


図 2-4 弱位相物体の結像

TEM の分解能は、弱位相物体の TEM 像 $I(r)$ に含まれる空間周波数を評価することで定義される。すなわち、像 $I(r)$ のフーリエ変換 $\hat{I}(k)$ を評価することになる。

$$\begin{aligned}
 \hat{I}(k) &= \text{FT}[I(r)] \\
 &= \text{FT}[\psi_{im}(r)] * \text{FT}[\psi_{im}^*(r)] \\
 &= \hat{\psi}_a(k) * \hat{\psi}_a^*(-k) \\
 &= [(\delta(k) - i\sigma \hat{V}_p(k)) \exp(i\gamma(k))] * [(\delta(k) + i\sigma \hat{V}_p^*(-k)) \exp(-i\gamma(-k))] \\
 &= \delta(k) (\exp(i\gamma(k)) + \exp(-i\gamma(-k))) \\
 &\quad - i\sigma \hat{V}_p(k) (\exp(i\gamma(k)) - \exp(-i\gamma(-k))) \\
 &\quad + (-i\sigma \hat{V}_p(k) \exp(i\gamma(k))) * (i\sigma \hat{V}_p(k) \exp(-i\gamma(-k))) \quad (2-17)
 \end{aligned}$$

(2-17) 式の導出においては、試料の投影ポテンシャル $V_p(r)$ が実関数であることより、そのフーリエ変換においての以下の関係、

$$\hat{V}_p(k) = \hat{V}_p^*(-k) \quad (2-18)$$

および、波面収差関数 $\chi(\mathbf{k})$ が、実関数であることによる以下の関係を用いた。

$$\gamma(-\mathbf{k}) = \gamma^*(\mathbf{k}) \quad (2-19)$$

(2-17) 式の第 1 項は、原点付近のみに強度が集中したデルタ関数であり、像面では一様強度のバックグラウンドである。第 3 項は、散乱波間の干渉による像成分であり、弱位相物体においては殆ど強度を持たず、無視される像成分である。第 2 項が弱位相物体の像成分であり、試料ポテンシャルを線型に写像する。第 2 項を $I_c(\mathbf{k})$ とすると、一般の波面収差 $\chi(\mathbf{k})$ に対しては、 $I_c(\mathbf{k})$ は (2-20) 式で与えられる。

$$\begin{aligned} I_c(\mathbf{k}) &= -i\sigma\hat{V}_p(\mathbf{k})(\exp(i\gamma(\mathbf{k})) - \exp(-i\gamma(-\mathbf{k}))) \\ &= 2i\sigma\hat{V}_p(\mathbf{k})\left(\sin\frac{\gamma(\mathbf{k})+\gamma(-\mathbf{k})}{2}\right)\exp\left(i\frac{(\gamma(\mathbf{k})-\gamma(-\mathbf{k})-\pi)}{2}\right) \\ &= 2\sigma\hat{V}_p(\mathbf{k})\left(\sin\frac{\gamma(\mathbf{k})+\gamma(-\mathbf{k})}{2}\right)\exp\left(i\frac{(\gamma(\mathbf{k})-\gamma(-\mathbf{k}))}{2}\right) \end{aligned} \quad (2-20)$$

球面収差 C_s が補正されていない電子光学系では、波面収差は C_s と df を考慮すれば十分である。この場合位相攪乱 $\gamma(\mathbf{k})$ は偶関数となるので $I_c(\mathbf{k})$ は (2-21) 式となる。

$$\begin{aligned} I_c(\mathbf{k}) &= 2\sigma\hat{V}_p(\mathbf{k})\sin\gamma(\mathbf{k}) \\ &= 2\sigma\hat{V}_p(\mathbf{k})\sin\pi(df\lambda k^2 + \frac{1}{2}C_s\lambda^3 k^4) \end{aligned} \quad (2-21)$$

(2-21) 式は、試料情報 $\hat{V}_p(\mathbf{k})$ が、逆空間での振幅変調関数である $\sin\gamma(\mathbf{k})$ を介して、像情報に伝達される様子を表している。変調関数 $\sin\gamma(\mathbf{k})$ はコントラスト伝達関数と呼ばれ、Scherzer により TEM 像の分解能を定義するのに用いられた[4]。式(2-7)～式(2-21) は、位相コントラストの結像成分の導出であるため、実空間の点広がり関数の働きと直接の関連はないが、レンズを線型系の応答という概念でとらえれば、 $2\sigma\sin\gamma(\mathbf{k})$ は点広がり関数のフーリエ変換と理解できる。

$\sin\gamma(\mathbf{k})$ は、原点で値ゼロをとり、その後振動を繰り返す振幅変調関数である。様々なデフォーカスに対して、 $\sin\gamma(\mathbf{k})$ の振動が変化する様子を図 2-6 に示す。理想的には $\sin\gamma(\mathbf{k})$ が $\mathbf{k}$ の値によらず一定の定数値をとることであり、このように $\sin\gamma(\mathbf{k})$ が振る舞えば、式(2-21) より像強度が試料ポテンシャルを正しく反映することになる。実際は $\sin\gamma(\mathbf{k})$ がゼロから始まるので像の低周波成分が欠損する。これは、位相コントラスト TEM 像の特徴の一つである。 C_s の存在下において、試料ポテンシャルを最も正確に結像する条件として、Scherzer フォーカスと呼ばれる結像条件がある。

$$\gamma(k_1) = \frac{2}{3}\pi \quad (2-22)$$

$$\frac{d\gamma(k_1)}{dk} = 0 \quad (2-23)$$

Scherzer フォーカスとは、式 (2-22) のように γ が $(2/3)\pi$ となる k_1 において、式(2-23) が同時に成り立つようなデフォーカス df_{Sch} である。これは $\sin \gamma(k)$ の最初のゼロを与える k_0 まで、関数ができるだけ一様に延びる条件とされている。式 (2-13)、(2-22)、(2-23)より、

$$df_{Sch} = -\left(\frac{4}{3} Cs\lambda\right)^{1/2} \quad (2-24)$$

$$k_0 = 1.51 Cs^{-1/4} \lambda^{-3/4} \quad (2-25)$$

式 (2-24) で与えられる df_{Sch} は発見者の名前を冠して Scherzer フォーカスと呼ばれる。これにより定義される理論分解能 Δr は、式 (2-25)で与えられる k_0 の逆数となる。

$$\Delta r = 0.66 Cs^{1/4} \lambda^{3/4} \quad (2-26)$$

空間周波数 k に対するコントラスト伝達関数 $\sin \gamma(k)$ の値は、電子の波長 λ 、球面収差係数 Cs 、レンズのデフォーカス df により決まる。 λ と Cs は、それぞれ、加速電圧とレンズの磁極片形状により、装置設計において決まる。一方、 df はレンズの励磁電流を変えることで、顕微鏡操作者が任意に設定することができる。図 2-5 に様々なデフォーカスでのコントラスト伝達関数と、弱位相物体近似が比較的良好であてはまるとされる生体タンパクの計算像を、ヒトの hemoglobin を例として示す。Scherzer focus における伝達関数が、弱位相物体に対するもっとも好ましい結像とされている。

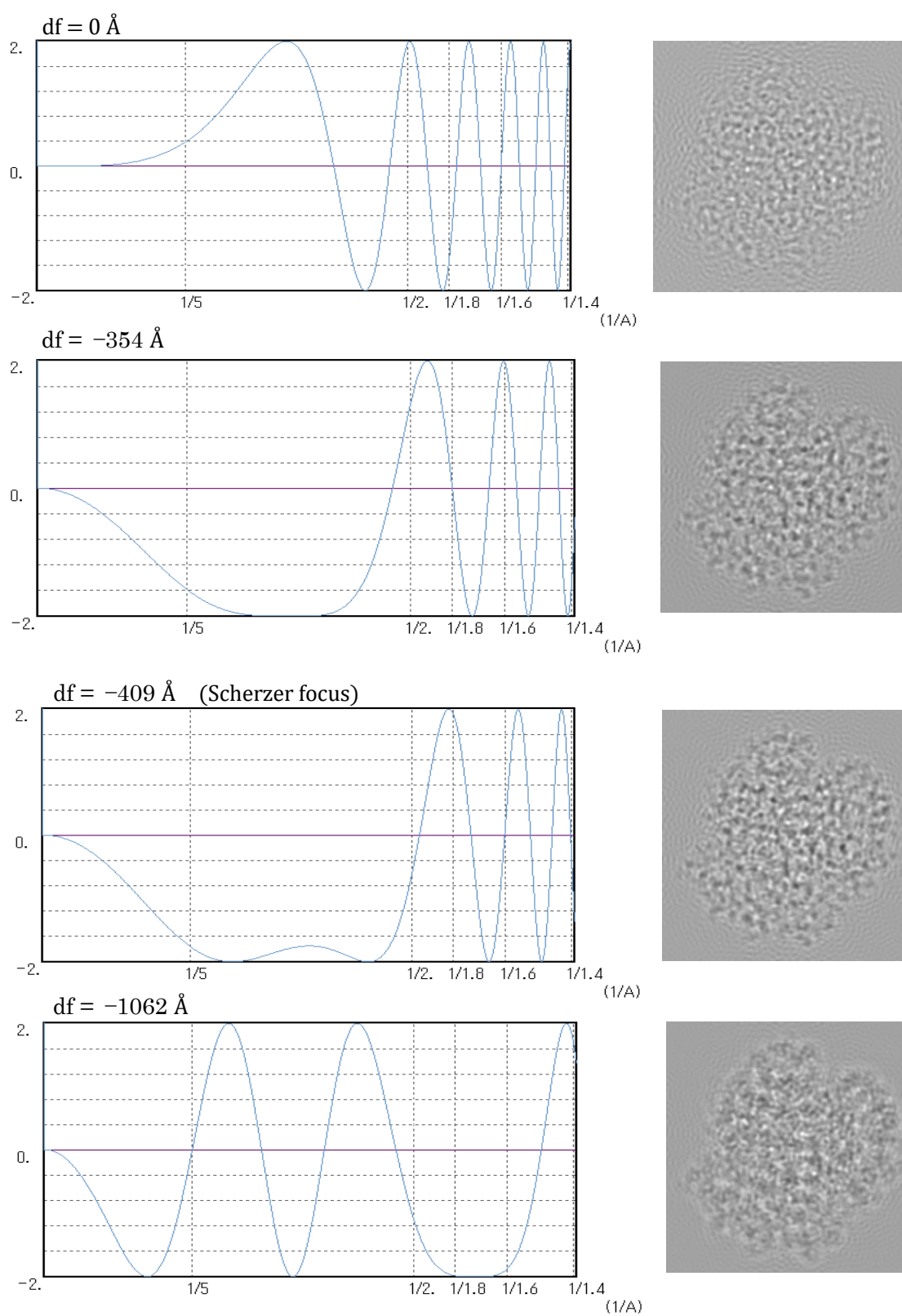


図 2-5 Scerzer フォーカスの伝達関数 $\sin\gamma(k)$ および hemoglobin の結像,
 $U = 200\text{kV}$ ($\lambda=0.0251 \text{ Å}$), $C_s=0.5 \text{ mm}$

2.6 部分干渉性 (partial coherence)

前節における理論分解能の定義は、電子の干渉性の程度は考慮せずに行われたものである。電子源は、実際には可干渉状態(coherent)と非干渉状態(incoherent)の中間にあり、部分干渉性(partial coherence)を持つと考えられる。本節にて示すように、部分干渉性を考慮した場合でも、理論分解能を与えるコントラスト伝達関数の最初のゼロ位置は、ほとんど変化しない。したがって、理論分解能は、干渉性を考えずに前節のように議論できる。部分干渉性による干渉度の低下の影響は、伝達関数を包みつつゼロに漸近するエンベロープ(envelope)関数として現れる。部分干渉性には、後焦点面に形成される電子光源のサイズによる項と、光源の非単色性による項がある。

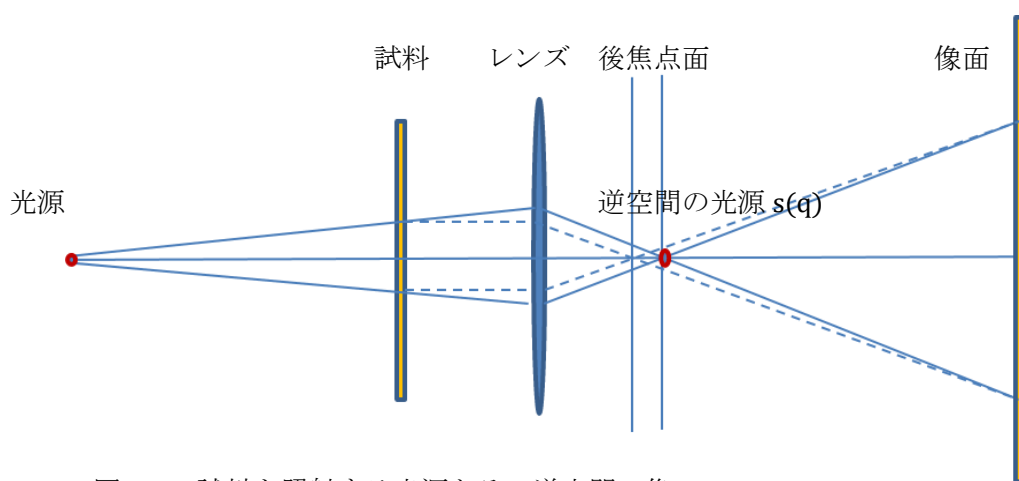


図 2-6 試料を照射する光源とその逆空間の像

2.6.1 電子源の逆空間での強度分布による部分干渉項

光源が点光源である場合、TEM 像の結像は(2-7)式のように、単一の波動関数の取り扱いで記述される。式(2-7)は入射の波動関数を平面波としているが、これは点光源を照射レンズの前焦点に配置させることで達成される。現実の光学系においては、有限の大きさの光源が、物面から十分な距離をとって試料を照射している。試料を透過した電子のうち、試料により進行方向変えなかった電子により、対物レンズの後焦点面より少し下に光源の像が形成される [5]。もともとの光源は互いに独立した点光源の集合と考えられるので、後焦点面に形成される光源の像も独立な点光源の集合とみなして考える。独立な点光源の集合である光源が存在すると考えて議論を進める場合、このような光源は、初期の文献において **effective source** と呼ばれた[6]。光源の強度分布に依存した部分干渉項は、後焦点面に形成される **effective source** の強度分布が像に与える影響をもって定式化されている [7]。ここでは、前節に引き続き試料を弱位相物体と考える。光源である **effective sources** の強度分布を $s(q)$ として、結像におけるその影響を考える。式 (2-17) における、弱位相物体の像成分 $I_c(k)$

は点光源による像成分である。散乱を受けなかった波の動関数とは(2-14)式の $\delta(k)$ のことであり、点光源の波動関数に対応している。互いに独立な光源の強度分布 $s(q)$ により像 $I_{cs}(k)$ が形成されるとすると、点光源の微小要素パラメータ q が形成する像の、強度分布 $s(q)$ を重みとした総和が $I_{cs}(k)$ を与える [8]。

$$I_{cs}(k) = \int s(q) i\sigma \hat{V}_p(k) (-\exp(i\gamma(k+q)) + \exp(-i\gamma(-k-q))) dq \quad (2-27)$$

式 (2-27) では、 $\hat{V}_p(k) \approx \hat{V}_p(k+q)$ の関係が用いられているが、これは、逆空間での光源の広がり、試料構造の構成成分に比較して十分無視できることを想定している。実際 $s(q)$ が重みをもつ q の範囲は角度に換算して 2 mrad もあれば大きいほうで、この程度の傾きを試料に与えても、ほとんど観察される投影構造は変化しない。光学における結像や伝播等が、式 (2-27) のようなコンボリューションで表されることはよくあるが、この場合被積分関数をテーラー展開の 1 次項までの考慮で済ますことで、計算をフーリエ変換に転じることができる。式 (27) の q の場合も角度換算値は非常に小さい値なので、以下のように扱える。

$$\gamma(k+q) \approx \gamma(k) + q \frac{\partial \gamma(k)}{\partial k} \quad (2-28)$$

$$\begin{aligned} -\exp(i\gamma(k+q)) + \exp(-i\gamma(-k-q)) &= (-\exp(i\gamma(k)) + \exp(-i\gamma(-k))) \exp(iq \frac{\partial \gamma(k)}{\partial k}) \\ &= 2\sin \gamma(k) \exp(iq \frac{\partial \gamma(k)}{\partial k}) \end{aligned} \quad (2-29)$$

ただし、波面収差は C_s と df のみを考慮し、 $\gamma(k)$ が偶関数となることを用いた。有限の大きさを持つ光源による像成分 $I_{cs}(k)$ は以下のように与えられる。

$$I_{cs}(k) = 2\sigma \hat{V}_p(k) \sin \gamma(k) E_j(k) \quad (2-30)$$

$$E_j(k) = \int s(q) \exp(iq \frac{\partial \gamma(k)}{\partial k}) dq \quad (2-31)$$

式 (2-30) で得られる光源の干渉性を考慮した像成分 $I_{cs}(k)$ は、完全可干渉の場合の像成分に、部分干渉性を表す項 $E_j(k)$ を乗じたものとなっている。 $E_j(k)$ は、式 (2-31) より、逆空間における光源の強度分布 $S(q)$ のフーリエ変換として与えられる。 $S(q)$ は式 (2-32) の正規分布をとると仮定されて議論される場合多い。正規分布のフーリエ変換は同じく正規分布を与えることが知られており、有限サイズの光源が式 (2-32) で与えられるとすれば、式 (2-31) より部分干渉項 $E_j(k)$ は、積分を解析的に解くことで式 (2-33) として得られる。なお、 q は 2 次元パラメータであるので、フーリエベッセル積分および Weber の積分を用

いることとなる[8]。

$$s(q) = \frac{1}{\pi q_0^2} \exp\left(-\frac{q^2}{q_0^2}\right) \quad (2-32)$$

$$\begin{aligned} E_j(k) &= \exp\left(-\pi^2 q_0^2 \left|\frac{\partial \chi(k)}{\lambda \partial k}\right|^2\right) \\ &= \exp\left(-\pi^2 q_0^2 \left|df \lambda k + Cs \lambda^3 k^3\right|^2\right) \end{aligned} \quad (2-33)$$

ここで、一般的な関係として、幾何収差を $G(k)$ とすると、波面収差 $\chi(k)$ との関係を表式 (2-34) で示しておく。

$$G(k) = \nabla \chi(k) / \lambda \quad (2-34)$$

式 (2-34) の表す、幾何収差と波面収差の関係は、(電磁) ポテンシャルが波面のずれを介して波面収差となり、ポテンシャルの微分である(電磁) 場が電子に働く力を介して着地点のずれである幾何収差となることに対応している。

式 (2-33) で表される部分干渉性の光源の強度分布に関する項は、空間周波数 k の増加とともにゼロに漸近する関数である。

2.6.2 電子源の非単色性による部分干渉項

光源の非単色性は光源のサイズと同様に干渉性の低下を引き起こす。光源の非単色性とは、2.4 において述べたように加速電位 U に対して、電子のエネルギーが U_e の周辺で分布を持つことを指す。この光源電子のエネルギー分布は、強度分布同様に正規分布を持つとして議論される。電子が一樣な電磁場から受ける偏向角は、エネルギー U_e の関数となるため、光源のエネルギー分布は全ての光学素子の動作に影響をおよぼす。しかしこの偏向角はまた、光学素子の励起状態の関数でもあり、定性的な議論では、偏向角のエネルギーによる微分係数は励起状態と線型関係にあると考えてよい。すなわち、エネルギーのわずかに異なる電子は、光学素子の励起状態に比例して偏向角の変化が大きくなる。電子顕微鏡においては対物レンズが最も励起状態の高い状態にあり、さらに、試料の初段倍率 M を与える光学系であるため他光学系の不安定要素は倍率 M^n で縮小されている。ここで n は素子の波動光学的次数である。倍率 M^n で、他の素子の収差等が縮小されていく議論は 4 章 6 節に述べる。ここでは、光源のエネルギー分布は対物レンズに与える影響を考慮すれば十分であるとして、部分干渉性の議論を進める。エネルギーの変化 de は式(2-4)により、対物レンズのデフォーカス変化 df に換算される。結果、光源のエネルギー分布は、対物レンズのデフォーカスの正規分布を表す式 (2-35) を介して、結像に関与すると考えられる。

$$f(\Delta_f) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta_0} \exp\left(-\frac{\Delta_f^2}{\Delta_0^2}\right) \quad (2-35)$$

光源の強度分布と非単色性をともに考慮した結像成分 $I_{cp}(k)$ は、強度分布を考慮した像 $I_{cs}(k)$ に微小なデフォーカス変化 Δ_f を与えることによって形成される像を、分布係数 $f(\Delta_f)$ を重みとした総和をとることにより与えられる [9]。

$$I_{cp}(k) = \int \int f(\Delta_f) s(q) i \sigma \hat{V}_p(k) (-\exp(i\gamma(k+q, df + \Delta_f)) + \exp(-i\gamma(-k-q, df + \Delta_f))) dq d\Delta_f \quad (2-36)$$

被積分関数にある q と Δ_f は 1 次量までとれば十分なほどの微小量であるため γ を以下のよう展開できる。

$$\gamma(k+q, df + \Delta_f) \approx \gamma(k, df) + q \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial k} + \Delta_f \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial df} \quad (2-37)$$

$$\begin{aligned} & -\exp(i\gamma(k+q, df + \Delta_f)) + \exp(-i\gamma(-k-q, df + \Delta_f)) \\ & = (-\exp(i\gamma(k)) + \exp(-i\gamma(-k))) \exp\left(iq \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial k}\right) \exp\left(i\Delta_f \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial df}\right) \end{aligned} \quad (2-38)$$

式(35)、式(36)、式(38)より、式(29)の導出と同様に、収差は C_s と df のみを考慮すること、すなわち $\gamma(k)$ が偶関数となることを用いると、 $I_{cp}(k)$ は (39) 式で与えられる [9]。

$$I_{cp}(k) = 2\sigma \hat{V}_p(k) \sin \gamma(k) E_j(k) E_d(k) \quad (2-39)$$

$E_j(k)$ および $E_d(k)$ は、それぞれ、光源の強度分布および非単色性による部分干渉性を表す項である。

$$\begin{aligned} E_j(k) &= \int s(q) \exp\left(iq \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial k}\right) dq \\ &= \exp(-\pi^2 q_0^2 |df \lambda k + C_s \lambda^3 k^3|^2) \end{aligned} \quad (2-40)$$

$$\begin{aligned} E_d(k) &= \int f(\Delta_f) \exp\left(i\Delta_f \frac{\partial \gamma(k, df)}{\partial df}\right) d\Delta_f \\ &= \exp\left(-\left|\frac{\pi \Delta_0 \lambda k^2}{2}\right|^2\right) \end{aligned} \quad (2-41)$$

図 2-7 に、部分干渉性を考慮した式 (2-39) による、弱位相物体のコントラスト伝達関数と、ヘモグロビンの計算像を示す。

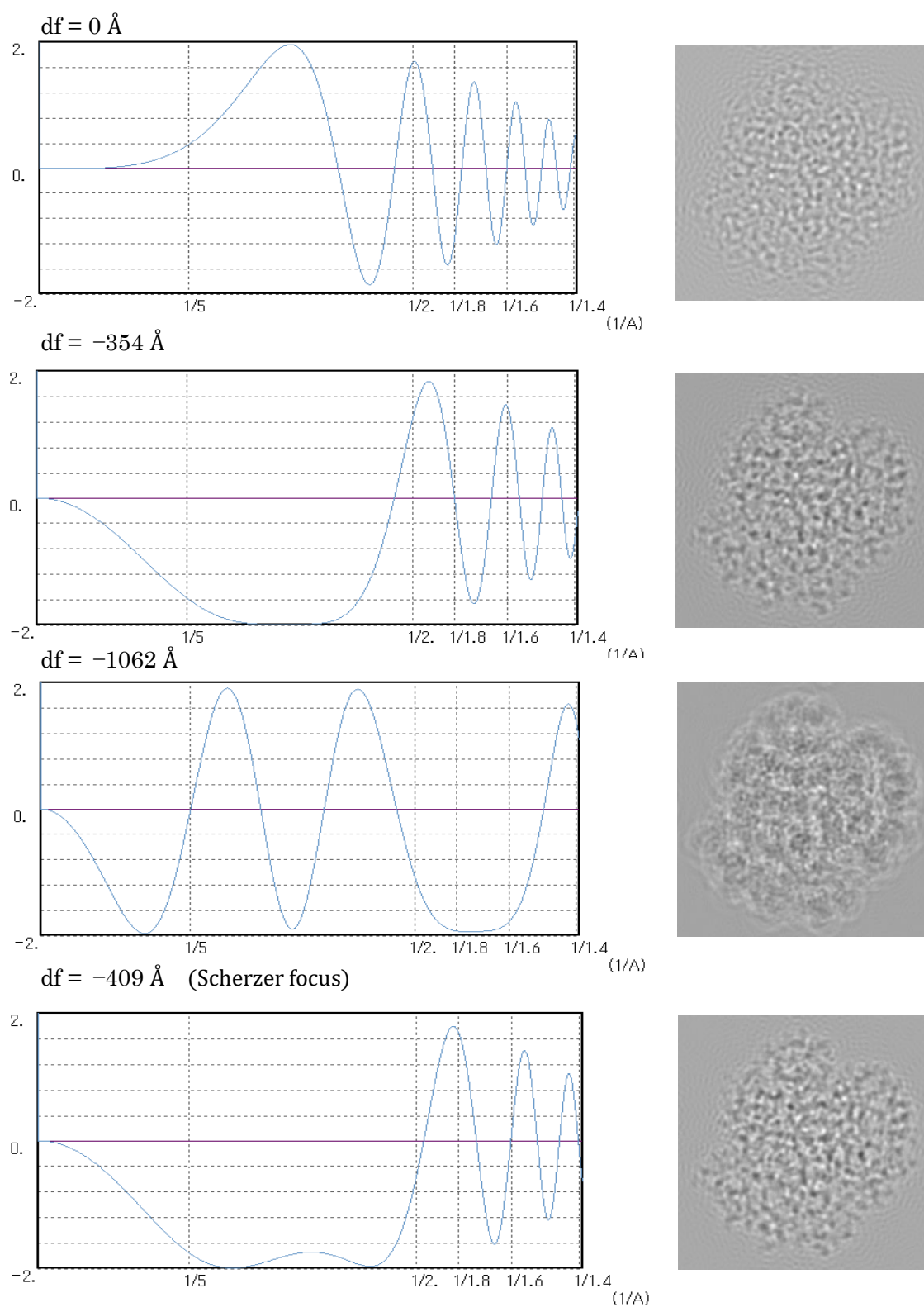


図 2-7 さまざまなデフォーカスでの、部分干渉性を考慮した伝達関数

$\sin \gamma(k)E_j(k)E_d(k)$ および hemoglobin の計算像.

$U = 200\text{kV}$ ($\lambda = 0.0251 \text{ Å}$), $C_s = 0.5 \text{ mm}$, $C_c = 1.3 \text{ mm}$, $\lambda q_0 = 0.3 \text{ mrad}$, $d_e = 0.3 \text{ eV}$

2.7 STEM HAADF 像

2.7.1 試料面での電子プローブと STEM

高分解能観察の目的で設計された電子顕微鏡においては、試料位置は通常、対物レンズの z 方向の磁場分布のほぼ中心に置かれる。図 2-8 に、有限要素法計算で得られた磁場分布と、磁場分布をもとに、ルンゲクッタ法 [10] により計算した電子軌道を示す。図 2-8 に見られるように、磁場分布は試料位置の左右ではほぼ対称になるように設計されており、TEM の結像では、磁場分布の、図における右半分の磁場分布を結像側レンズとして用いる。試料の左半分の磁場分布は照射側のレンズとして、試料上に微小電子プローブを形成するのに用いる。STEM 像の分解能、および、X 線局所分析時の空間分解能を高くするには、試料上にできるだけ小さな電子プローブを形成する必要がある。

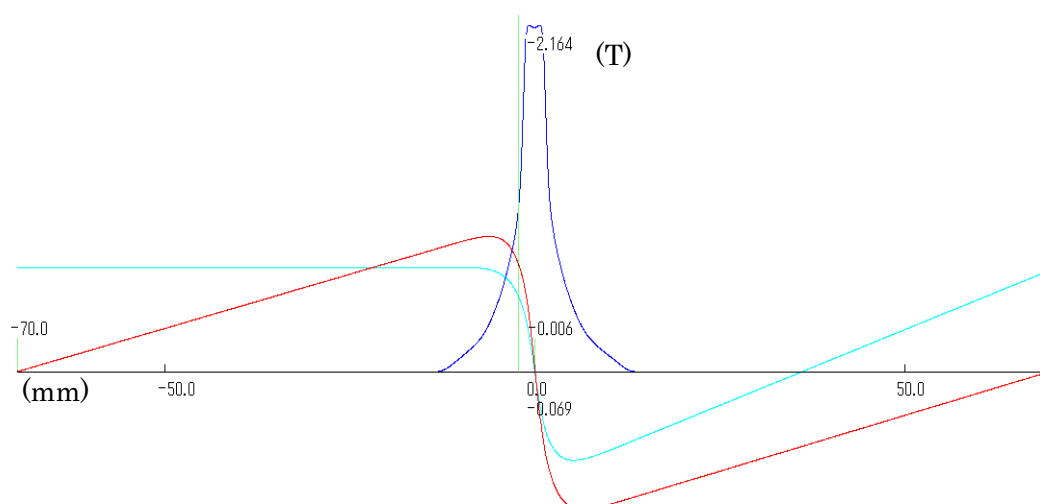


図 2-8 対物レンズの軸上磁場分布と、ルンゲクッタ法により計算した電子の軌道
濃い青のラインは磁場分布、赤いラインは結像電子の軌道を表す。赤いラインが軸と交わる
点に試料が置かれる。薄い青のラインは、無限遠から飛来する電子の軌道である。

STEM、TEM とともに、試料内での電子の動力学的な伝播が、得られる像の解像度を大きく左右する。これでは装置特性としての分解能を議論できないので、動力学的な効果が無視できる試料条件においてのみ分解能が定義される。TEM では 2.4 節で示したように、弱位相物体に対する結像を議論した結果、理論分解能が定義されている。STEM での分解能は通常、HAADF (High angle anular dark field) [11] の結像において議論される。HAADF の場合、試料の静電ポテンシャルと電子ビームのコンボリューションが主な結像成分を与えるとみなし、分解能は試料上に形成される電子プローブのサイズと同程度のものであると考えられる。分解能とは別に、実際の試料に対してどの程度の解像度が期待できるかは、光

学系により形成される入射電子ビームを計算し、さらに試料内部での電子プローブの伝播を動力学的に計算して、シミュレーションにより評価するのが一般的である。以下、レンズによる試料面での電子プローブ形成と HAADF 像の形成について説明する。

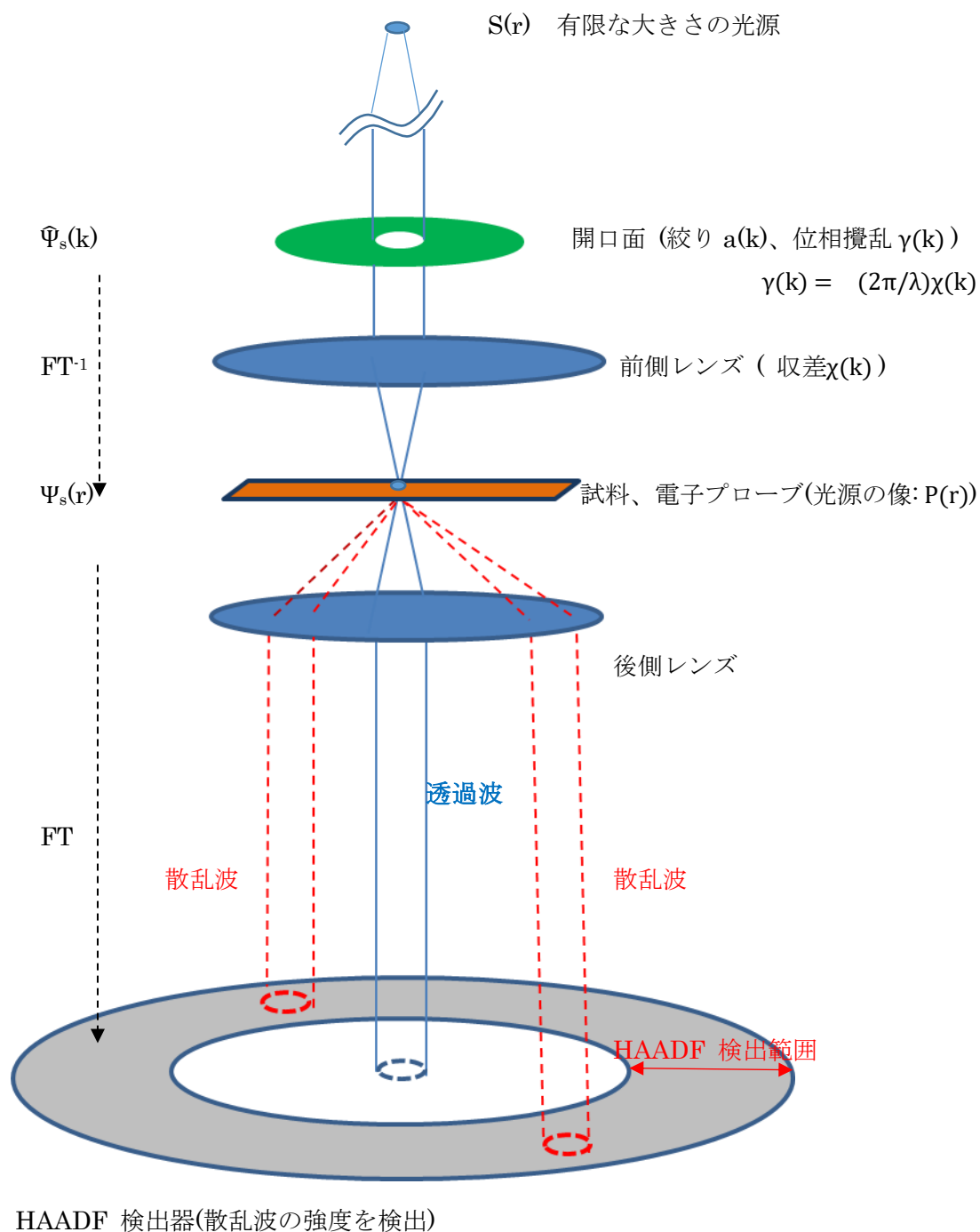


図 2-9 試料上での電子プローブ形成、および試料による散乱波の STEM HAADF 検出

図 2-9 において、まず光源から射出する電子は、開口面にて絞り $a(k)$ 、収差による位相攪乱 $\gamma(k)$ を受けた後、試料上の電子プローブとして結像される。STEM の光学系においては、光軸上の十分遠方に、有限な大きさの光源が配置されている。有限な大きさの光源は、互いに非干渉な点光源の集合とみなすことができる。各点光源から発する電子は、それぞれ僅かに異なる波数ベクトルの平面波として開口面に入射する。開口面においては、異なる点光源に由来する波動関数は互いに非干渉であるが、波数ベクトルの異なりを無視して一律に $\hat{\Psi}_s(k)$ として扱うことができる。波数ベクトルの異なりは、実空間である試料面上でプローブが構成される際の、わずかな位置ズレに相当し、この位置ズレの集合が光源の像を形成する。逆空間においては、 $\hat{\Psi}_s(k)$ は、絞り $a(k)$ と前側レンズの位相攪乱 $\gamma(k)$ により以下のように表わされる。

$$\hat{\Psi}_s(k) = a(k) \exp(i\gamma(k)) \quad (2-42)$$

$$\gamma(k) = (2\pi/\lambda) \chi(k) \quad \text{..... 前側レンズの収差を開口での位相攪乱に投影変換.....}$$

$$= \pi \left(df \lambda k^2 + \frac{1}{2} C_s \lambda^3 k^4 \right) \quad (2-43)$$

$$\begin{aligned} a(k) &= 1, & k \in \text{開口絞り} \\ &0, & k \notin \text{開口絞り} \end{aligned} \quad (2-44)$$

試料面での波動関数 $\Psi_s(r)$ は、前側レンズの作用を逆フーリエ変換と考えて以下のように得られる。

$$\Psi_s(r) = \text{FT}^{-1}[\hat{\Psi}_s(k)] \quad (2-45)$$

試料面での、単一平面波による電子プローブ $p(r)$ は $\Psi_s(r)$ の強度として与えられる。

$$p(r) = \Psi_s(r) \Psi_s^*(r) \quad (2-46)$$

式(2-46)で与えられる単一平面波による電子プローブ $p(r)$ は、光軸遠方に配置された点光源の像であり、その複素振幅 $\Psi_s(r)$ は式(2-42)を逆フーリエ変換することで計算できる。 $p(r)$ は軸上に点光源が配置されている場合における、試料上での点広がり関数 (point spread function [12]) である。有限な大きさの光源に対応する電子プローブを $P(r)$ とすると、 $P(r)$ は、光源が試料面に無収差で結像された場合の像 $S_G(r)$ と単一平面波による電子プローブ $p(r)$ のコンボリューションで与えられる。試料上の無収差光源像はガウス像と呼ばれる。 $P(r)$ は前側レンズで試料面に形成される光源の像であり、以下のように表わされる。

$$P(r) = p(r) \otimes S_G(r) \quad (2-47)$$

$\mathbf{P}(\mathbf{r})$		試料面で形成される電子プローブ強度
$p(\mathbf{r})$		光軸上に点光源が配置されている場合の電子プローブ強度
$S_G(\mathbf{r})$		光軸上にある有限光源の試料面での無収差像（ガウス像）

ここで、 $\otimes$ はコンボリューションを表す。

2.7.2 Imaginary potential による HAADF 像の形成

STEM の HAADF 像とは、 $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ を試料面で走査し、散乱波の強度を円環型検出器で測定し、 $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ の試料面での走査位置と検出強度を同期させて得られる。HAADF においては通常、100 mrad 以上の高角散乱電子を検出するように円環型検出器が設定される。このような高角領域における散乱成分は、ほぼ試料の熱散漫散乱(TDS: thermal diffuse scattering) の寄与によることが知られている [13]。熱散漫散乱強度の計算手法としては、imaginary potential [14], [15] を仮想的に想定して、これとビーム強度のコンボリューションを行う方法がある。この手法は計算コストも比較的少ないので、HAADF 像のシミュレーション計算によく用いられる。試料の投影された静電ポテンシャルを $V_p(\mathbf{r})$ とすると、 $V_p(\mathbf{r})$ は実部 $V_{pr}(\mathbf{r})$ と虚部 $V_{pi}(\mathbf{r})$ により構成されていると仮定することで、imaginary potential が導入される。実際には虚数部に相当するポテンシャルが実在するわけではないが、imaginary potential $V_{pi}(\mathbf{r})$ を導入することで、結像電子が弾性散乱過程から逸脱する損失分を、ポテンシャルによる電子の吸収として表現することができる。

$$V_p(\mathbf{r}) = V_{pr}(\mathbf{r}) - iV_{pi}(\mathbf{r}) \quad (2-48)$$

電子の入射波を式(2-45)の $\Psi_s(\mathbf{r})$ とし、電子の通過距離にわたって静電ポテンシャルを投影（積分）したものを $V(\mathbf{r})$ とする。もともと imaginary potential は通常の静電ポテンシャル（単位：V）に対して導入されたものであるが、ここではポテンシャルは投影された量（単位：Vnm）として取り扱う。さて、TEM の分解能の議論に際して、入射と散乱と射出がポテンシャル投影面で同時（2 次元的に）に起きると仮定して、式(2-8) を用いたのであるが、STEM HAADF においてもこの考え方をを用いる。これにより、投影ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ から射出した波 $\Psi_{s-out}(\mathbf{r})$ は以下のようになる。

$$\Psi_{s-out}(\mathbf{r}) = \Psi_s(\mathbf{r}) \exp(-i\sigma V_{pr}(\mathbf{r})) \exp(-\sigma V_{pi}(\mathbf{r})) \quad (2-49)$$

式 (2-49) において imaginary potential $V_{pi}(\mathbf{r})$ がゼロであれば、射出波 $\Psi_{s-out}(\mathbf{r})$ と入射波 $\Psi_s(\mathbf{r})$ の振幅は等しくなる。 $\exp(-\sigma V_{pi}(\mathbf{r}))$ は波の振幅変化を表しており、射出波 $\Psi_{s-out}(\mathbf{r})$ の強度は以下のようになる。

$$|\Psi_{s-out}(r)|^2 \approx (1-2\sigma V_{pi}(r)) |\Psi_s(r)|^2 \quad (2-50)$$

式(2-50)は、 $V_{pi}(r)$ による 入射波の強度の損失を表しており、その損失分がどこかで検出されたとすると、その強度 $I_{Los}(r)$ は以下ようになる。

$$I_{Los}(r) = 2\sigma V_{pi}(r) |\Psi_s(r)|^2 \quad (2-51)$$

この弾性散乱からの強度損失分 $I_{Los}(r)$ が、熱散漫散乱の散乱強度に転化したとみなすのが、imaginary potential の考え方である [14]。試料の熱散漫散乱による弾性散乱の強度損失は、Debye-Waller 因子 [16] により与えられ、Debye-Waller 因子と $V_i(r)$ との関係は式(2-52)、式(2-53)により示す。ここに述べる $V_{pi}(r)$ は、計算上の仮想的なポテンシャルであり、この具体的な値を得ようとする際、一般的な実在のポテンシャルとの相違点が明白になる。すなわち、STEM の HAADF 像を見積もるにあたって、検出器の形状に依存して異なる $V_{pi}(r)$ の強度分布が得られることになる。実在のポテンシャルであれば、検出器の形状とポテンシャルの強度分布には何の相関もないが、 $V_{pi}(r)$ の場合は、検出強度を説明する目的の仮想ポテンシャルであるため、これらの間には相関がある。体積 Ω の空間における投影ポテンシャル $V_{pi}(r)$ のフーリエ変換は、3次元静電ポテンシャルのフーリエ変換の断面（原点を含み投影ベクトルと直行するもの）となる。投影ポテンシャル $V_{pi}(r)$ のフーリエ係数 V_k は volt 単位で以下のように与えられる [13]。

$$V_k = \frac{h^2}{2\pi m e \Omega} \sum \exp(2\pi i k r) f_i(s) \quad (2-52)$$

$$f_i(s) = \frac{2h}{m v} \int_{\text{detector}} f(s') f(s-s') \{ \exp(-M s^2) - \exp(-M s'^2) \exp(-M(s-s')^2) \} d^2 s' \quad (2-53)$$

h プランク定数

Ω 散乱体としての体積（投影距離に断面積を乗じた量）

m 電子の静止質量、

e 素電荷

v 電子の速度

f form factor (原子散乱因子)

$s=k/2$ ブラッグ角に相当する逆空間での2次元ベクトル

$\exp(-M s^2)$ Debye-Waller 因子

$M=8\pi^2 u^2$ 温度因子(B 因子)

u^2 熱振動による原子位置の平均二乗変移

式 (2-52) はもともと、通常の 3 次元静電ポテンシャルにおける、原子散乱因子とポテンシャルのフーリエ係数の関係を表すものであり、本来、 $\mathbf{k}$ および $\mathbf{r}$ は 3 次元ベクトルである。ここでの議論のように投影ポテンシャルを得ようとする場合は、 $\mathbf{k}$ および $\mathbf{r}$ は 2 次元パラメータとなる。すなわち、 Ω の空間に含まれるすべての原子座標についての総和をとり、その際に座標の z 成分をすべて 0 として計算する。

式(2-53)で計算される $f_i(\mathbf{s})$ は absorptive form factor の本来の 2 次元逆空間全体にわたる積分に対して、STEM HAADF の高角散乱における検出範囲の積分に変更したものである。 $f_i(\mathbf{s})$ は長さ単位(通常 Å)で与えられる量であり、 $2\mathbf{s}$ の散乱方向にある波の観測点が、散乱体から遠ざかるにつれて距離の逆数で減衰する振幅を表現する。

ΩV_k の 2 次元逆フーリエ変換により、imaginary potential $V_i(\mathbf{r})$ が得られる。

$$V_i(\mathbf{r}) = \int \Omega V_k \exp(-2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{k} \quad (2-54)$$

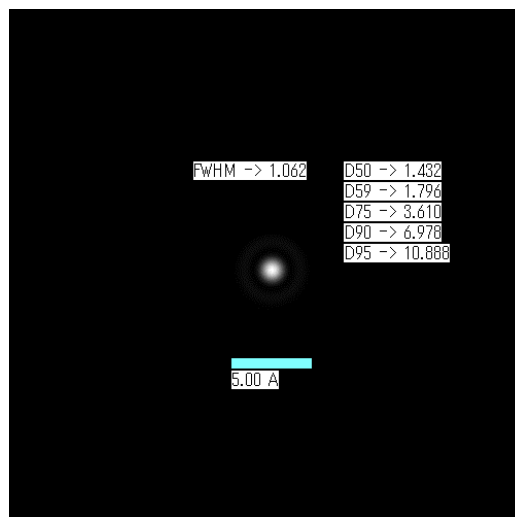
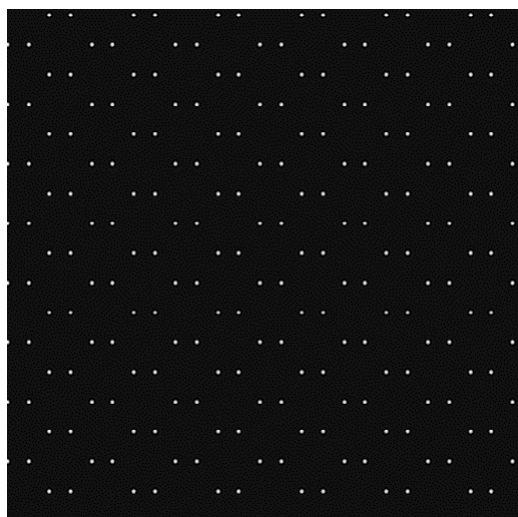
STEM HAADF 像 $I_{\text{HAADF}}(\mathbf{r})$ は式(2-51)のビーム強度 $P(\mathbf{r})$ と $V_i(\mathbf{r})$ のコンボリューションで得られる [17]。

$$\begin{aligned} I_{\text{HAADF}}(\mathbf{r}) &= \int_{\text{scan area}} 2\sigma V_i(\mathbf{t}) P(\mathbf{t}-\mathbf{r}) d\mathbf{t} \\ &= 2\sigma V_i(\mathbf{r}) \otimes |\Psi_s(\mathbf{r})|^2 \otimes S_G(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2-55)$$

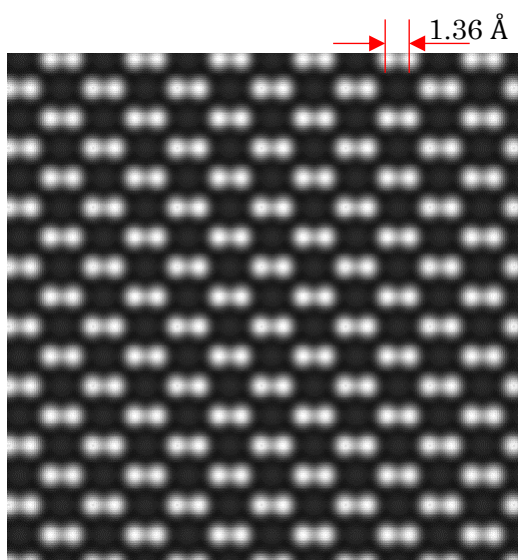
図 2-10 に、Si [110] を試料とした imaginary potential、200kV (球面収差係数 0.5mm、適正フォーカス) の電子プローブ、これらにより得られる STEM HAADF 像をシミュレーション計算にて示す。計算条件で与えられる電子プローブは、FWHM(半値幅) 1.1Å、D50 (ビーム強度の 50 パーセントを含む直径) 1.4Å のビーム形状と計算されている。ビーム強度がガウス分布で与えられる場合は、FWHM と D50 は一致し、この場合一般にビーム径は FWHM とみなされるので、図 2-10b のビーム強度で HAADF を取得した際の分解能は、1.1Å ~ 1.4Å 程度と考えられる。Si 単結晶の[110]方位から見た、HAADF 検出範囲 100mrad ~ 140mrad に相当する imaginary potential の計算結果を図 2-10a に示す。これに、計算条件によるマルチスライス計算を行い、HAADF 像を計算した結果を、図 2-10c に示す。計算された HAADF 像には、1.36Å の投影距離が現れており、ビーム径程度 (FWHM ~ D50) の分解能が得られることが、シミュレーションにて予想される。

ここで予想される STEM HAADF の分解能は、TEM の理論分解能よりも高い値が得られている。TEM と STEM HAADF の結像方式の異なりにより、一般に STEM HAADF のほうが分解能的に高い値が得られやすい。もう一つの重要な相違点として、TEM の像成分は試料が

テンシャルの線型成分の再現性を表現しているが、STEM HAADF の像成分は式(2-52)～式(2-55)より、散乱振幅 f の 2 乗成分にかかわる表現となっている点である。



a) imaginary potential $V_i(r)$ 検出範囲に依存 b) 電子プローブ $P(r)$



計算条件：

Si [110] 厚さ	50 Å
HAADF 検出範囲	100mrad～140mrad
加速電圧	200 kV
球面収差係数(Cs)	0.5 mm
照射半角(α)	12 mrad
色収差係数(Cc)	1.1 mm
エネルギー半値幅	0.35 eV
Debye-Waller 因子	0.35 Å^2
ガウス像 $S_G(r)$	0.1 Å

Si 原子散乱因子 f は Doyle-Turner [18]
 多重散乱過程は Multi-slice 法[2],[17] による。

c) HAADF 像 $I_{\text{HAADF}}(r)$

図 2-10 STEM HAADF 像のシミュレーション計算

2.8 まとめ

本研究は、端的に言って電子顕微鏡の分解能を向上させるためのものである。研究の詳細を述べるに先立って、まず電子顕微鏡の分解能がどのように定義されているかを明らかにする必要がある。本章では電子顕微鏡の分解能の定義、および定義の背景にある電子光学の考え方、用いられる近似等に関して述べた。分解能とは、得られる像がどの程度の正確さで元の物体を再現しているかを判断する指標といえる。電子顕微鏡における、像の物体再現性は、光学系のみでなく試料そのものに大きく依存する。これは、電子と試料物体との相互作用が像と物体との線形性を阻害することに起因している。したがって分解能を定義するには、試料に対して結像が単純化できる仮定が用いられる。**TEM** においては、試料を弱位相物体と想定した場合に線型結像が像成分を形成する。線型結像を逆空間で記述するときに現れるコントラスト伝達関数において、その理想形により分解能が定義されることを説明した。また、**STEM** については、一般に **HAADF** における電子ビームと試料 **potential** とのコンボリューションによる像形成とみなして、試料上に形成可能な最小ビーム径が分解能とみなされることを説明した。このような分解能の定義において、分解能は収差で決まることを一般的な考え方をもとに説明した。

参考文献

- [1] O. Scherzer, Über einige Fehler von Elektronenlinsen, Z. Physik 101, 593-693 (1936).
- [2] J. M. Cowley and A. F. Moodie, The Scattering of Electrons by Atoms and Crystals, I. A New Theoretical Approach, Acta Cryst. 10, 609-619 (1957).
- [3] K. Ishizuka and Natsu Uyeda, A New Theoretical and Practical Approach to the Multislice Method, Acta Cryst. A33, 740-749 (1977).
- [4] O. Scherzer, The Resolution Limit of the Electron Microscope, J. Appl. Phys. (1949).
- [5] F. Hosokawa, M. Suzuki and K. Ibe, Determination of the effective source from its image I the backfocal plane of the objective lens, Ultramicroscopy 36, 367-373 (1991).
- [6] H. H. Hopkins, On the diffraction theory of optical images, Proc. Roy. Soc. A 217, 408-432 (1953).
- [7] H.H. Hopkins, The concept of partial coherence in optics, Proc. Roy. Soc. A 208, 263-276 (1951).
- [8] J. Frank, The envelope of electron microscopic transfer functions for partially coherent illumination, Optik 38, 519-536 (1973).
- [9] R. H. Wade and J. Frank, Electron microscope transfer functions for partially coherent axial illumination and chromatic defocus spread, Optik 49, 81-92 (1977).
- [10] 矢野健太郎編、数学小辞典第2版、共立出版（2010）。
- [11] 田中通義・出井哲彦、透過電子顕微鏡用語辞典、工業調査会（2005）。
- [12] 河田聡、南茂夫、科学計測のための画像データ処理、CQ出版社（1994）。
- [13] S. J. Pennycook and D.E. Jesson, High-resolution Z-contrast imaging of crystals, Ultramicroscopy 37, 14-38 (1991).
- [14] C. R. Hall and P. B. Hirsch, Thermal diffuse scattering of electrons, Proc. Roy. Soc. A 286, 158-177 (1965).
- [15] D. M. Bird and Q. A. King, Absorptive Form Factors for High-Energy Electron Diffraction, Acta Cryst. A46, 202-208 (1990).
- [16] P. Debye, *Interferenz von Röntgenstrahlen und Wärmebewegung. Annalen der Physik* 348, 49-92 (1913).
- [17] K. Ishizuka, A practical approach for STEM image simulation based on the FFT multislice method, Ultramicroscopy 90, 71-83 (2002).
- [18] P. A. Doyle and P. S. Turner, Relativistic Hartree-Fock X-ray and electron scattering factors, Acta Cryst. A24, 390-397 (1968).

3 章 多極子展開とコンビネーション効果による収差の汎用表記

3.1 序論

一般にレンズの開口収差といえは、光軸に対する物点光線の射出角と光軸から物点距離の関数となる[1]。電子顕微鏡の高分解能観察においては、観察領域が光軸から数十 nm 程度であるため、収差量に対する光軸からの距離は、一様に光軸近傍であると考えられる。よって TEM および STEM で高分解能を議論するにあたって、単に収差といえは軸上収差 [2]、すなわち、光軸に対する射出角のみの関数であることを意味する。光軸からの距離によって TEM の像が変調を受ける現象については、おもに中低倍率にて現れる問題であり、軸外収差 [2]として検討される。本章の目的は、任意のポテンシャルが軸上収差を生起するとした場合、存在しうる収差の性質を表す一般表現を得ることである。

3.2 幾何収差と波面収差

レンズの開口収差を定量的に表す場合、同じ収差について、幾何収差 [3] または波面収差 [4] の 2 通りの表現がある。幾何収差とは、像面での無収差の場合の結像点からのズレを表し、波面収差とは、開口面での無収差の場合の波面と実際の波面の距離を表す。無収差の場合の結像点および無収差の場合の開口面の波面は、それぞれ、ガウス像点(Gaussian image point) およびガウス参照球面 (Gaussian reference sphere) とよばれる[1]。

図 3-1 に幾何収差 G と波面収差 χ の定義を示す。また、図 3-2 に幾何収差 G と波面収差 χ の関係を示す。本研究では、ガウス参照球面の内側をスカラー量 χ の正方向とした。また正の χ により得られるベクトル量 G を正ベクトルとした。球面収差を、2.2 では幾何収差として述べたが、2.4 では波面収差として述べた。どちらも同じものを別の効果として表現したものであり、どちらも長さの次元を持つ。収差を定性的に説明する場合は、幾何収差 G として述べる場合が多い。また、電子光学で収差係数を計算する場合も、やはり幾何収差の光線追跡で計算される場合が多い。一方、像の強度分布の正確な計算には波動光学を用いる必要があり、波面収差 χ として開口面で取り入れ、以降は波の伝播の計算を行う。 χ 、 G ともに 2 次元ベクトル変数をとる関数である。変数として、像点あるいは物面からレンズへの仰角 α 、あるいは仰角 α を波長 λ で割った空間周波数 k が用いられる。仰角 α は複素平面でこれを表現した ω が用いられる場合もある。 α を用いると χ と G の関係は以下のようになる。

$$G(\alpha) = \nabla\chi(\alpha) \quad (3-1)$$

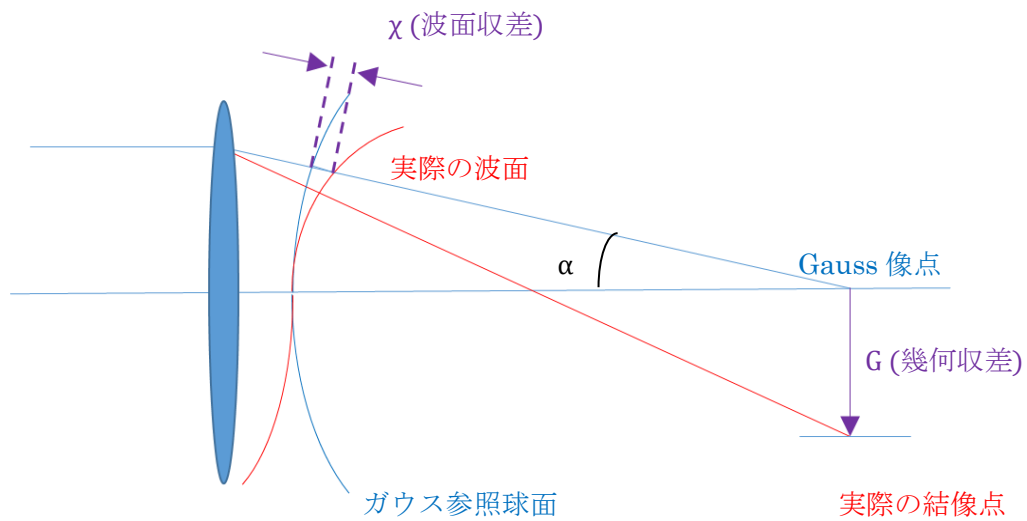


図 3-1 波面収差 χ と幾何収差 G の定義

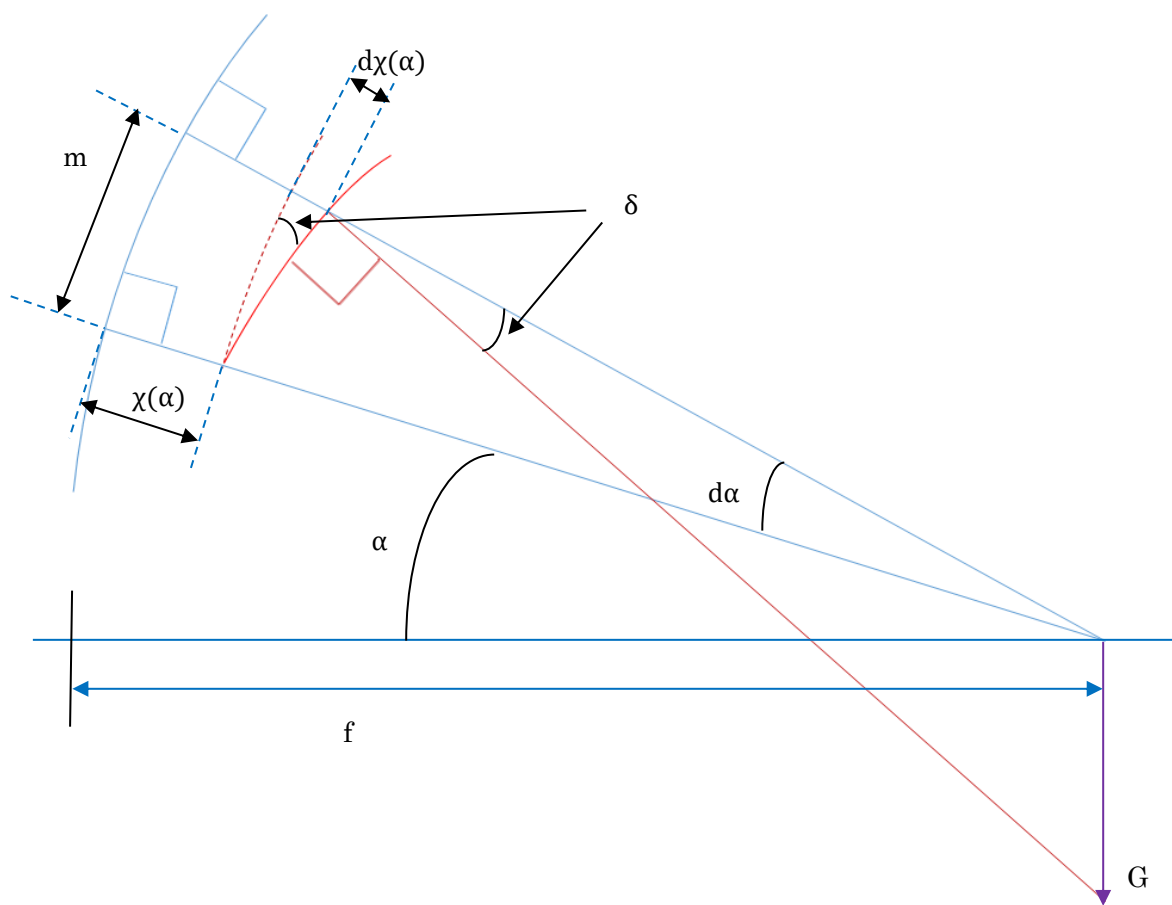


図 3-2 幾何収差 G と波面収差 χ の関係

図 3-2 において、通常の場合 f は数 mm 程度、 $\chi(\alpha)$ は大きくて数 Å 程度である。角度は数 10mrad 程度で $\sin(\theta) \sim \tan(\theta) \sim \theta$ が成り立つ。図より、 $d\chi(\alpha) = m\delta = f d\alpha$ 、よって、 $G = f \delta = d\chi(\alpha)/d\alpha$ となる。 G および χ の符号は、軸に向かう方向を正とする（図の G および χ は正符号の向き）。また、一般には α をベクトル変数として、 $G = \nabla\chi(\alpha)$ となる。

χ 、 G の表現する実体としての収差とは、定性的に表現すれば、次数と対称性で像の不完全成分を表現したものと考えられる。完全レンズであれば、物面の 1 点から像面の 1 点への線型写像が行われる。現実の光学系では、有限な開口角 α による Airy pattern (回折収差) と、レンズの不完全さによる収差（軸上開口収差）により、像面での光線は 1 点に収束しない。収差はすでに述べた 3 次回転対称の球面収差以外に、1 次 2 回対称の非点収差、2 次 1 回対称のコマ等々、無数に存在する。幾何収差はこれを幾何光学、波面収差はこれを波動光学として扱う。幾何光学の考えでは、これら種々の収差は、開口面において電場または磁場により、レンズ成分以外の力が電子に与えられることにより発生する。この余分な力は開口面での電子の軸からの距離に関して、収差の次数のべき乗で作用する。波動光学の考えでは、開口面において電位または磁位（ここでは閉じた空間を扱うことが自明であるためベクトルポテンシャルではなく磁位を用いる）により電子の実際の波面がガウス参照球面からずれることにより、波面収差が発生する。ポテンシャル、場、波面収差、幾何収差の相関を図 3-3 に示す。電子の進行方向から見て、幾何収差、波面収差はそれぞれ、場とポテンシャルと同じとおなじ対称性を持つ。後の節(3-3)の議論から導かれるように、収差は、それぞれ固有の次数と対称性で分類することができる。

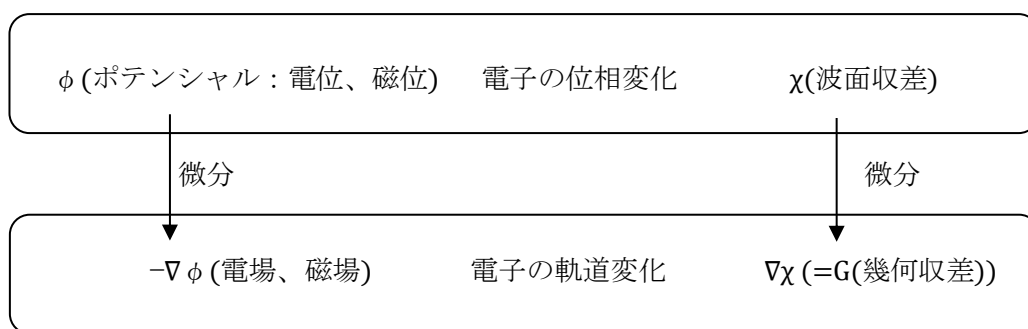
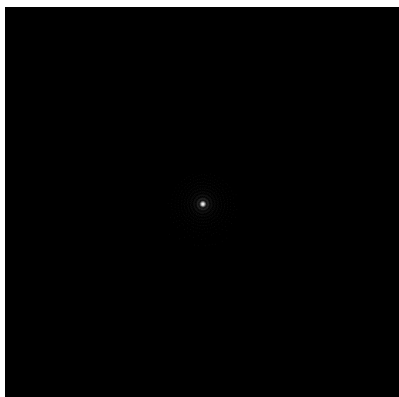


図 3-3 ポテンシャル ϕ ，場 $-\nabla\phi$ 、波面収差 χ 、幾何収差 G の相関図

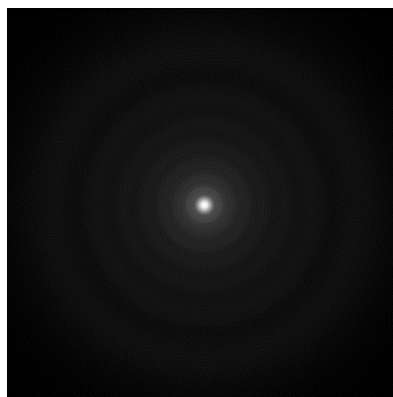
3.2.1 波面収差の波動光学によるシミュレーション例

Airy pattern が、レンズの各種の開口収差によって滲んでゆく様子を、シミュレーション計算にて図 3-4 に示す。計算は、2.7 節（プローブ形成）の式(2-42)～(2-46)をもとに、波動光学の計算で行った。波面収差については、Cs、df 以外に、図に併記の収差を取り入れた。

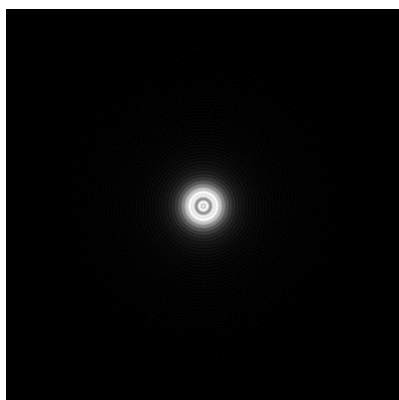
A Airy pattern



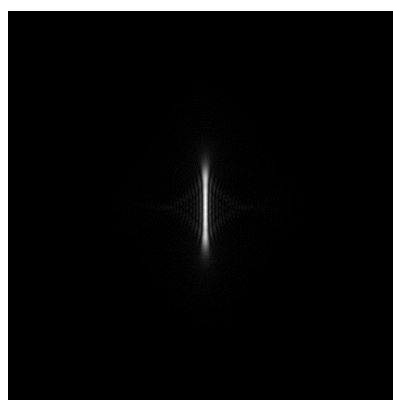
B A + 球面収差 (0.1mm)



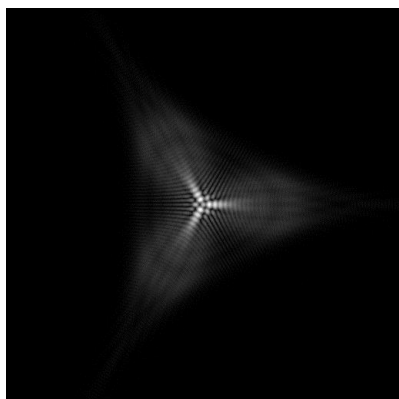
C A + デフォーカス (-100Å)



D C + 2 回非点 (-100Å)



E C + 3 回非点 (1μm)



F C + coma (1μm)

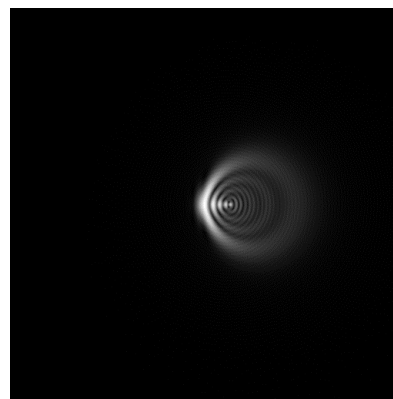


図 3-4 各種収差を加えた Airy pattern

$U = 200\text{kV}$, $\alpha = 30\text{ mrad}$ 、収差の位相角（方向）はすべて 0 度とした。

3.2.2 幾何光学的収差発生例（2 回対称 1 次収差）

幾何光学的な収差の説明として、図 3-5 に 2 回対称 1 次の力を与える電位分布 φ が開口面にある場合を例として示す。この例の場合は、図 3-4 の D に見られる 2 回非点を発生させる。E を電場、 $\mathbf{v}$ を電子の速度、 $\mathbf{B}$ を磁場とすると、開口面での電子の受ける力は、電場の場合は、 $-\mathbf{e}\mathbf{E}$ 、磁場の場合は $-\mathbf{e}\mathbf{v}\times\mathbf{B}$ となる（ $\times$ はベクトルの外積を表す）。

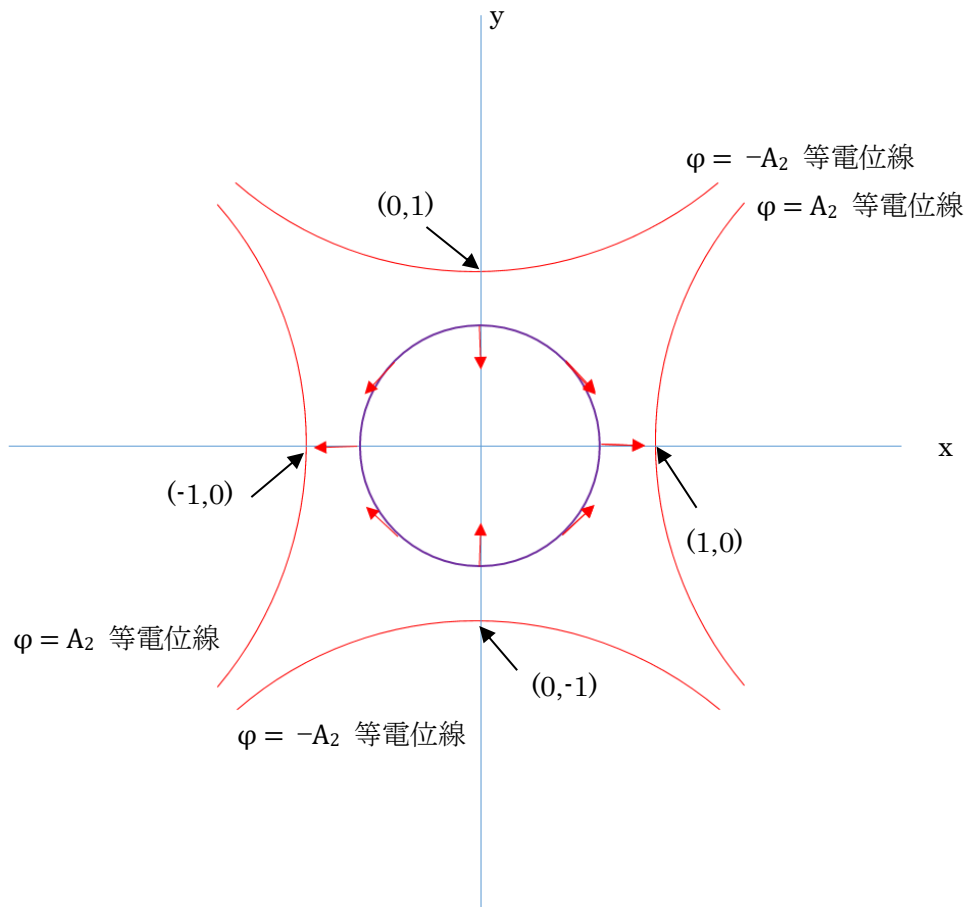


図 3-5 開口面での 2 回対称電位が電子に与える力

$\varphi = A_2 r^2 \cos 2\theta$ の電位分布の場合、開口面における φ の等電位線は 2 回対称となる。

$$\varphi(r, \theta) = A_2 r^2 \cos 2\theta \quad (3-2)$$

$$x = r \cos \theta, \quad y = r \sin \theta \quad (3-3)$$

$$\mathbf{E}(r, \theta) = -\nabla \varphi(r, \theta)$$

$$= -\left(\frac{\partial}{\partial r}, \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}\right) \varphi(r, \theta)$$

$$= (-2A_2r \cos 2\theta, 2A_2r \sin 2\theta) \quad (3-4)$$

開口面で電子の受ける力を $F(r, \theta)$ とすると、

$$\begin{aligned} F(r, \theta) &= -eE(r, \theta) \\ &= e(2A_2r \cos 2\theta, -2A_2r \sin 2\theta) \end{aligned} \quad (3-5)$$

このように、2 回対称 2 次の電位分布から電子の受ける力は、2 回対称 1 次の力となる。開口面で電子に働くレンズ成分以外の力は、電子の像面での着地点にずれ、すなわち収差を与える。力の対称性は収差の対称性に反映され、力の次数は収差の次数に反映される。

図 3-5 では電場による 2 回対称 1 次収差の発生例を図示した。磁場の場合は、力の向きが場の向きと直交し、さらに場を力に変換するパラメータとして、電子の速度が加わるが、対称性と次数に関する収差と場の関係は、電場も磁場も同等な結果となる。またここでは、電場、磁場ともに開口面では力線の連続性を仮定している。すなわち、電子の軌道近傍に電荷は存在しないこと、および、磁極に囲まれた閉じた空間で定義可能なスカラーポテンシャル磁位を想定している。図 3-4 の例以外の、他の対称性と次数を持つ電位および磁位も同様な計算により、一般的結論が得られる。すなわち、電位および磁位の対称性は収差の対称性となり、電位および磁位の次数を一つ下げたものが、幾何収差の次数となる。

3.3 軸上収差とフーリエ級数展開

開口面にある任意の電位および磁位と、それにより発生する収差の性質を詳細に知ることとは、収差の補正の見地から非常に重要である。次数と対称性に関する議論であるため、磁場または電場による任意のポテンシャルを円筒座標で (r, θ) 面をフーリエ級数に展開することから始める。円筒座標での任意のポテンシャルを $\phi(r, \theta, z)$ とする。ここで、 (r, θ) は電子の進行方向 z に垂直な開口面近傍の平面であり平面の原点を光軸が通過するものとする。

$$\phi(r, \theta, z) = \sum_m (\cos(m\theta) \sum_k r^k a_{mk}(z) + \sin(m\theta) \sum_k r^k b_{mk}(z)) \quad (3-6)$$

$a_{mk}(z)$ 、 $b_{mk}(z)$ は (r, θ) 面のフーリエ級数にかかる係数であり、 k はポテンシャルの次数、 m は対称性を表している。 ϕ は、単磁極、点電荷のない空間においては、ラプラス方程式 ($\nabla^2 \phi = 0$) を満たす[5]。これより k 、 m 、およびポテンシャルの z 方向の微分回数について、これら 3 つの量が互いにとりうる組み合わせが明確になる。ラプラス方程式により、 ϕ は式(3-7)を満たしてなければならない。

$$\begin{aligned}
\nabla^2 \phi &= \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \phi \\
&= \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} - \frac{m^2}{r^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \sum_m \left(\cos(m\theta) \sum_k r^k a_{mk}(z) + \sin(m\theta) \sum_k r^k b_{mk}(z) \right) \\
&= \sum_m \left(\cos(m\theta) \sum_k \left(k^2 r^{k-2} a_{mk}(z) - m^2 r^{k-2} a_{mk}(z) + r^k a_{mk}''(z) \right) \right. \\
&\quad \left. + \sin(m\theta) \sum_k \left(k^2 r^{k-2} b_{mk}(z) - m^2 r^{k-2} b_{mk}(z) + r^k b_{mk}''(z) \right) \right) \\
&= 0
\end{aligned} \tag{3-7}$$

対称性 m は任意に設定（実現）可能であるので、式(3-7)は $\cos(m\theta)$ に関して 0 でなければならない。 $\sin(m\theta)$ に関しても同様である。以下 $\cos(m\theta)$ についてのみ考察するが、同等の議論が $\sin(m\theta)$ についても成立する。式 (3-6)における $\cos(m\theta)$ への係数で k の値が 0 ～4 までのものを列挙すると以下のようなになる。

$$\begin{aligned}
k=0 & : & a_{m0}''(z) & - r^{-2} m^2 a_{m0}(z) \\
k=1 & : & r^{-1} a_{m1}(z) & + r a_{m1}''(z) - r^{-1} m^2 a_{m1}(z) \\
k=2 & : & 4 a_{m2}(z) & + r^2 a_{m2}''(z) - m^2 a_{m2}(z) \\
k=3 & : & 9 r a_{m3}(z) & + r^3 a_{m3}''(z) - r m^2 a_{m3}(z) \\
k=4 & : & 16 r^2 a_{m4}(z) & + r^4 a_{m4}''(z) - r^2 m^2 a_{m4}(z)
\end{aligned}$$

ラプラス方程式が成り立つには、 k の総和において、 r の多項式のすべての幂での係数が 0 でなければならない。 r^n の係数が満たすべき条件をまとめると以下のようなになる。

$$\begin{aligned}
n \geq 0 \quad (k \geq 2) \text{ の場合} : \\
r^{k-2} \left(k^2 a_{mk}(z) + a_{mk-2}(z)'' - m^2 a_{mk}(z) \right) = 0
\end{aligned} \tag{3-8}$$

$$\begin{aligned}
n = -1 \quad (k=1) \text{ の場合} : \\
r^{-1} \left(a_{m1}(z) - m^2 a_{m1}(z) \right) = 0
\end{aligned} \tag{3-9}$$

$$\begin{aligned}
n = -2 \quad (k=0) \text{ の場合} : \\
r^{-2} m^2 a_{m0}(z) = 0
\end{aligned} \tag{3-10}$$

式(3-8),(3-9),(3-10)は、ポテンシャルのフーリエ係数 $a_{mk}(z)$ が満たすべき条件を与えている。 $a_{mk}(z)$ を $b_{mk}(z)$ に置き換えると $r^k \sin(m\theta)$ へのフーリエ係数の議論となる。以下、具体的な対称性 m の値について、フーリエ係数 $a_{mk}(z)$ の性質を調べる。

m=0 (回転対称: レンズ作用、球面収差, 5次球面収差, etc.):

式(3-10)より, $a_{00}(z)$ は、点電荷等が存在しない条件のもと、任意に取れる。

$$\text{式(3-9)より, } a_{01}(z) = 0 \quad (3-11)$$

$$\text{式(3-8)より, } k \geq 2: a_{0k}(z) = -\frac{1}{k^2} a_{0k-2}''(z) \quad (3-12)$$

式(3-11)、(3-12)より、 k の奇数次のフーリエ係数はすべて 0 となり、 k の偶数時のフーリエ係数は順次 $a_{00}(z)$ の高階微分で現される (高階導関数は高次収差係数となる)。

以上より、回転対称のポテンシャル $\phi_{(m=0)}$ がとり得る形式は、以下のようになる。

$$\phi_{(m=0)} = a_{00}(z) \left[\frac{-r^2}{4} a_{00}''(z) + \frac{r^4}{64} a_{00}''''(z) - \frac{r^6}{2304} a_{00}^{(6)}(z) + \dots \right] \quad (3-13)$$

$\uparrow$ $\uparrow$ $\uparrow$
 レンズ作用 (df, or, C_1) 球面収差 (C_2 , or, C_3) 5 次の球面収差 (C_5)

df, C_2 , C_5 の成分が $a_{00}(z)$ の高階微分で表されてゆく様子が明らかである。 $a_{00}(z)$ は r に依存しない成分であり、軸上ポテンシャルに相当する。

m=1 (coma, 4次 coma, etc.):

$$\text{式(3-10)より, } a_{10}(z) = 0 \quad (3-14)$$

式(3-9)より, $a_{11}(z)$ は任意にとれる。

$$\text{式(3-8)より, } k \geq 2: k^2 a_{1k}(z) - a_{1k}(z) = -a_{1k-2}''(z) \quad (3-15)$$

(3-14), (3-15)より、 k の偶数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。 $a_{11}(z)$ が任意にとれることと、式 (3-15)より k の奇数時のフーリエ係数は順次 $a_{11}(z)$ の高階微分で表される。

$$\phi_{(m=1)} = \cos(\theta) \left\{ \begin{array}{c} \boxed{ra_{11}(z)} \\ \boxed{-r^3 \frac{1}{8} a_{11}''(z)} \\ \boxed{+r^5 \frac{1}{192} a_{11}^{(4)}(z)} \end{array} + \dots \right\} + \sin(\theta) \left\{ \begin{array}{c} \boxed{rb_{11}(z)} \\ \boxed{-r^3 \frac{1}{8} b_{11}''(z)} \\ \boxed{+r^5 \frac{1}{192} b_{11}^{(4)}(z)} \end{array} + \dots \right\} \quad (3-16)$$

$\nearrow$ $\uparrow$ $\nwarrow$
 ビーム偏向 coma 4 次 coma

m=2 (2 回非点, スター, etc..) :

$$\text{式(3-10)より、} \quad a_{20}(z) = 0 \quad (3-17)$$

$$\text{式(3-9)より、} \quad a_{21}(z) = 0 \quad (3-18)$$

$$\text{式(3-8)より、} k \geq 2: \quad 4a_{2k}(z) - k^2 a_{2k}(z) = a_{2k-2}(z) \quad (3-19)$$

(3-17)と、k=2 の場合の(3-19)より、 $a_{22}(z)$ は任意にとれる。

(3-18),(3-19)より、k の奇数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。 $a_{22}(z)$ が任意にとれることと式(3-19)より、k の偶数時のフーリエ係数は順次 $a_{22}(z)$ の高階微分で表される。

$$\begin{aligned} \phi_{(m=2)} = & \cos(2\theta) \left\{ \boxed{r^2 a_{22}(z)} - \boxed{r^4 \frac{1}{12} a_{22}''(z)} + \boxed{r^6 \frac{1}{384} a_{22}^{(4)}(z)} + \dots \right\} \\ & + \sin(2\theta) \left\{ \boxed{r^2 b_{22}(z)} - \boxed{r^4 \frac{1}{12} b_{22}''(z)} + \boxed{r^6 \frac{1}{384} b_{22}^{(4)}(z)} + \dots \right\} \end{aligned} \quad (3-20)$$

2 回非点
スター
(5 次 2 回対称収差)

m=3 (3 回非点、三葉, etc..) :

$$\text{式(3-10)より、} \quad a_{30}(z) = 0 \quad (3-21)$$

$$\text{式(3-9)より、} \quad a_{31}(z) = 0 \quad (3-22)$$

$$\text{式(3-8)より、} k \geq 2: \quad 9a_{3k}(z) - k^2 a_{3k}(z) = a_{3k-2}(z) \quad (3-23)$$

(3-22)と、k=2 の場合の(3-23)より、 $a_{33}(z)$ は任意にとれる。

(3-21)と、(3-23)より k の偶数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。

$a_{33}(z)$ が任意にとれることと(3-23)より、k の奇数時のフーリエ係数は順次 $a_{33}(z)$ の高階微分で表される。

$$\begin{aligned} \phi_{(m=3)} = & \cos(3\theta) \left\{ \boxed{r^3 a_{33}(z)} - \boxed{r^5 \frac{1}{16} a_{33}''(z)} + \boxed{r^7 \frac{1}{640} a_{33}^{(4)}(z)} + \dots \right\} \\ & + \sin(3\theta) \left\{ \boxed{r^3 b_{33}(z)} - \boxed{r^5 \frac{1}{16} b_{33}''(z)} + \boxed{r^7 \frac{1}{640} b_{33}^{(4)}(z)} + \dots \right\} \end{aligned} \quad (3-24)$$

3 回非点(A₂)
三葉(D₄)
(6 次 3 回対称収差)

m=4 (4 回非点 etc.) :

$$\text{式(3-10)より、} \quad a_{40}(z) = 0 \quad (3-25)$$

$$\text{式(3-9)より、} \quad a_{41}(z) = 0 \quad (3-26)$$

$$\text{式(3-8)より、} k \geq 2: 16a_{4k}(z) - k^2 a_{4k}(z) = a_{4k-2}''(z) \quad (3-27)$$

(3-25)と、k=2 の場合の(3-27)より、 $a_{42}(z)=0$

(3-26)と、k=3 の場合の(3-27)より、 $a_{43}(z)=0$

k=4 の場合の(3-27)より、 $a_{44}(z)$ は任意にとれる。

(3-26)と、(3-27)より k の奇数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。

$a_{44}(z)$ が任意にとれることと(3-27)より、k の偶数時のフーリエ係数は順次 $a_{22}(z)$ の高階微分で表される。

$$\begin{aligned} \phi_{(m=4)} = & \cos(4\theta) \left\{ \boxed{r^4 a_{44}(z)} - r^6 \frac{1}{20} a_{44}''(z) + r^8 \frac{1}{960} a_{44}''''(z) + \dots \right\} \\ & + \sin(4\theta) \left\{ \boxed{r^4 b_{44}(z)} - r^6 \frac{1}{20} b_{44}''(z) + r^8 \frac{1}{960} b_{44}''''(z) + \dots \right\} \end{aligned} \quad (3-28)$$

m=5 (5 回非点,etc.) :

$$\text{式(3-10)より、} \quad a_{50}(z) = 0 \quad (3-29)$$

$$\text{式(3-9)より、} \quad a_{51}(z) = 0 \quad (3-30)$$

$$\text{式(3-8)より、} k \geq 2: 25a_{5k}(z) - k^2 a_{5k}(z) = a_{5k-2}''(z) \quad (3-31)$$

(3-30)と(3-31)より、 $a_{53}(z)=0$ 、 $a_{53}(z)=0$ となる。

$a_{53}(z)=0$ と k=5 の(3-31)場合のより、 $a_{55}(z)$ は任意にとれる。

(3-29)と(3-31)より、k の偶数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。

$a_{55}(z)$ が任意にとれることと(3-31)より、k の奇数時のフーリエ係数は順次 $a_{33}(z)$ の高階微分で表される。

$$\begin{aligned} \phi_{(m=3)} = & \cos(5\theta) \left\{ \boxed{r^5 a_{55}(z)} - r^7 \frac{1}{24} a_{55}''(z) + r^9 \frac{1}{1344} a_{55}''''(z) + \dots \right\} \\ & + \sin(5\theta) \left\{ \boxed{r^5 b_{55}(z)} - r^7 \frac{1}{24} b_{55}''(z) + r^9 \frac{1}{1344} b_{55}''''(z) + \dots \right\} \end{aligned} \quad (3-32)$$

m=6 (6 回非点 etc.) :

$$\text{式(3-10)より、} \quad a_{60}(z) = 0 \quad (3-33)$$

$$\text{式(3-9)より、} \quad a_{61}(z) = 0 \quad (3-34)$$

$$\text{式(3-8)より、} k \geq 6: \quad 36a_{6k}(z) - k^2 a_{6k}(z) = a_{6k-2}''(z) \quad (3-35)$$

(3-33)と(3-35)より、 $a_{62}(z)=0$ 、ひきつづき、 $a_{64}(z)=0$ となる。

$a_{64}(z)=0$ と、 $k=6$ の場合の(3-35)より、 $a_{66}(z)$ は任意にとれる。

(3-34)と(3-35)より、 k の奇数次のフーリエ係数はすべて 0 となる。

$a_{66}(z)$ が任意にとれることと(3-35)より、 k の偶数時のフーリエ係数は順次 $a_{22}(z)$ の高階微分で表される。

$$\begin{aligned} \phi_{m=6} = & \cos(6\theta) \left\{ \boxed{r^6 a_{66}(z)} - r^8 \frac{1}{28} a_{66}''(z) + r^{10} \frac{1}{1792} a_{66}''''(z) + \dots \right\} \\ & + \sin(6\theta) \left\{ \boxed{r^6 b_{66}(z)} - r^8 \frac{1}{28} b_{66}''(z) + r^{10} \frac{1}{1792} b_{66}''''(z) + \dots \right\} \end{aligned} \quad (3-36)$$

以上で、回転対称、および、2 回～6 回対称のポテンシャルが生成する収差が明らかになった。収差の次数は、幾何収差の次数で示した。

3.4 プライマリー効果とフリッジ効果

前節では 6 回対称までの収差について、その発生起源を議論した。これらの検討結果には、収差補正という技術的見地から興味を引く事柄が散見される。すなわち、収差を多極子のプライマリー効果によるものと、フリッジ効果によるものの 2 種類に大別できるということである。たとえば式 (3-28) によると、4 回非点は、4 回対称ポテンシャル (8 極場を生成) の z 方向成分に依存しない量である。つまり、極限に薄い 8 極場における 8 極場の本質的效果、いわゆるプライマリー効果が、4 回非点である。4 回非点の補正は、位相角が回転可能な 8 極場を用意すれば十分である。一方、式 (3-20) によると、スターは 2 回対称ポテンシャル (4 極場を生成) の z 方向の 2 階微分を起源としていることがわかる。したがって、 z 方向に一様かつ十分薄い 4 極場ではスターは発生しない。スターの補正には、 z 方向にフリッジ場をもつ 4 極場を用意する必要がある。あるいは、4 極場内での電子の軌道に傾きを導入 (つまり軸をずらす) ことで、電子にフリッジ場を感じさせる等の手法も有効と考えられる。式 (3-16) によれば、コマ収差は偏向場のフリッジ項として発生する。coma に

関しては、技術的な知識として、レンズの軸がずれば coma が発生することが知られている[6]。これは、回転対称場の軸がずれることにより、電子が偏向場を感じ、それが z 方向にフリンジ場を持つと解釈できる。多極子成分のフリンジ項収差は、特定の光学素子に関して、収差フリーな軸が存在すると考えられる（コマフリー軸[7] etc.）。表 3-1 に、各種収差とポテンシャルのフーリエ係数の対応、および収差の起源をまとめた。（フーリエ係数は $a_{mk}(z)$ のみ記載した。 $b_{mk}(z)$ は同形につき省略）

表 3-1 各種収差とポテンシャルのフーリエ係数の対応、および収差の起源

次数(k-1)	対称性(m)	フーリエ係数	収差名	起源
1	0	$-r^2 \frac{1}{4} a_{00}''(z)$	レンズ作用	回転対称場のフリンジ項
	2	$r^2 a_{22}(z)$	非点(A ₁)	4 極場プライマリー
2	1	$-r^3 \frac{1}{8} a_{11}''(z)$	コマ(B ₂)	偏向場のフリンジ項
	3	$r^3 a_{33}(z)$	3 回非点(A ₂)	6 極場プライマリー
3	0	$r^4 \frac{1}{64} a_{00}''''(z)$	球面収差(Cs)	回転対称場のフリンジ項
	2	$-r^4 \frac{1}{12} a_{22}''(z)$	スター(S)	4 極場のフリンジ項
	4	$r^4 a_{44}(z)$	4 回非点(A ₃)	8 極場プライマリー
4	1	$r^5 \frac{1}{192} a_{11}''''(z)$	4 次のコマ (B ₄)	偏向場のフリンジ項
	3	$-r^5 \frac{1}{16} a_{33}''(z)$	三葉(D ₄)	6 極場のフリンジ項
	5	$r^5 a_{55}(z)$	5 回非点	10 極場プライマリー
5	0	$-r^6 \frac{1}{2304} a_{00}''''''(z)$	5 次の球面収差 (C ₅)	回転対称場のフリンジ項
	2	$r^6 \frac{1}{384} a_{22}''''(z)$	5 次 2 回対称収差	4 極場のフリンジ項
	4	$-r^6 \frac{1}{20} a_{44}''(z)$	5 次 4 回対称収差	8 極場のフリンジ項
	6	$r^6 a_{66}(z)$	6 回非点	12 極場プライマリー

電位ポテンシャルの場合は波長の変化により、磁位の場合は本来のベクトルポテンシャルにより、電子の波面の位相変化を与える。したがってポテンシャルは、電子波のポテンシャル通過距離と変換係数を乗じて、波面収差 χ に換算される。電位の場合の変換係数は式(2-9) に述べた σ である。これまでに述べたポテンシャルに関する次数と対称性の規則は、波面収差 χ の次数と対称性に関する規則として、以下のように表される。

$$\chi(r, \theta) = \frac{1}{n} |A| r^n (\cos m(\theta - \theta_A)) \quad (3-37)$$

ここで、 A は収差係数ベクトル、 θ_A はその方向を表す。 G は次数が 1 下がり、対称性は保たれる。

$$\begin{aligned} G &= \nabla \chi(r, \theta) \\ &= (|A| r^{n-1} \cos m(\theta - \theta_A), -\frac{n}{m} |A| r^{n-1} \sin m(\theta - \theta_A)) \end{aligned} \quad (3-38)$$

式(3-37)の右辺の $(1/n)$ は G の記述の際、微分において消えるべく導入した。研究者によっては係数 $(1/n)$ が必ずしも導入されない定義を用いる場合もある[8]。幾何収差 G は 2 次元ベクトル量であるが、デフォーカスや球面収差のような回転対称な収差を議論する場合は、 G は動径成分 r のみの関数となるため、これらを 1 次元量として扱う場合もある。収差のもう一つの表現 χ は、すでに述べたように波面のズレ量を表すスカラー量である。 χ および G は、それぞれ、ポテンシャルおよび場に対応していると考えられる。ポテンシャルは波の位相を攪乱し、場は力を介して粒子の方向を変える。直面する問題の質に依存して、ポテンシャル（波、 χ ）を考えるか、場（粒子、 G ）を考えるかが決まる。

3.5 複素変数の導入と収差係数の定義

収差に関する各種の計算を行う場合、複素変数 ω を導入すると、計算が楽になり、また見通しもよくなる。複素変数を用いると、振幅、対称性および次数が一目瞭然とし、収差の本質がそのまま表現される。収差の軸のずれの効果、収差同士の積、等々において利点は計り知れない。ここでは複素変数を、収差関数の変数である空間周波数ベクトル k または角度ベクトル α に対して導入する。

$$\alpha = k \lambda \quad (3-39)$$

$$\alpha = (\alpha_x, \alpha_y) \quad (3-40)$$

$$\omega_x = \alpha_x, \quad \omega_y = \alpha_y \quad (3-41)$$

$$\omega = \omega_x + i\omega_y = r \exp(i\theta) \quad (3-42)$$

$$\omega^* = \omega_x - i\omega_y = r \exp(-i\theta) \quad (3-43)$$

複素変数の導入にあわせて、収差に関するこれまで述べた内容をまとめ、本節以降に用いる収差係数等の定義を行う。電子顕微鏡では試料は対物レンズの焦点面におかれるので、 α は物点から対物レンズに向かう仰角と考えてよい。式(2-13)、式(3-1)にて示したように、開口面の位相のずれ γ および幾何収差 G は波面収差により以下のように表される。

$$\gamma(\omega) = \frac{2\pi}{\lambda} \chi(\omega) \quad (3-44)$$

$$G(\omega) \equiv \nabla \chi(\omega) \quad (3-45)$$

式(3-45)は、複素関数の微分可能条件であるコーシーリーマンの関係 [9] が χ としては成り立たないが、実関数において、式(3-1)により得られる $G = \nabla \chi(r, \theta)$ の微分結果を複素関数に置き換えることで形式上得られることを意図した。これは、以下の事情を背景とする。すなわち z に依存しない ϕ のプライマリー項は 2 次元のラプラス方程式を満たすため $\chi(\omega)$ は正則となり ω 微分可能となるが、 ϕ のフリッジ項はゼロでない z 微分項に依存するため、2 次元のラプラス方程式を満たさず、この平面内では ω 微分が定義できない。しかしながら、3 次元では当然ラプラス方程式を満たしているので、ポテンシャルとしての微分は可能である。このため式(3-45)の形式的な微分関係を後に具体的に決めても問題ないと考えられる。

さて、波面収差は 3 次元ポテンシャルがラプラス方程式を満たすことより、取りうる対称性と次数に規則性がある。この規則性は表 3-1 に表れており、複素変数 ω 、収差係数 A を用いて表すと以下のように一般化できる。ここで、 $\text{Re}(X)$ は複素数 X の実部をとることを表す。

$$\chi(\omega) = \text{Re}\left(\frac{1}{2n+m} A_{n+m, m} \omega^n \omega^{*n+m}\right) \quad (3-46)$$

$m=0,1,2,3..$: 対称性

$n=0,1,2,3...$: z 依存性 (z に関する $2n$ 回微分)

$2n+m-1$ が収差の幾何光学的次数となる。

$n=0$ はプライマリー収差、 $n \neq 0$ はフリッジ収差

表 3-2 に、4 次までの全ての軸上収差と、6 次の収差で、収差補正 TEM に現れるもの[10]（5 次球面収差、6 回非点）を挙げた。表 3-2 は、収差係数の定義をまとめたものである。収差係数のベクトル表記は研究者により異なる表記が用いられる場合があるが[11]、[12]、[13]、本研究では、表 3-2 の表記を持って定義した。また、収差の次数は光学における標準に準じて、幾何収差の次数とする。複素表記からは、収差の大きさ($p_1, o_2, a_2, \text{etc.}$)および収差の方向 ($\theta_{p1}, \theta_{a2}, \theta_{p3}, \text{etc.}$) がわかる。

表 3-2 収差係数の定義

名称	表記	z 依存	対称性	次数	複素表記
偏向	P_1	0	1	0	$P_1=p_1\exp(i\theta_{p1})$
レンズ作用	df	1	0	1	$df=o_2$
2 回非点	A_2	0	2	1	$A_2=(a_2\exp(2i\theta_{a2}))$
coma	P_3	1	1	2	$P_3=p_3\exp(i\theta_{p3})$
3 回非点	A_3	0	3	2	$A_3=a_3\exp(3i\theta_{a3})$
球面収差	C_s	2	0	3	$C_s=o_4$
Star	S_4	1	2	3	$S_4=q_4\exp(2i\theta_{q4})$
4 回非点	A_4	0	4	3	$A_4=a_4\exp(4i\theta_{a4})$
4 次 coma	P_5	2	1	4	$P_5=p_5\exp(i\theta_{p5})$
three-lobe	R_5	1	3	4	$R_5=r_5\exp(3i\theta_{r5})$
5 回非点	A_5	0	5	4	$A_5=a_5\exp(5i\theta_{a5})$
5 次球面収差	C_5	3	0	5	$C_5=o_6$
6 回非点	A_6	0	6	5	$A_6=a_6\exp(6i\theta_{a6})$

表 3-3 に、収差係数による波面収差と幾何収差の具体的表現形式をまとめた。 ω は開口面での複素変数、 $\text{Re}(X)$ は X の実部をとることを表す。波面収差 $\chi(\omega)$ と幾何収差 $G(\omega)$ の関係は、式(3-45)の形式的表現を具体的に表すものとして、以下のようになる。

$$\chi(\omega) = \text{Re}(X) \quad (3-47)$$

$$G(\omega) = \left(\frac{\partial X}{\partial \omega} \right)^* + \left(\frac{\partial X}{\partial \omega^*} \right) \quad (3-48)$$

表 3-3 収差係数による波面収差と幾何収差の表現

名称	次数	対称性	波面収差 χ	幾何収差 G
偏向	0	1	$\text{Re}(P_1 \omega^*)$	P_1
レンズ作用	1	0	$\text{Re}((1/2) df \omega^* \omega)$	$df \omega$
2 回非点	1	2	$\text{Re}((1/2) A_2 \omega^{*2})$	$A_2 \omega^*$
Coma	2	1	$\text{Re}((1/3) P_3 \omega^* 2\omega)$	$(1/3) P_3^* \omega^2 + (2/3) P_3 \omega^* \omega$
3 回非点	2	3	$\text{Re}((1/3) A_3 \omega^{*3})$	$A_3 \omega^{*2}$
球面収差	3	0	$\text{Re}((1/4) C_5 \omega^{*2} \omega^2)$	$C_5 \omega^* \omega^2$
Star	3	2	$\text{Re}((1/4) S_4 \omega^{*3} \omega)$	$(1/4) S_4^* \omega^3 + (3/4) S_4 \omega^{*2} \omega$
4 回非点	3	4	$\text{Re}((1/4) A_4 \omega^{*4})$	$A_4 \omega^{*3}$
4 次 coma	4	1	$\text{Re}((1/5) P_5 \omega^{*3} \omega^2)$	$(2/5) P_5^* \omega^* \omega^3 + (3/5) P_5 \omega^{*2} \omega^2$
three-lobe	4	3	$\text{Re}((1/5) R_5 \omega^{*4} \omega)$	$(1/5) R_5^* \omega^4 + (4/5) R_5 \omega^{*3} \omega$
5 回非点	4	5	$\text{Re}((1/5) A_5 \omega^{*5})$	$A_5 \omega^{*4}$
5 次球面収差	5	0	$\text{Re}((1/6) C_5 \omega^{*3} \omega^3)$	$C_5 \omega^{*2} \omega^3$
6 回非点	5	6	$\text{Re}((1/6) A_6 \omega^{*6})$	$A_6 \omega^{*5}$

ここまで、ポテンシャル（またはその微分で与えられる場）により波面収差（またはその微分で与えられる幾何収差）が発生する様子を述べてきた。式(3-13)の $m=0$ の場合（回転対称成分）については、 $m \neq 0$ の場合と比べて軸上ポテンシャル $a_{00}(z)$ がゼロでなく、点電荷等の存在しない条件範囲で任意に許される。 $a_{00}(z)$ は磁場中の電子の運動を考える場合に重要となる。回転対称磁場が電子に対してレンズ作用をもつのは、 $a_{00}(z)$ と電子の速度の θ 成分とのローレンツ力による。また、回転対称磁場中の電子に対して、軸方向 (r) に働くローレンツ力は必ず軸に向かう成分となる[14]。これは運動方程式を解くと、 $a_{00}(z)$ と電子の速度の θ 成分との相互作用が必ず軸に向かう成分の組み合わせしかとりえないことによる。電場の場合は、 $m=0$ おいて電子に軸から離れる方向の力も許されるが、電界レンズの全領域的にみると電子は、必ず軸に向かう方向に力を受けることになる。電界レンズでは、電子は $a_{00}(z)$ による r 方向の電場から受ける力により結像される。

表 3-1 に挙げたようなポテンシャルが開口面に存在する場合、これらにより電子の波の位相変調、および軌道変移が発生し、その影響は、表 3-3 に挙げた開口面での波面収差、結像面での幾何収差として現れる。電子の軌道では、収差による影響は、電子の進行に従って蓄積されていく。対物レンズのように磁場中に物面が存在し、かつ、素子の強度が強い場合は、レンズ界中で運動方程式を解きながら各軌道点での収差を積分することにより、最終的な収差係数を得ることができる。レンズ界が厚い場合、逐次変化する軌道で収差係数を求める必要があり、一般的には、軌道を決定せずに収差係数を解析的に得ることは不可能である。このため、図 2-8 のように、軸上磁場を有限要素法で求めて軸上軌道決定し、これを用いた数値積分を行うなどのシミュレーション技術を用いる[15]。数値積分で得られる収差を、レンズ開口面での収差に換算して収差係数が得られる。対物レンズ以外の光学素子の場合、通常は素子によるポテンシャルの z 方向の分布幅が小さく、ポテンシャルの強度も弱い場合がほとんどである。このような場合、電子の素子の作用空間の通過において軌道の位置座標は変化せず、軌道の傾きのみが変化すると考えて差し支えない。電子顕微鏡に配置される偏向素子、非点補正素子等は、その作用面において電子軌道の位置を変えずに軌道の傾きを変え则认为て設計される。ところで、電子顕微鏡の収差補正装置は、対物レンズの球面収差を補正するものであるため、素子の作用は軌道に変化を与える強度となる。このため、収差補正効果を正しく見積もるには、対物レンズと同様に逐次変化する軌道に関する収差の積分が必要となる。

3.6 コンビネーションアベレーション

これまで述べた収差の起源は、収差の基本単位の生起の説明とでもいうべきものである。異なる複数の収差が、電子の軌道に沿って存在する場合、その組み合わせの効果を、収差の基本単位をもとに考えることができる。任意の幾何収差 G_1 、 G_2 の 2 つが、それぞれの作用面が伝播距離 L だけ離れて存在する場合を図 3-6 に示す。これまでに述べたポテンシャルの微分による生起以外に、この伝播距離 L を要因として、異なる仕組みで収差が発生する様子を、図 3-6 をもとに以下に述べる。この伝播距離 L により発生する収差は、Beck[16]により初めて取り扱われた。Crewe[17]らはこれをコンビネーションアベレーションと呼んだ。彼らの取り扱ったコンビネーションアベレーションは表 3-2、表 3-3 での 3 回非点に関するものであったが、ここではコンビネーションアベレーションを一般の収差に拡張する。コンビネーションアベレーションを一般的に表現することで、収差補正に必要な光学素子の設計に大いに役立つことになる。また、色収差補正におけるコンビネーションアベレーションの利用の可能性が予見でき、本研究の後半に述べる凹レンズによる色収差補正へとつながってゆく。

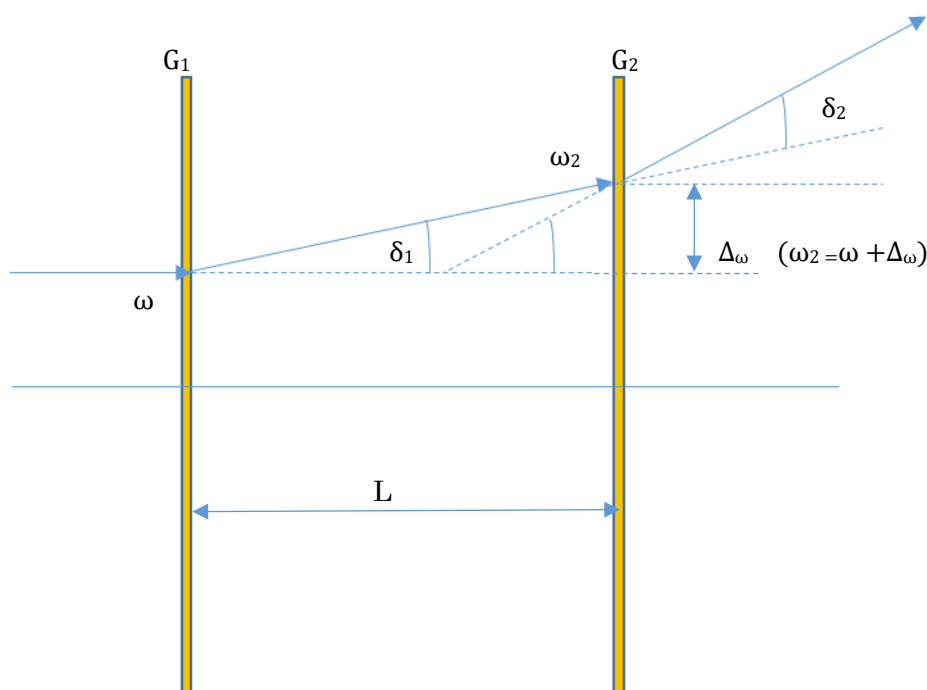


図 3-6 幾何収差 G_1 および G_2 によるコンビネーションアベレーション

図 3-6 において、入力変数としての電子の軌道は複素変数 ω として与えられている。本来 ω は角度量として扱われるが、ここでは便宜上対物レンズの焦点距離 f を $f=1$ として開口面内での長さを表す量として取り扱う。入力に対する応答として G_1 と G_2 により、軌道はそれぞれ δ_1 および δ_2 の角度で偏向を受ける。図 3-1、図 3-2 に示したように $f\delta=G$ の関係があるが、ここでは $f=1$ としている。 δ_1 および δ_2 はそれぞれ、式(3-49)および式(3-50)で表される。

$$\delta_1 = -G_1(\omega) \quad (3-49)$$

$$\delta_2 = -G_2(\omega) \quad (3-50)$$

マイナス符号は、幾何収差の定義による（軸に引き付けられる力が正符号となる）。

任意の G_1 および G_2 は、式(3-46)、式(3-47)、式(3-48) を用いて以下のように表すことができる。

$$G_1(\omega) = \frac{1}{2n_1+m_1} (A_1^* n_1 \omega^{*n_1-1} \omega^{n_1+m_1} + A_1 (n_1 + m_1) \omega^{*n_1+m_1-1} \omega^{n_1}) \quad (3-51)$$

$$G_2(\omega_2) = \frac{1}{2n_2+m_2} (A_2^* n_2 \omega_2^{*n_2-1} \omega_2^{n_2+m_2} + A_2 (n_2 + m_2) \omega_2^{*n_2+m_2-1} \omega_2^{n_2}) \quad (3-52)$$

$$\begin{array}{ll} m_1 : G_1 \text{ の対称性} & , \quad m_2 : G_2 \text{ の対称性} \\ n_1 : G_1 \text{ の } Z \text{ 依存性} & , \quad n_2 : G_2 \text{ の } Z \text{ 依存性} \\ 2n_1+m_1-1 : G_1 \text{ の次数} & , \quad 2n_2+m_2-1 : G_2 \text{ の次数} \end{array}$$

G_2 に対する入力 ω_2 は、

$$\begin{aligned} \omega_2 &= \omega + \Delta\omega \\ &= \omega + L\delta_1 \\ &= \omega - L G_1(\omega) \end{aligned} \quad (3-53)$$

となるので、

$$\begin{aligned} G_2(\omega_2) &= G_2(\omega - L G_1(\omega)) \\ &= \frac{1}{2n_2+m_2} \{ A_2^* n_2 (\omega - L G_1(\omega))^{*n_2-1} (\omega - L G_1(\omega))^{n_2+m_2} \\ &\quad + A_2 (n_2 + m_2) (\omega - L G_1(\omega))^{*n_2+m_2-1} (\omega - L G_1(\omega))^{n_2} \} \end{aligned} \quad (3-54)$$

ここで、 $(\omega + L G_1(\omega))^{*n_2-1}$ などを展開すると ω のもとの冪より高次のものが2項係数を伴って現れる。これは、本来の G_2 の次数よりも高次の次数となり、新たに次数の高い収差が発生することを意味する。この次数の上がった収差がコンビネーションアベレーションである。 ω は小角散乱を表す変数であるため、収差は冪が上がると急激に効果が薄れる。もっとも効果の強い項は2項係数が最初に現れる項であり、通常のコムビネーションアベレーションはこの最初の項のことである。最初の項を G_{2c} とすると以下ようになる。

$$\begin{aligned} G_2(\omega) = & G_2(\omega) \quad (L=0 \text{ における通常の収差}) \\ & - G_{2c}(\omega) \quad (\text{コンビネーションアベレーション、2項係数の最初の項}) \\ & - \dots(2 \text{ 項係数の高次項}) \end{aligned} \quad (3-55)$$

$$\begin{aligned} G_{2c}(\omega) = & \frac{A_2^* n_2}{2n_2+m_2} \{ (n_2-1)\omega^{n_2+m_2}\omega^{*n_2-2}LG_1^*(\omega) + (n_2+m_2)\omega^{*n_2-1}\omega^{n_2+m_2-1}LG_1(\omega) \} \\ & + \frac{A_2(n_2+m_2)}{2n_2+m_2} \{ (n_2+m_2-1)\omega^{n_2}\omega^{*n_2+m_2-2}LG_1^*(\omega) + n_2\omega^{*n_2+m_2-1}\omega^{n_2-1}LG_1(\omega) \} \end{aligned} \quad (3-56)$$

式 3-50 を式 3-55 の G_1 に代入して整理すると、以下のようにになる。

$$\begin{aligned} G_{2c}(\omega) = & \left(\frac{1}{2n_1+m_1} \right) \left(\frac{L}{2n_2+m_2} \right) \{ \\ & A_1 A_2^* n_2 (n_1(n_2-1) + (n_1+m_1)(n_2+m_2)) \omega^{*n_1+m_1+n_2-2} \omega^{n_1+n_2+m_2-1} \quad (A) \\ & + A_1^* A_2^* n_2 (n_1(n_2+m_2) + (n_2-1)(n_1+m_1)) \omega^{*n_1+n_2-2} \omega^{n_1+m_1+n_2+m_2-1} \quad (B) \\ & + A_1 A_2 (n_2+m_2) (n_1(n_2+m_2-1) + n_2(n_1+m_1)) \omega^{*n_1+m_1+n_2+m_2-2} \omega^{n_1+n_2-1} \quad (C) \\ & + A_1^* A_2 (n_2+m_2) (n_1 n_2 + (n_1+m_1)(n_2+m_2-1)) \omega^{*n_1+n_2+m_2-2} \omega^{n_1+m_1+n_2-1} \quad (D) \\ & \} \end{aligned} \quad (3-57)$$

式 3-57 から、コンビネーションアベレーションの以下の特徴が読み取れる。

次数：

G_{2c} の次数は、(A),(B),(C),(D) すべて $2n_1+m_1+2n_2+m_2-3$ となっている。すなわち G_1 と G_2 の次数を足して1引いたものが G_{2c} の次数となる。

対称性：

$\omega^x \omega^y$ を変数にとる幾何収差の対称性は $|Y-X-1|$ となる。絶対値の中が正の場合は収差の自転が公転(変数の回転)と同じとなり、負の場合はこの関係が逆となる。表 3-3 にも対称性が $|Y-X-1|$ となる関係が現れている。式 3-56 にこの関係を当てはめると、 G_{2c} の対称性は、各項ごとに以下のようにになる。

$$(A) \text{ 項 : } |m_2 - m_1| \quad (3.58a)$$

$$(B) \text{ 項 : } (m_2 + m_1) \quad (3.58b)$$

$$(C) \text{ 項 : } (m_2 + m_1) \quad (3.58c)$$

$$(D) \text{ 項 : } |m_1 - m_2| \quad (3.58d)$$

収差の符号：

$LA_1A_2^*$ 、 $LA_1^*A_2^*$ 、 LA_1A_2 、 $LA_1^*A_2$ の符号が、それぞれ、(A),(B),(C),(D) の符号となる。 A_1 および A_2 は表 3-2 から任意に選べる。回転対称収差 (f, C_8, C_5) 以外の収差は、振幅と位相を自由に設定できるので、 G_{2c} の符号は任意に設定できる。また、もし伝播距離 L を負の値に設定できれば、 L も符号制御のパラメータとできる。後述するように、 L が負となる光学系は作製可能である。

以上の議論より、収差補正素子の作製にあたって重要な結論が得られる。

色収差補正装置として

(3.58a) または (3.58b) より $m_2 = m_1$ 、 $2n_1 + m_1 + 2n_2 + m_2 - 3 = 1$ となる素子を組み合わせると負の符号を持った回転対称 1 次の光学素子が作製できる。すなわち凹レンズ項を表すコンビネーションアベレーションが存在する [18]。

球面収差補正装置として

$m_2 = m_1$ 、 $2n_1 + m_1 + 2n_2 + m_2 - 3 = 3$ となる素子を組み合わせると、負の符号を持った回転対称 3 次の光学素子もまた作製できる。すなわち負の球面収差を表すコンビネーションアベレーションが存在する。

収差補正装置を作製するには、

収差補正項のみを抽出し、余計な収差項の影響をなくす光学系を作製する必要がある。

また、これらの光学系を設計するにあたって、留意すべき重要なポイントも示唆される。すなわち、収差導入面と収差補正面が光学的に一致しない場合、式 3-56 の L がゼロにならず、何らかの副作用としての収差の発生が避けられないということである。もっとも、この点を積極的に利用して球面収差、色収差を補正するのが本研究での収差補正技術の核でもある。

3.7 まとめ

完全なレンズとは 1 点を像面の 1 点に写像するものである。実際には完全レンズは存在しえず、レンズの収差により像面にて点は広がった分布となる。収差という現象を評価するにおいて、幾何収差としてのとらえ方と波面収差としてのとらえ方がある。本章では、まず波面収差の考え方をもとに、基本的な収差の生成要因は多極子場のポテンシャルによると考えて、収差の対称性と次数に関する分類を行った。すなわち、収差の成因がポテンシャルによる波面形成によるとみて、任意のポテンシャルのフーリエ級数展開により収差を導出した。この作業により、一般に知られている収差が自然に導かれた。また、 z 方向への場の微分係数と収差の関係を調べることで、プライマリー収差とフリンジ収差の意味づけが明らかになった。多極子場の次数と対称性、および z 方向への微分により、現在取り扱われている収差とポテンシャルを 1:1 に対応がつけられる。波面収差とは、波がポテンシャル雰囲気を通過する際、波長の変化を受けて進行することにより、波面の攪乱を受けた結果を表したものである。幾何収差は波面収差の微分で与えられるので、多極子場を構成可能なポテンシャルが基本収差に対応すると考えられると結論できる。さらに、これらの基本収差類をもとに、任意の 2 つの収差が伝播距離を持つ状況を計算することで、コンビネーションアベレーションの考え方を一般化できた。コンビネーションアベレーションは、多極子場のフーリエ展開では、その多極子場においては現れない収差であり、これに相当する多極子場が存在するとは限らない。コンビネーションアベレーションの考え方により、6 極子が球面収差を生成することが理解され、さらに、凹レンズを生成するコンビネーション効果が存在することも予測された。これにより、色収差補正装置作製の着想が得られた。

参考文献

- [1] M. Born and E. Wolf, Principles of Optics, Cambridge University Press (2002), Cambridge
- [2] 高橋友刀、レンズ設計、東海大学出版 (1994).
- [3] P. W. Hawkes and E. Kasper, Principles of Electron Optics: Basic Geometrical Optics, Academic Press (1996), San Diego.
- [4] P. W. Hawkes and E. Kasper, Principles of Electron Optics: Wave Optics, Academic Press (1996), San Diego.
- [5] P. Hammond and J. K. Sykulski, Engineering Electromagnetism Physical Processes and Computation, Oxford University Press (1994), Oxford
- [6] F. Zemlin, A practical procedure for alignment of a high resolution electron microscope, Ultramicroscopy 4, 241-245 (1979).
- [7] F. Zemlin, K. Weiss, P. Schiske, W. Kunath and K.-H. Herrmann, Coma-free alignment of high resolution electron microscopes with the aid of optical diffractograms, Ultramicroscopy 3, 49-60 (1978).
- [8] S. Uhlemann and M. Haider, Residual wave aberrations in the first spherical aberration corrected transmission electron microscope, Ultramicroscopy 72, 109-119 (1998).
- [9] 村上雅人、なるほど複素関数、海鳴社 (2003)
- [10] H. Sawada, F. Hosokawa et al., Higher-order aberration corrector for an image-forming system in a transmission electron microscope, Ultramicroscopy 110, 958-961 (2010).
- [11] M. Haider, H. Muller, S. Uhlemann, J. Zach, U. Loebau and R. Hoeschen, Prerequisites for a Cc/Cs-corrected ultrahigh-resolution TEM, Ultramicroscopy 108, 167-178 (2008).
- [12] O. L. Krivanek, N. Dellby and A.R. Lupini, Towards sub-Å electron beams, Ultramicroscopy 78, 1-11 (1999).
- [13] H. Sawada, F. Hosokawa et al., Correction of higher order geometrical aberration by triple 3-fold astigmatism field, Journal of Electron Microscopy 58, 341-347 (2009).
- [14] O. Scherzer, Über einige Fehler von Elektronenlinsen, Z. Physik 101, 593-693 (1936).
- [15] E. Munro, Calculation of the Optical Properties of Combined Magnetic Lenses and Deflection Systems with Superimposed Fields, Optik 39, 450-466 (1974).
- [16] V. D. Beck, A hexapole spherical aberration corrector. Optik 53, 241-255 (1979).
- [17] A. V. Crewe, and D. Kopf, A sextupole system for the correction of spherical aberration, Optik 55, 1-10 (1980).
- [18] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi and K. Suenaga, Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy, Microscopy 62, 23-41 (2013).

4. 非対称磁場 6 極子による球面収差補正

4.1 序論

球面収差とは、回転対称ポテンシャルに付随する 3 次偏向力から生起する。この球面収差が、一見無関係に思える 2 次の 3 回対称収差を生起する光学素子にて補正されうること、は、コンビネーション効果を表わす式(3-56) により示唆される。2 次 3 回対称収差のコンビネーション効果を式(3-56) に適用すると、右辺のパラメータはそれぞれ、 $m_1=m_2=3$ 、および、 $n_1=n_2=0$ 、となる。これよりただちに、 $G_{2c}(\omega)=2 A_1^* A_2 \omega^* \omega^2$ となり、式(3-55)と表 3-3 より、 $G_{2c}(\omega)$ は負の球面収差の成分を持つことが明確に示される。式(3-38)によれば、2 次 3 回対称の収差の起源は、式(3-24)の 3 次 3 回対称のポテンシャルであり、これは表 3-1 に示したように 6 極場のプライマリー効果である。3 章でのコンビネーション効果に関する議論は、プライマリー効果を持つ素子がある程度の光学距離を離れて配置された場合に関するものであった。本章ではこの考え方を、電子の軌道に解析的に適用する。その結果、連続的な 2 次 3 回対称の軌道において、内部での伝播距離の加算により負の球面収差が現れることが示される。本章の目的は、この負の球面収差を用いて対物レンズの球面収差を補正する際、補正光学系が満たすべき条件を定式化することである。

本章の前半では、6 極場のプライマリー効果により発生する 3 回非点の定量的計算方法の導出、および、光軸方向に厚みのある 6 極場の内部で、自身の収差が連続的に厚みを持つことで発生するコンビネーションアベレーションの、数学的な解析を行う。これにより、厚みのある 6 極場に現れる、球面収差以外の高次収差も明らかになる。

本章の中ほどでは、2 つの厚みのある 6 極場を用いて、3 回非点を相殺しコンビネーションによる負の球面収差を取り出すためには、負の伝播距離が要求されることを示す。また、Haider-Rose による対称 6 極子による収差補正系はこの条件を特殊な形で満たしていることが確認される。球面収差補正装置は、球面収差が補正された後に残存する収差が、その到達分解能を左右するが、対称 6 極子による収差補正系は、等倍率の光学系であるため、残存収差を低減する効果を持たないことが指摘される。

本章の後半では、負の伝播距離を持つ 2 つの 6 極場間において、一般に満たすべき条件が導かれる。これにより、非対称な 2 段 6 極場においても球面収差補正が可能なが示され、さらに非対称光学系により残存収差が圧縮されることが示される。非対称 6 極場による収差補正装置の、励磁強度、長さ、補正力を導くことで、一般的な 2 段 6 極子による、残存収差の低減効果を持った収差補正装置の設計が可能となった。

4.2 磁場 6 極子のプライマリー効果 (3 回非点)

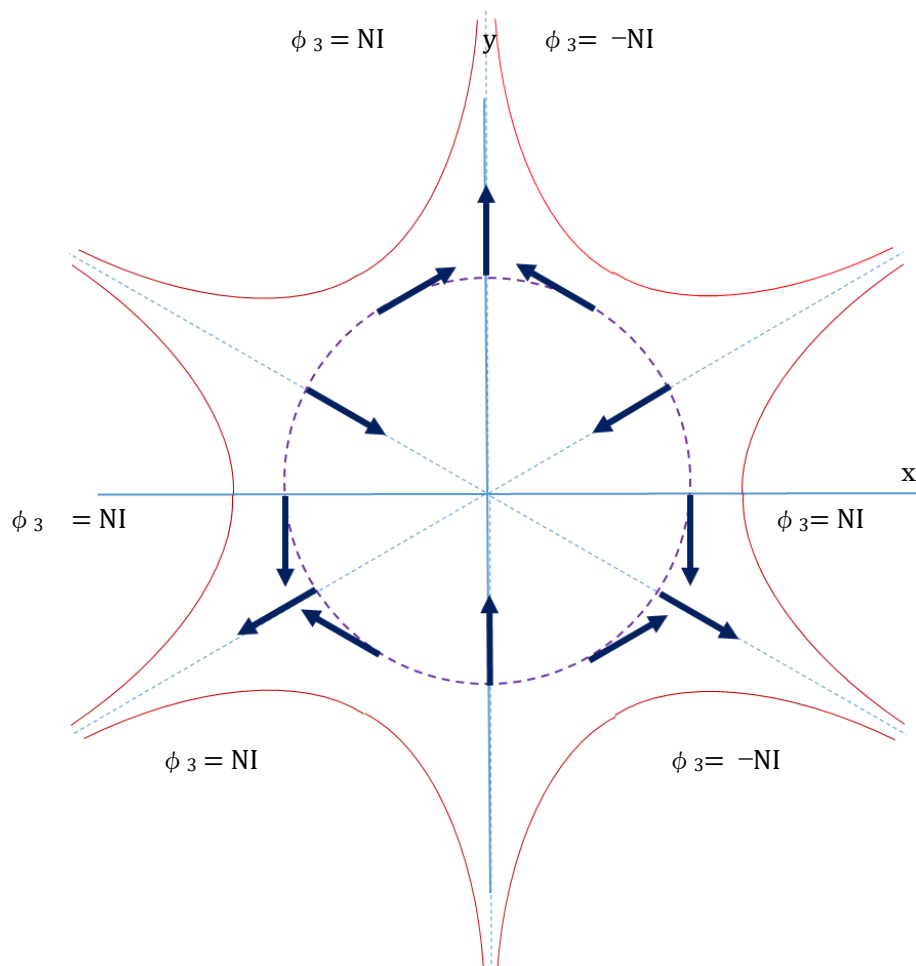


図 4-1 6 極子プライマリー効果 ($\phi_3 = NI$ および $\phi_3 = -NI$ の等ポテンシャル面 ($\theta_{a3}=0$))

6 極子とは 3 回対称のポテンシャル ϕ_3 を構成する磁極または電極の呼称である。3 回対称ポテンシャル ϕ_3 は、式(3-6)の $m=3$ の成分であり、その z の変化に依存しない成分、すなわちプライマリー効果は式(3-24)より、 r^3 に依存するポテンシャル項が起源となる。 a_3 を 6 極子の強度、 θ_{a3} を 6 極子の向き (位相角) とすると、 ϕ_3 は以下のように表される[1]。

$$\phi_3(r, \theta) = \frac{1}{3}a_3 r^3 \cos 3(\theta - \theta_{a3}) \quad (4-1)$$

$$x = r \sin(\theta), \quad y = r \cos(\theta) \quad (4-2)$$

図 4-1 に、磁場 6 極子の向きをゼロ ($\theta_{a3}=0$) とした、 $\phi_3 = NI$ および $\phi_3 = -NI$ の等ポテンシャル面 (赤いライン) を示す。紙面表から裏方向へ電子が進行した場合、入射円上での電子

がローレンツ力で受ける力の方向を、青い矢印で示した。

以下、磁場 6 極子について考察する。磁場におけるポテンシャルである磁位 ϕ_3 は、起磁力 [2] となる電流 I の単位で与えられる。6 極子場を表す磁場ベクトルを H_3 とすると、 H_3 はポテンシャル ϕ_3 の、位置 r による微分で与えられる。

$$\begin{aligned} H_3(r, \theta) &= -\nabla \phi_3(r, \theta) \\ &= -\left(\frac{\partial}{\partial r}, \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}\right) \phi_3(r, \theta) \\ &= (-a_3 r^2 \cos 3(\theta - \theta_{a3}), a_3 r^2 \sin 3(\theta - \theta_{a3})) \end{aligned} \quad (4-3)$$

長さ変数 r の代わりに、複素角度変数 ω ($\omega = r/f$) を用いて ϕ_3 と H_3 を表すと以下のようになる。

$$\begin{aligned} \phi_3 &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{3} A \omega^3 + \left(\frac{1}{3} A \omega^3 \right)^* \right) f^3 \\ &= \operatorname{Re} \left(\frac{1}{3} A \omega^3 \right) f^3 \end{aligned} \quad (4-4)$$

$$H_3 = -A \omega^2 f^2 \quad (4-5)$$

$$A = a_3 \exp(3i\theta_{a3}) \quad (4-6)$$

ここで、長さ次元の変換定数 f を対物レンズの焦点距離とすると、 ω は無次元角度座標となる。また、 A は 6 極子の励起の強さと方向を表すベクトルである。

区間 z において一様な 6 極磁場を、速度 v で進行する電子は、ローレンツ力による円運動にて、 δ_{A3} の偏向角が与えられる。これが 6 極子のプライマリー効果である。

$$\delta_{A3} = \frac{\mu_0}{R} z H_3 \quad (4-7)$$

$$R = \sqrt{2mU(1 + \gamma U)/e} \quad (4-8)$$

R は電子の磁気剛性 (magnetic rigidity [1]) であり、加速電圧 U で決まる。 γ は相対論補正の係数であり、式 (2-5) にてその値を示した。 μ_0 は真空の透磁率、 m は電子の質量である。光学系の適当な位置に焦点距離 f の結像レンズが配置されているとして、レンズの作用面と磁場の作用面が光学的に等価であると想定する (図 3-1 および図 3-2 に相当する)。 δ_{A3} による幾何収差を G_3 とすると、

$$G_3 = f \delta_{A3}$$

$$\begin{aligned}
&= f \frac{\mu_0}{R} z H_3 \\
&= f^3 \frac{\mu_0}{R} z A \omega^2
\end{aligned} \tag{4-9}$$

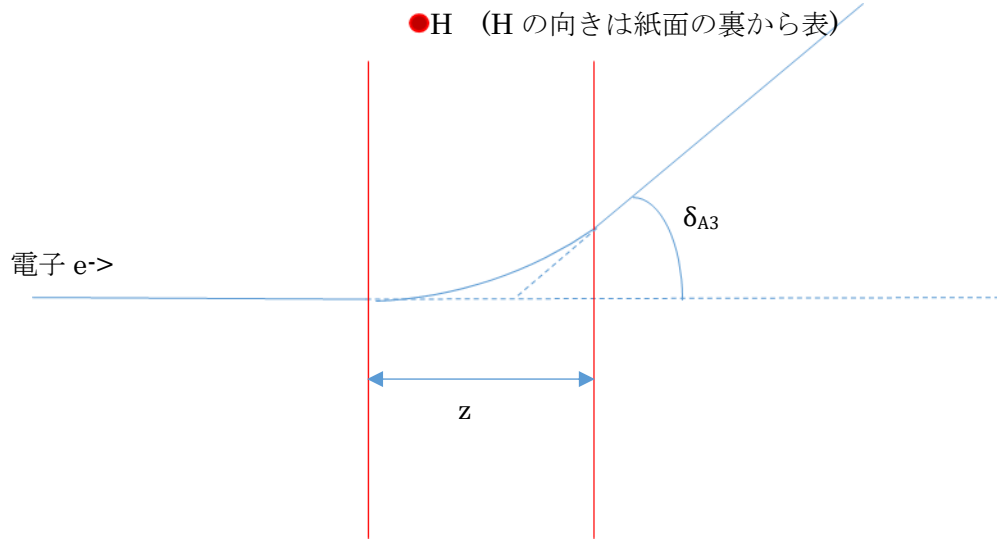


図 4-2 プライマリー効果による電子の偏向

図 4-1 のような等ポテンシャル面を形成する磁極（磁性体）に起磁力 NI を与えて、磁場 H_3 が形成されているとする。 $\phi_3=NI$ が x 軸上の $|f\omega|=b$ において与えられているとすれば、式(4-4)より $|A|$ と NI の関係は以下の式で表される。

$$|A| = a_3 = 3NI \left(\frac{1}{b}\right)^3 \tag{4-10}$$

幾何収差 G_3 と収差係数 A_3 は以下の定義関係がある。

$$G_3 = A_3 \omega^2 \tag{4-11}$$

式(4-9)と式(4-11)より、収差係数の大きさ $|A_3|$ は以下のように決まる。

$$|A_3| = 3 \frac{\mu_0}{R} z NI \left(\frac{f}{b}\right)^3 \tag{4-12}$$

図 4-1 において、電子が紙面の表から裏へ進行するとして、 A_3 の複素平面での表示はロー

レンツ力の作用方向が磁場の位相角に対して $\pi/2$ 遅れることを考慮して以下ようになる。

$$A_3 = 3 \frac{\mu_0}{R} z NI \left(\frac{f}{b}\right)^3 \exp(3i\theta_{a3} - \frac{\pi}{2}) \quad (4-13)$$

式(4-13)は、半径 b 、沿軸長 z 、起磁力 NI の磁場 6 極子のプライマリー効果による収差係数を表している。これは、3 次 3 回対称の波面収差、すなわち、2 次 3 回対称の幾何収差を与える。 A_3 を 3 回非点の収差係数と呼ぶ。

この節では、図 4-2 で示したように、電子は円運動により偏向されることを前提としている。言い換えれば、式 3-4 でのポテンシャルの中で、電子の軌道変化は r が一定とみなせるほど小さいと考えていることになる。軌道が変わることなく、軌道の傾きのみが変化するというモデルである。これは、図 3-6 の G_1 、 G_2 に相当する。先に述べたように、対物レンズ以外の光学素子は殆どこのモデルで設計される。このように設計された 2 つの素子がある程度の距離(L)だけ離して配置された場合、素子の持つ次数と対称性に依存して新たな収差がコンビネーションアベレーションとして発生することをすでに 3-6 節で議論した。次節では、通常の素子と比べて、沿軸方向に十分長くかつ十分な強度を持つ素子においては、素子内部での電子の軌道変化により、コンビネーションアベレーションが現れることについて議論する。検討の素子は 6 極子であり、この場合、式(3-56)の D 項がコンビネーションアベレーションとして現れる。6 極子内部での微分方程式の解の一部として現れるこの項は、対物レンズの球面収差を打ち消す収差であることが次節において示される。

4.3 長い 6 極子場のコンビネーション効果

電子が電磁場を進行する際、場による偏向力が比較的強く、かつ偏向力を受ける領域が十分に長い場合、電子が受ける力の方向や強さは軌道そのものの関数となる。このような場合において軌道を確定しようとするならば、場の中で受ける力を位置の関数として微分方程式を解くのが一般の手法である。対物レンズの磁場の場合は、軸上磁場を何らかの方法で求めた後、微分方程式の数値計算的解法により、軌道および光学定数を決定する。このように得られた結果は数値としての意味しか持たない。本研究においては、3.6 節にてコンビネーションアベレーションを一般化した議論の結論により、ある程度の距離を置いて配置した 2 つの素子から生じる新たな効果をあらかじめ、量的かつ質的に見積もることが可能となった。電子の軌道を機械的に解くのではなく、軌道に内包される各種の収差の性質があらかじめ見通せるならば、このような見通しは光学系の設計において多大な利点となり、本研究の成果の一つとして挙げられる。この節で取り扱う沿軸方向に長い 6 極場では、Crewe [1] によれば、6 極子どうしのコンビネーションアベレーションが長い軌道中に積算されていくと

考えてよい。長い一様でない磁場中で偏向される電子が、磁場が一様とみなせる場合のプライマリー軌道から逸脱する様子を図 4-3 に示す。図では、軸から遠ざかるにつれて磁場が強くなる場合を表している。式(3-56) より得られたコンビネーションアベレーションの特徴を、2 つの 6 極場 ($n_1=n_2=0, m_1=m_2=3$) に適用すると、この軌道の逸脱は 3 次の回転対称収差、4 次の 3 回対称収差、5 次の 6 回対称収差の結合で表されると数値計算以前に見通せる。以下、長い 6 極場の軌道を級数展開により具体的に解析し、この考え方を検証する。

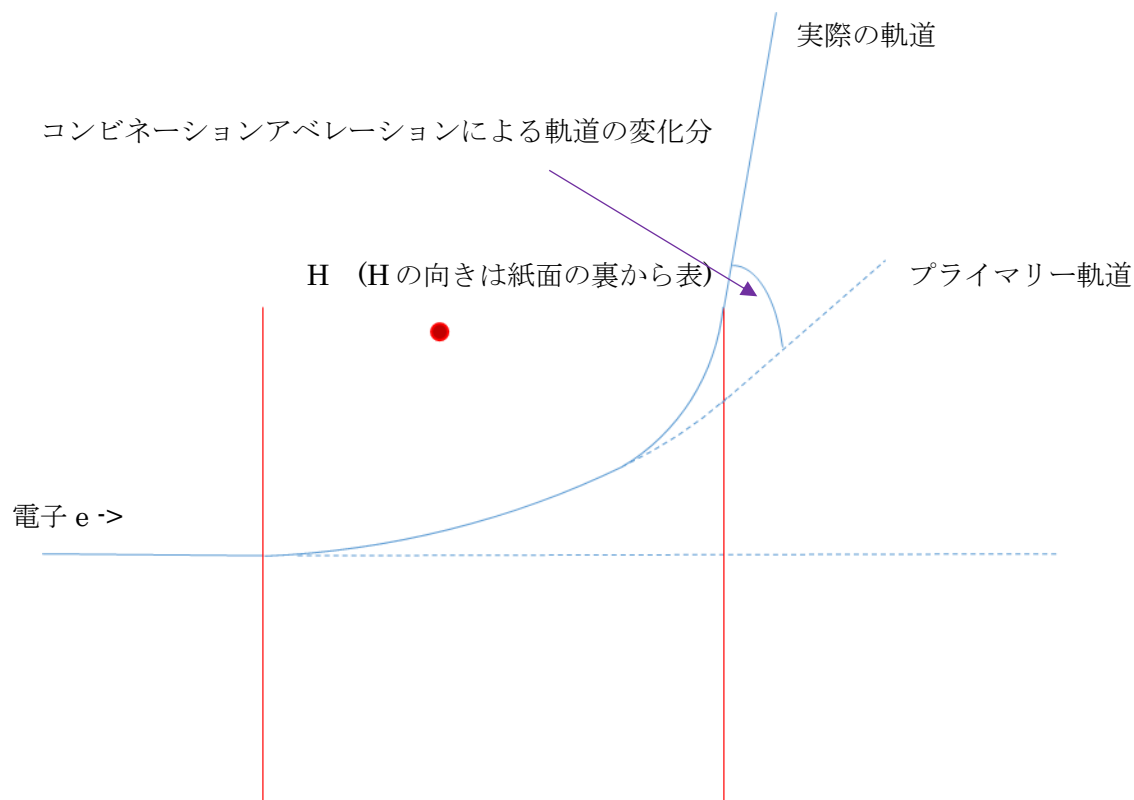


図 4-3 長い磁場中での、コンビネーションアベレーションによるプライマリー軌道からのずれ

開口角の複素座標 ω を、電子の軌道座標として用いて議論を進める。 ω は無次元量であるが、 ω による微分等を考えない場合は問題を生じない。磁場 6 極子のへの初期入射電子の軌道座標を ω_0 、その z 微分を ω'_0 とする。 z を電子の進行方向として、座標 ω 、その z 微分である傾き ω' は以下の関係で表される。

$$\omega(z) = \omega_0 + \int \omega'(z) dz \quad (4-14)$$

$$\omega'(z) = \omega'_0 + \int \omega''(z) dz \quad (4-15)$$

式(4-14)、式(4-15)は再帰的に解く必要があるが、 ω' を z で微分することで以下の微分方程式が、再帰条件として得られる。

$$\omega'' = (\omega')' = (\delta A_3 / f)' = \frac{1}{f^2 z} A_3 \omega^{*2} \quad (4-16)$$

A_3 は式 (4-13) で与えられる 6 極場の収差係数である。軌道 ω と傾き ω' は以下のようにテーラー級数に展開される。

$$\omega(z) = \omega_0 + \omega_0' z + \frac{1}{2} \omega_0'' z^2 + \frac{1}{6} \omega_0''' z^3 + \frac{1}{24} \omega_0'''' z^4 + \frac{1}{120} \omega_0''''' z^5 + \dots \frac{1}{n!} \omega_0^{(n)} z^n + \dots \quad (4-17a)$$

$$\omega'(z) = \omega_0' + \omega_0'' z + \frac{1}{2} \omega_0''' z^2 + \frac{1}{6} \omega_0'''' z^3 + \frac{1}{24} \omega_0''''' z^4 + \dots \frac{1}{(n-1)!} \omega_0^{(n)} z^{(n-1)} + \dots \quad (4-17b)$$

式 (4-16) は運動方程式を表しており、これによりテーラー級数の係数を計算できる。

$$\omega_0'' = C \omega_0^{*2} \quad (4-18)$$

$$C = \frac{1}{f^2 z} A_3 \quad (4-19)$$

式(4-18)を用いて、 ω_0 の 8 次微分まで逐次計算すると以下ようになる。

$$\omega_0''' = C (\omega_0^{*'} \omega_0^* + \omega_0^* \omega_0^{*'}) = 2C (\omega_0^{*'} \omega_0^*) \quad (4-20)$$

$$\omega_0'''' = 2C (\omega_0^{*'} \omega_0^*)' = 2C (\omega_0^{*''} \omega_0^* + \omega_0^{*'} \omega_0^{*'}) = 2C (C^* \omega_0^2 \omega_0^* + \omega_0^{*'}{}^2) \quad (4-21)$$

$$\omega_0^{(5)} = 2C (C^* \omega_0^2 \omega_0^* + \omega_0^{*'}{}^2)' = 2CC^* (3\omega_0^{*'} \omega_0^2 + 2\omega_0' \omega_0^* \omega_0) \quad (4-22)$$

$$\omega_0^{(6)} = 2CC^* (3C^* \omega_0^4 + 8\omega_0^{*'} \omega_0' \omega_0 + 2C\omega_0^{*3} \omega_0 + 2\omega_0'^2 \omega_0^*) \quad (4-23)$$

$$\omega_0^{(7)} = 4CC^* (10C^* \omega_0' \omega_0^3 + 7C\omega_0^{*'} \omega_0^{*2} \omega_0 + 5\omega_0^{*'} \omega_0'^2 + 3C\omega_0' \omega_0^{*3}) \quad (4-24)$$

$$\omega_0^{(8)} = 4CC^* (17CC^* \omega_0^{*2} \omega_0^3 + 8C^* \omega_0'^2 \omega_0^2 + 14C\omega_0^{*'} \omega_0^{*2} \omega_0 + 26C\omega_0^{*'} \omega_0^{*2} \omega_0' + 3C^2 \omega_0^{*5}) \quad (4-25)$$

ここで、6 極場に入射する前の電子は、光軸上の 1 点である物点から射出しているとみなすことにする。これは、軸上結像の条件として自然な光学素子への入射条件である。これより、入射点での傾きを表す ω_0' は p を物点と入射面までの距離の逆数として、以下のように表される。

$$\omega_0' = p \omega_0 \quad (4-26)$$

式 (4-26) を式(4-20)～式(4-25)に代入して式(4-17a)を整理すると以下ようになる。

$$\begin{aligned}
\omega(z) = & \omega_0 + \omega_0' z + \frac{1}{2} C \omega_0^{*2} z^2 + \frac{1}{3} C \omega_0^{*'} \omega_0^{*} z^3 + \frac{1}{12} C (C^* \omega_0^2 \omega_0^{*} + \omega_0^{*2}) z^4 \\
& + \frac{1}{60} C C^* (3 \omega_0^{*'} \omega_0^2 + 2 \omega_0' \omega_0^{*} \omega_0) z^5 \\
& + \frac{1}{360} C C^* (3 C^* \omega_0^4 + 8 \omega_0^{*'} \omega_0' \omega_0 + 2 C \omega_0^{*3} \omega_0 + 2 \omega_0'^2 \omega_0^{*}) z^6 \\
& + \frac{1}{1260} C C^* (10 C^* \omega_0' \omega_0^3 + 7 C \omega_0^{*'} \omega_0^{*2} \omega_0 + 5 \omega_0^{*'} \omega_0'^2 + 3 C \omega_0' \omega_0^{*3}) z^7 \\
& + \frac{1}{10080} C C^* (17 C C^* \omega_0^{*2} \omega_0^3 + 8 C^* \omega_0'^2 \omega_0^2 + 14 C \omega_0^{*2} \omega_0^{*} \omega_0 + 26 C \omega_0^{*'} \omega_0^{*2} \omega_0' + 3 C^2 \omega_0^{*5}) z^8 \\
& + \dots (4-27)
\end{aligned}$$

式(4-27)の第1項と第2項は磁場の影響を受けずに直進する電子の軌道である。第3項および第4項は6極場のプライマリー効果による軌道、すなわち3回非点による軌道を表す項であり、図4-3の点線はこの軌道を表している。第5項以降には、プライマリー効果以外の項が現れてくる。軌道自体が徐々に、電子に対して働く力を変化させることが原因であり、素子内部でのコンビネーションアベレーションが積算されていくと解釈できる。第5項を t_5 として以下に再掲する。

$$\begin{aligned}
t_5 = & \frac{1}{12} C (C^* \omega_0^{*} \omega_0^2 + p^2 \omega_0^{*2}) z^4 \\
= & \frac{1}{12} C C^* \omega_0^{*} \omega_0^2 z^4 + \frac{1}{12} C p^2 \omega_0^{*2} z^4 \quad (4-28)
\end{aligned}$$

式(4-28)の第2項は、3回非点を表しており(表3-3を参照)、軌道の傾き p^2 に依存している。像点は無限遠にとる場合が多く p は通常ゼロに近い値である。式(4-28)の第1項は、長い6極場でのコンビネーションアベレーションとして予測された3次回転対称の収差であり、表3-3にある通り球面収差そのものである。対物レンズの球面収差は慣例上、軸に向かって近づく方向を正方向とされる。式(4-28)の6極場に現れる球面収差は、 $C C^* \omega_0^2 \omega_0^{*} z^4$ は必ず正符号となり、これは軸から遠ざかる方向であるため、対物レンズの球面収差を打ち消す成分である。つまり、式(4-28)は長い6極場による球面収差補正の可能性を示唆している。式(4-27)に現れる各軌道成分を、次数と対称性にて分類すると以下ようになる。

$$\omega_{org} = \omega_0 + p \omega_0 z \quad (\text{初期条件：物点からの射出}) \quad (4-29)$$

$$\omega_{A3} = \frac{1}{2} C \omega_0^{*2} z^2 + \frac{1}{3} p C \omega_0^{*2} z^3 + \frac{1}{12} C p^2 \omega_0^{*2} z^4 \quad (2 \text{ 次 } 3 \text{ 回対称: } 3 \text{ 回非点}) \quad (4-30)$$

$$\omega_{R5} = \frac{1}{360}CC^*(3C^*\omega_0^4 + 2C\omega_0^3\omega_0)z^6 + \frac{1}{126}CC^*(C^*p\omega_0^4 + Cp\omega_0^3\omega_0)z^7 \\ + \frac{1}{1260}CC^*(C^*p^2\omega_0^4 + 5Cp^2\omega_0^3\omega_0)z^8 \quad (4 \text{ 次 } 3 \text{ 回対称: three-lobe}) \quad (4-31)$$

$$\omega_{Cs} = \frac{1}{12}C^*C\omega_0^*\omega_0^2z^4 + \frac{1}{12}CC^*p\omega_0^*\omega_0^2z^5 + \frac{1}{36}CC^*p^2\omega_0^*\omega_0^2z^6 + \frac{1}{252}CC^*p^3\omega_0^*\omega_0^2z^7 \\ (3 \text{ 次回転対称: 球面収差}) \quad (4-32)$$

$$\omega_{C5} = \frac{17}{10080}C^2C^2\omega_0^*2\omega_0^3z^8 \quad (5 \text{ 次回転対称: } 5 \text{ 次の球面収差}) \quad (4-33)$$

$$\omega_{A6} = \frac{1}{3360}C^3C^3\omega_0^*5z^8 \quad (5 \text{ 次 } 6 \text{ 回対称 } 6 \text{ 回非点}) \quad (4-34)$$

式(4-27) は軌道を z の 8 次まで展開したものであるが、 C^nC^*m を係数に含む項が収差項である。 C はプライマリーの収差係数を規格化した量であり、収差項の係数 C^nC^*m において、 $C(n=1,m=0)$ 以外のものは、すべてコンビネーションアベレーションと考えられる。対称性に関しては、 $3|n-m|$ が対称性となる。これらは全て、3.6 節の結論から導かれる予想と一致している。

長い 6 極子を用いて、球面収差の補正を行うには、式 (4-27) の各項から式 (4-32) の 3 次回転対称項のみを抽出し、他の項からの寄与をなくす必要がある。長い 6 極子に現れる 式 (4-28) の球面収差項は、Crewe によって級数展開によるコンビネーションアベレーション [1] として最初に計算されたものと一致している。Crewe はその後、複数の 6 極場を組み合わせることで、 C_s 補正項のみを抽出することを試みたが、成功の報告はなされなかった。

4.4 6 極子の連結による球面収差

長い 6 極子の軌道から回転対称の軌道のみを取り出す目的で、同じ強度で位相角が π 異なる 6 極場を 2 つ用いることを検討するのは自然な発想である。互いの 6 極場に含まれる C_s 補正項を加算的に利用し、3 回非点、および、three-lobe 項を打ち消し合やす試みである。しかし、単純に 2 つの 6 極子を連結させるのは、いくつかの問題がある。そのうち最も致命的なのは、第 2 の 6 極子で全体の 3 回非点をキャンセルさせることを条件とするならば、全体の球面収差補正項が軸に向かう成分になること、すなわち対物レンズの球面収差と同じ符号となる点である。この球面収差の符号に関する障害は、長い 6 極子において式(4-32)の第 1 項で現れる球面収差を、(3-6)節で議論したコンビネーションアベレーションの考え方を適用し、以下のように議論することで理解できる。

6 極子 H_1 の長さを z_1 、位置 z におけるプライマリーの収差係数を C_{1z} とする。6 極子 H_2 についても同様に z_2 、 C_{2z} が与えられているとする。電子は H_1 に入射し、射出後距離 L を

において H_2 に入射するものとする。6 極子内部で球面収差が生成するのは、式(3-56)において、 $m1=m2=3, n1=n2=0$ 、のケースである。したがって、式 (3-56) の (D) が 6 極場内部のコンビネーションアベレーションの基本式となる。(3-6)節での議論は本節と同じく $f=1$ としていたので、 $G_{2c}(\omega)$ は幾何収差であり、かつ、6 極子内部での軌道の傾きであった。6 極場の z 位置における収差係数が Cz と定義できる背景は式(4-13)と(4-19)に述べてある。また、図 4-2 の偏向面が小角散乱の場合 $z/2$ となることより、内部位置 z における伝播距離は $z/2$ となる。したがって、これらの条件を式(3-56)に適用すると、6 極場の z 位置における軌道の微小進行 dz により生成される球面収差 dG_{cs1} 分は以下ようになる。

$$dG_{cs1}=z^2CC^*\omega^*\omega^2dz \quad (4-35)$$

6 極場内で生成される球面収差は以下ようになる。

$$\int_0^z dG_{cs1}=\frac{1}{3} CC^*\omega^*\omega^2 z^3 \quad (4-36)$$

式(4-36)は、 $f=1$ とした場合の軌道の傾きとなる。これは、式(4-32)の第 1 項を z で微分したものと同じであり、つまりコンビネーションアベレーションの考え方と、級数展開で得られる軌道の傾きは一致している。 H_1 および H_2 での各内部において、プライマリー効果自身のコンビネーションにより、互いに独立に生成される球面収差成分は、式(4-36)がこれを表している。これらに加えて、6 極子を連結させることで、 H_1 により生成された 3 回非点と距離 L だけ離れた H_2 の相関によるコンビネーションアベレーションが生成されるので、この成分を G_{cs2} とする。 H_1 の射出における 3 回非点は C_1z_1 であり、 H_2 の z 位置での伝播距離は $(z_1/2+L+z)$ となることより、 G_{cs2} は以下ようになる。

$$\begin{aligned} G_{cs2} &= \int_0^{z_2} C_1 C_2^* \omega^* \omega^2 z_1 \left(\frac{z_1}{2} + L + z \right) dz \\ &= C_1 C_2^* \omega^* \omega^2 z_1 \left(\frac{z_1 z_2}{2} + L z_2 + \frac{z_2^2}{2} \right) \end{aligned} \quad (4-37)$$

長さや強さが同じで、互いに 3 回非点を相殺するということは、 $z_1=z_2=z$ 、 $C_1=-C_2=C$ であるので、 H_1 と L 離れた H_2 の、互いのプライマリー項の相関による球面収差の成分は、以下ようになる。

$$G_{cs2} = -CC^* \omega^* \omega^2 z^2 (z+L) \quad (4-38)$$

したがって、 H_1 と L 離れた H_2 により生成される、トータルの球面収差 G_{cs} は、式(4-36)で

表される自身の 6 極場内の収差 2 つ分と、式 (4-38) で表される相関分の和になる。

$$\begin{aligned} G_{cs} &= \frac{2}{3} CC^* \omega^* \omega^2 z^3 - CC^* \omega^* \omega^2 z(z^2 + Lz) \\ &= CC^* \omega^* \omega^2 z^2 \left(-L - \frac{1}{3}z\right) \end{aligned} \quad (4-39)$$

同じ 6 極子を 2 段用いて、3 回非点を相殺しつつ負の球面収差補正項を取り出すには、式(4-39)を正符号にする必要がある。つまり、 H_1 の射出から H_2 入射までの伝播距離 L を負に設定する工夫が必要となる。式(4-39)は、本来 6 極子 H_1 、 H_2 自身で生成するコンビネーション成分の和を抽出したいところを、単純な連結 ($L=0$) ではこれらに加えて、 H_1 、 H_2 の相関分が加わることで負の球面収差が得られないことを示している。この相関分は式(4-38)で表されているが、この成分は $L=-Z$ であれば、ゼロとなる。 $L=-Z$ とは、 H_1 と H_2 が同じ位置に存在するということである。これは物理的には当然不可能であるが、レンズを用いて H_1 と H_2 を完全に共役関係にすることで、光学的に達成できる。完全な共役関係とは、面 1 と面 2 において、結像関係にある各点の光線の、位置と傾きが再現するように結像させることを指すものとする。このように結像させることで、 H_1 と H_2 の相関で現れるコンビネーション効果は消滅し各内部で生成される項の和が結果として得られる。球面収差補正項を例にとれば、 $L=-z$ を式(4-39)に適用すると、

$$G_{cs} = \frac{2}{3} CC^* \omega^* \omega^2 z^3 \quad (4-40)$$

が得られる。さらに、球面収差補正装置は負の球面収差を生成するだけでなく、負の球面収差以外の余計な収差を生まないことが実用上重要となる。いわゆる球面収差といえど 3 次の収差であるので、これを補正する装置は他の 3 次の収差 (Star, 4 回非点)、さらに 4 次の収差(three-lobe、4 次のコマ、5 回非点)を発生しないこと、あるいは発生するにしても、十分小さいことが要求される。解像度をよくするには、低次の収差から順に補正対象となっていくので、5 次以上の高次収差 (5 次の球面収差、6 回非点、etc) はすこし重要度が下る。負の L を設定しかつ、4 次の収差を極力抑えた光学系が、多段 6 極子による球面収差補正装置には要求される。

4.5 対称 2 段 6 極子と transfer doublet

負の L を設定しかつ、4 次の収差を抑えた光学系は Rose により考案された[3]。Rose により提案された 2 段 6 極子の収差補正装置を組み込んだ結像光学系を図 4-4 に示す。対物レンズの磁界内にある物面に置かれた試料から射出する電子は、2 つの主面を持つレンズで球面収差補正装置入射し、ここで与えられる負の球面収差と対物レンズの球面収差が相殺し、結像レンズにより像面に結像される。Rose の球面収差補正装置は、強度と長さの等しい 2 つの 6 極子(HP₁、HP₂)と、その間にある 2 つの主面を持つレンズで構成されている。2 つの主面はそれぞれの焦点距離だけ離れて配置されており、このレンズは transfer doublet と呼ばれる。対物レンズと球面収差補正装置に配置されたレンズも transfer doublet である。対物レンズの aperture 面(開口面、コマフリー面などともいう)は transfer doublet 1 により HP₁ の中心面に結像されている。2 つの 6 極子 HP₁ と HP₂ は、transfer doublet 2 の前側焦点と後ろ側焦点にそれぞれ配置されている。また、transfer doublet 2 は HP₁ と HP₂ の伝播距離 L が $L=-Z$ となるように働く。これにより前節での議論のように、HP₁ と HP₂ の相関項はゼロとなり、各 6 極場自身の内部でのコンビネーション効果の和が補正装置全体の効果となる。したがって、3 回非点、4 次収差等は、互いに逆符号のため相殺する。そして、負の球面収差は加算され対物レンズの球面収差を補正することができる。transfer doublet 2 により、HP₁ と HP₂ が光学的に同じ位置にある効果が生じる。Rose の補正光学系に配置された 2 つの transfer doublet は同じ焦点距離 f を持つことより、8f システムなどと呼ばれる。

Rose の球面収差補正光学系は Haider [4]らによりその成果が報告され、TEM 像の球面収差補正の初の成功例となった。6 極場が球面収差に利用できる可能性を強く示唆したのは、Beck と Crewe の功績によるが、その後の研究において補正光学系を構成するには至らなかった。図 4-4 に示した Rose の光学系が球面収差補正に成功したのは、transfer doublet を光学系に配置したことによる。

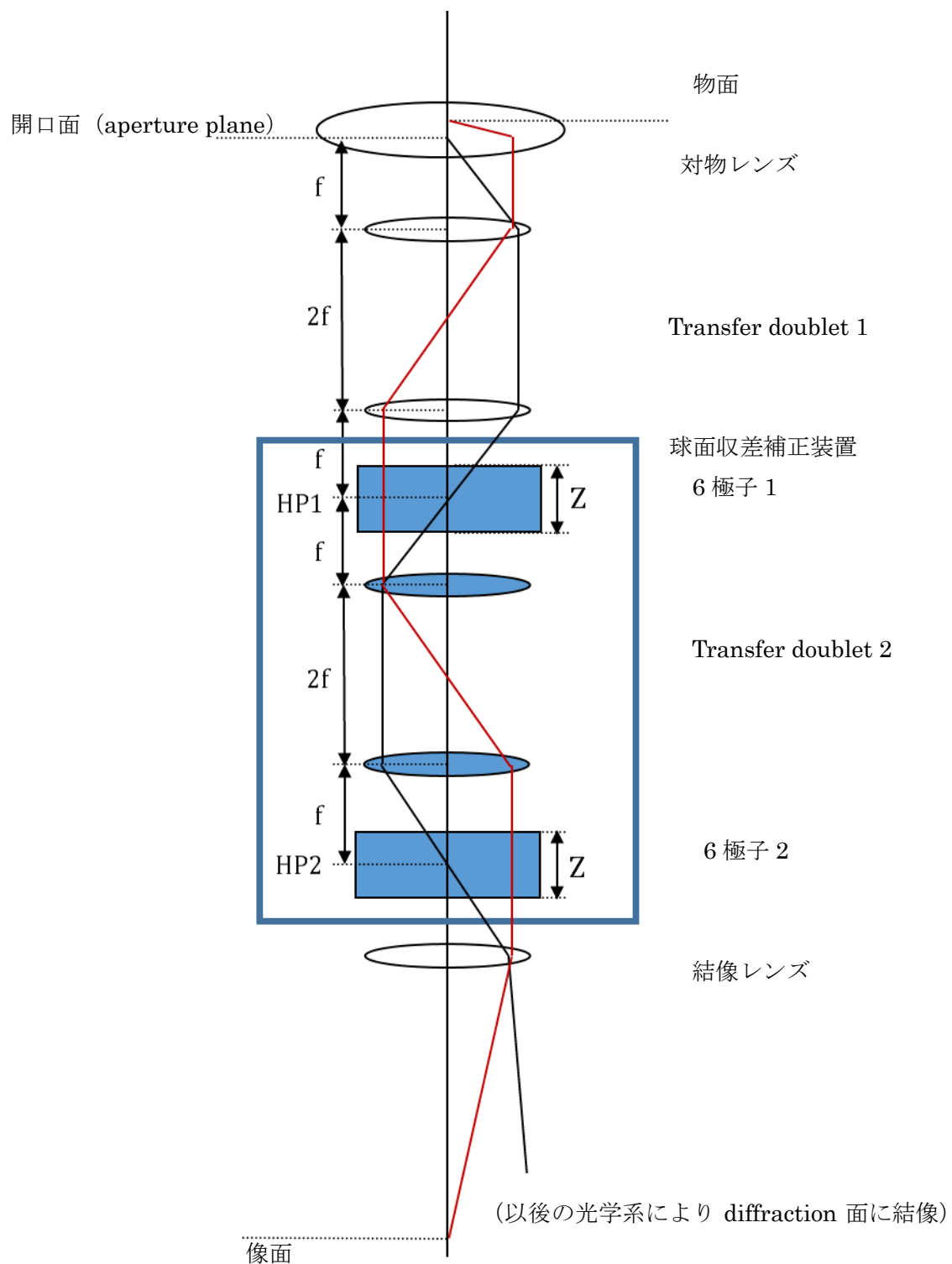


図 4-4 Rose による対称 2 段 6 極子による球面収差補正光学系

Rose の光学系に配置された transfer doublet は基本的には倍率 1 のレンズである。図 4-5 に A 面から B 面に結像する transfer doublet を示す。

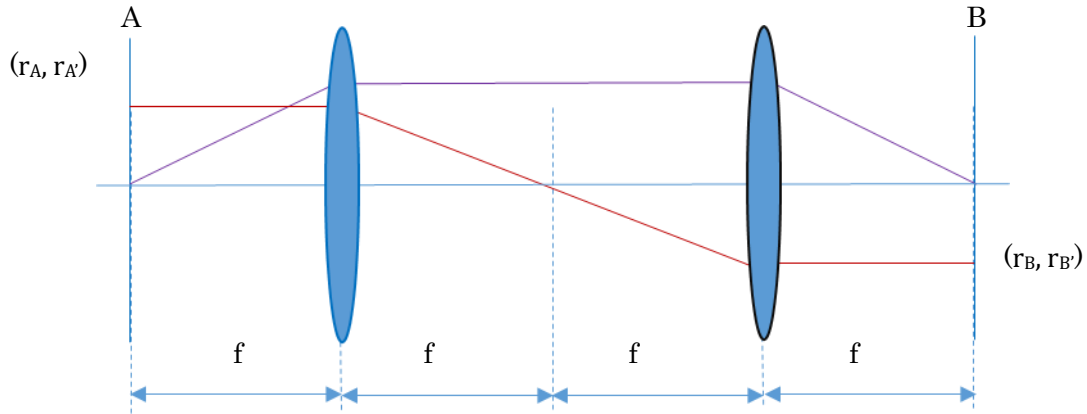


図 4-5 Transfer doublet の動作

Transfer doublet の光学系としての働きは、面 A の任意の点を通る光線の、位置 r_A 、および、傾き r'_A と、面 B の結像点における、位置 r_B および傾き r'_B の関係を示すことで理解できる。Transfer doublet を構成するレンズの焦点距離 f は数十 mm と想定されるので、薄肉レンズの近似で光学系を説明できる。薄肉レンズの効果は簡単な行列 T で表すことができる。この行列はレンズに入射する電子の位置と傾きを (r_0, r'_0) として、位置 r_0 を変えずに、傾き r'_0 のみを r'_1 に変化させ (r_0, r'_1) として射出する。 T の要素は焦点距離 f により表される。

$$T = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f & 1 \end{pmatrix} \quad (4-41)$$

自由な空間伝播を表す行列 L は伝播距離を f とすると、

$$L = \begin{pmatrix} 1 & f \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (4-42)$$

T と L を用いて、面 A における (r_A, r'_A) と面 B の結像点 (r_B, r'_B) は以下のように表される。

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} r_B \\ r'_B \end{pmatrix} &= LTL^2TL \begin{pmatrix} r_A \\ r'_A \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_A \\ r'_A \end{pmatrix} \end{aligned}$$

$$= \begin{pmatrix} -r_A \\ -r'_A \end{pmatrix} \quad (4-43)$$

式 (4-43) は transfer doublet の特徴的な結像特性を表している。transfer doublet によって、前側焦点面 A と後ろ側焦点面 B は、光線の位置と傾きが、座標反転して再現される。通常のレンズによる結像は物面の光線位置が像面で再現されるが傾きは再現されない。通常のレンズによる結像では、物面と像面が共役関係になると表現されるので、本研究では、光線の位置と傾きが再現されることを 4.3 節でのべたように完全な共役関係と呼ぶことにする。図 4-4 の光学系では、transfer doublet 1 と transfer doublet 2 により、開口面 (aperture plane)、6 極子 1 (HP₁) の中心面、6 極子 2 (HP₂) の中心面 の 3 つの光学面が、完全な共役関係にされている (座標反転の効果は通常のレンズと同じく考慮しない)。Transfer doublet により、以下の効果が保証される。

[Transfer doublet 1 の効果] :

対物レンズの開口面と、2 つの 6 極子 (HP₁, HP₂) の収差補正面において、それらの伝播距離がゼロとなる。これより、対物レンズで生成される収差と、収差補正装置が生成する収差の単純加算が系を通じての効果となる。

[Transfer doublet 2 の効果] :

2 つの 6 極子 (HP₁, HP₂) が完全な共役関係になり、これらは光学的に同じ位置に配置されているかのように作用する。HP₁ 射出のち、HP₂ の入射が HP₁ の入射と同じ位置にあるということは、伝播距離 $L = -Z$ となる光学系である。2 つの 6 極子は同じサイズであり、さらに、これらの 3 回非点が相殺されるように励磁されている。これより、各 6 極子で生成される負の球面収差の和が収差補正装置の生成収差となり、4 次の収差は互いに相殺する。

このように、2 つの transfer doublet の働きで、3.6 節および 4.3 節で述べた収差補正装置に要求される、“余計な収差を生まずに、負の球面収差を生成する” という条件が達成されている。Rose の球面収差補正の光学系は、その特徴から、対称 2 段 6 極子と呼ぶことができる。

4.6 非対称 2 段 6 極子による球面収差補正

Transfer doublet により完全な共役関係に配置された対称な 6 極子が、TEM の球面収差補正の初の成功をもたらした[4]。Transfer doublet は図 4-5 に示すように倍率 1 の結像を行う。同じ長さの 6 極子を前後の焦点面に配置することで、2 つが重なりあったかの如く振る舞い、不要な収差を相殺し、必要な負の球面収差が取り出されるのは前節で述べたとおりである。一方、電子顕微鏡鏡の光学系の設計においては、物面から像面に向かって倍率を高く設定していくのが通常的基本的手法である。倍率を、物面から結像面に向かって高くするのは、像の細部を観察するという第一の目的に加えて、光学的見地から収差の低減という非常に重要な側面がある。物面から像面に向かって、倍率を高く設定することで、像面に近い側に配置される光学素子の収差が、物面換算において低減される様子を以下に説明する。

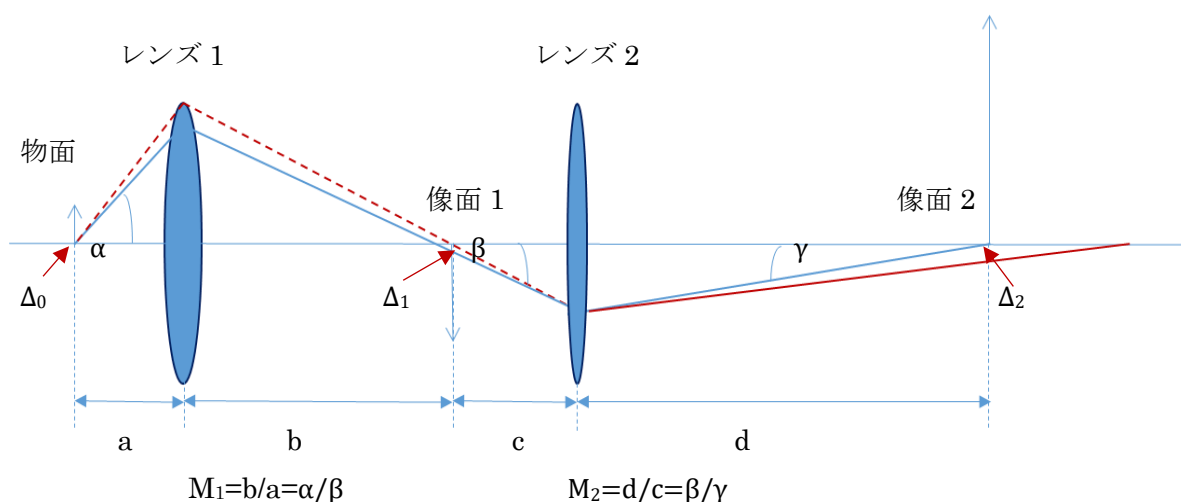


図 4-6 レンズ 2 による像面 2 の収差から、レンズ 1 の物面収差への換算

物面の観察物を、レンズ 1、レンズ 2 による 2 段階の結像で像面 1 を経て像面 2 に結像する様子を、図 4-6 に示す。収差は幾何収差として表しており、青の実線が収差の存在しない結像光線を表している。レンズ 2 から物面 2 までの赤の実線は、レンズ 2 による収差により着地点が偏向された様子を表す。レンズ 2 による幾何収差（以下単に収差とする）を Δ_2 とすると、 Δ_2 は以下のように表される。

$$\Delta_2 = M_2 A \beta^n \quad (4-44)$$

ここで、 A はレンズ 2 に対して定義される収差係数であり、 M_2 は像面 1 から像面 2 への倍率、 n は収差の次数である。像面 2 の収差は、倍率 M_2 および倍率 M_1 により、物面での収差 Δ_0 へ換算される。

$$\Delta_0 = \Delta_2 / (M_1 M_2) \quad (4-45)$$

式(4-45) は倍率の働きとして、当然の表現であるが、物面 1 から像面 2 への結像に対して定義される収差係数 A_t を用いて表すと、以下のようになる。

$$\Delta_2 = M_1 M_2 A_t \alpha^n \quad (4-46)$$

よって、式(4-44)より、 A_t と A の関係は以下のようになる。

$$\begin{aligned} A_t &= A \beta^n / (\alpha^n M_1) \\ &= A / M_1^{n+1} \end{aligned} \quad (4-47)$$

式(4-47)は、倍率による収差の縮小を示すものである。物体の線型結像成分を 0 次の収差と考えると、式(4-47)は一般の n 次成分がレンズにより伝達される様子を表している。レンズ 2 の収差係数 A をレンズ 1 の収差係数 A_t として換算した場合、レンズ 1 の倍率 M_1 を 10 倍、収差を 3 次の球面収差とすると、 A_t は A の $1/10000$ に縮小されることを表している。また、レンズ 2 の収差が、焦点ズレ（1 次収差）の場合は、倍率の 2 乗で縮小される。これは、物面の軸方向 Δ の移動に対する、倍率 M の像面での共役点の移動は、 $M^2 \Delta$ となることを意味する。つまり、物面にある物体の横成分は像面の像に倍率分拡大されて伝達されるのに対して、物体の縦成分は、像面が縦方向に倍率 2 乗に引き伸ばされて伝達されることを表している。これにより、高倍率で結像された状況においては、縦方向に像面を移動させても、像は殆ど変化しないことを意味する。

一般には、像面に向かって倍率を高くしていくと、高倍率設定以降にある光学系の収差を無視できるようになる。特に高次収差は急激に縮小される。このことはまた、物面近傍に倍率が高く設定されない光学系があれば収差が導入されやすいことを意味し、この点において、図 4-4 の対称 2 段 6 極子に構成される 2 つの **transfer doublet** は光学的に不利な伝達を行っている。収差補正装置は、式(4-29)～(4-32)にリストされている収差のうち、負の球面収差以外の不要なものを自身内で相殺させるように設計される。しかし、制作における工作誤差、および、使用時の調整誤差などにより高次収差は必ず混入してくる。このような残存収差は殆どが 3 次以上の高次収差であるが、倍率 1 の **transfer doublet** は、これらの収差を像面に直接伝達してしまう。残存収差は、収差補正装置の分解能を制限する要素のひとつであり、倍率 1 の **transfer doublet** の問題点である。この問題は、**transfer doublet** を非対称に設計することで解決される。収差補正装置に向かって、物面からの倍率 M を少しでも高く設定できれば、 $1/M^{n+1}$ の係数で急激に残存収差を低減できる。Rose の収差補正装置において、**transfer doublet** の倍率が 1 に設定されている第一の理由は、4.5 節で述べた[Transfer

doublet 2 の効果]を保証するためである。Transfer doublet の倍率が 1 であれば、長さの同じ HP₁ と HP₂ は光学的に等価配置となり、[Transfer doublet 2 の効果]が保証される。一方、本節の式(4-47)は、倍率を高く設定しつつ、[Transfer doublet 2 の効果]を保証するための条件を示唆している。倍率 M_t の Transfer doublet で HP₁ と HP₂ を光学的等価配置にするには、物面の軸方向 Δ の移動に対する、倍率 M_t の像面での共役点の移動 $M^2\Delta$ を見込んだ配置にすればよい。つまり、HP₁ と HP₂ の長さの比にこの関係を当てはめれば、等価な配置が実現できる。

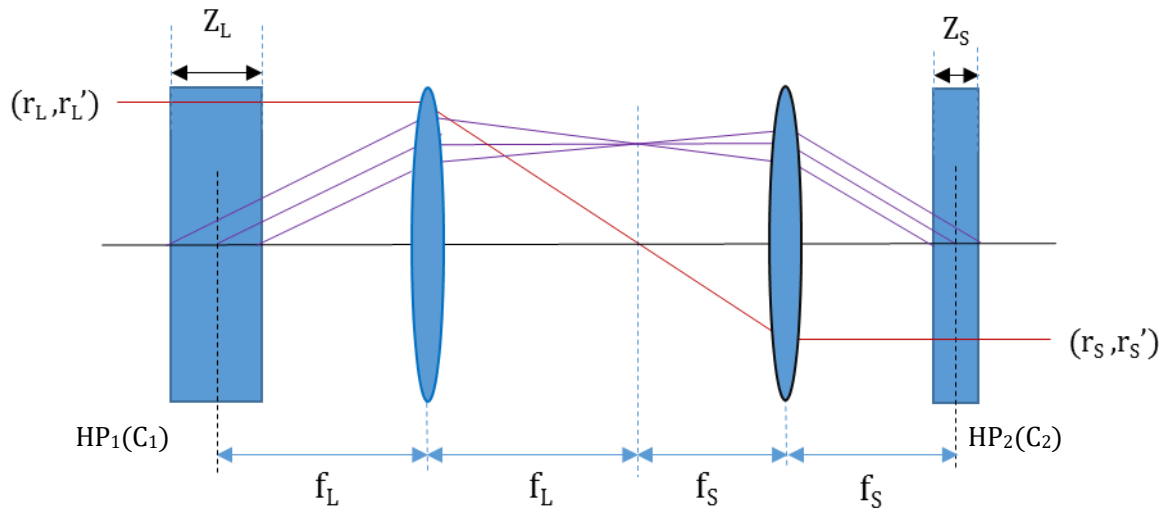


図 4-7 非対称な 6 極場と transfer doublet による収差補正装置

図 4-7 に倍率 $M_t=f_S/f_L$ の transfer doublet と、励起強度と長さが異なる 6 極子を組み合わせた収差補正装置を示す。6 極子 HP₁ の強さを C_1 、長さを Z_L とする。また、6 極子 HP₂ の強さを C_2 、長さを Z_S とする。焦点距離の異なる transfer doublet により HP₁ の中心面と HP₂ の中心面が、倍率関係 $M_t=f_S/f_L$ による完全共役となっている。HP₁ の中心から HP₁ の端面(入射面、射出面)までは $Z_L/2$ である。 $Z_L/2$ の 1 次収差 (物面のズレ) によるこれと共役な面は Z_S 中心から、式(4-47)より、 $1/M_t^2$ 軸方向に移動した面となる。この移動面が Z_S の端面 (入射面、射出面)に一致すれば、HP₁ と HP₂ は光学的に同じ配置となる。したがって、以下の関係が第一に要求される。

$$Z_L = \left(\frac{f_L}{f_S}\right)^2 Z_S \quad (4-48)$$

式(4-48)が満たされれば、HP₁ と HP₂ は光学的に、同じ位置に配置されているとみなせる。この条件により、式(4-37)のカッコの中をゼロとすることができる。したがって、それぞれ

の内部にて生成される収差の加算が、補正装置全体の生成収差となる（ただし、高次のコンビネーションは、作用面が僅かにずれることで、残存項が生じるがここでは議論しないで、注意喚起にとどめる）。

収差補正のためには、さらに互いの内部で発生する余計な収差（3 回非点、4 次収差等）を相殺する必要がある。図 4-7 において、transfer doublet の (r_L, r'_L) から (r_S, r'_S) への伝達を、式(4-43)に倍率 M_t の効果を加味して表すと以下のようなになる。

$$\begin{pmatrix} r_S \\ r'_S \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -M_t & 0 \\ 0 & -1/M_t \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_L \\ r'_L \end{pmatrix} \quad (4-49)$$

(r_L, r'_L) の入射に対して、HP₁ にて与えられるプライマリー収差 A_{31} は以下となる。

$$A_{31} = C_1 Z_L r_L'^2 \quad (4-50)$$

(r_S, r'_S) の入射に対して、HP₂ にて与えられるプライマリー収差 A_{32} は以下となる。

$$A_{32} = C_2 Z_S r_S'^2 \quad (4-51)$$

式(4-9)より、 $f=1$ ならば、収差とは軌道の傾きとみなせることより、プライマリー収差の相殺条件は $A_{31} = -M_t A_{32}$ となる。したがって、 C_1 と C_2 は以下の関係を満たすことを要求される。

$$\begin{aligned} C_1 &= -M_t C_2 (Z_S r_S'^2 / Z_L r_L'^2) \\ &= -M_t^5 C_2 \\ &= -\left(\frac{f_S}{f_L}\right)^5 C_2 \end{aligned} \quad (4-52)$$

式(4-48)と式(4-52)は、2 段 6 極子と transfer doublet が収差補正装置として動作するための、満たすべき一般条件を表している。Rose の対称 6 極子は、式(4-48)、式(4-52)において、 $f_S=f_L$ とした特殊な場合であると理解できる。

以上の議論より、2 段 6 極子と transfer doublet による収差補正の、一般条件（式 4-48、式 4-52）を見いだせた。これにより、transfer doublet が物面から像面に向かって、拡大系となる球面収差補正光学系の作成が可能となった。この光学系は、非対称 2 段 6 極子による球面収差補正光学系として、日本[5],[6]、米国[7][8]、欧州[9]、ドイツ[10][11] にて特許として登録された。図 4-7 に、非対称 2 段 6 極子による球面収差補正光学系を示す[12]。

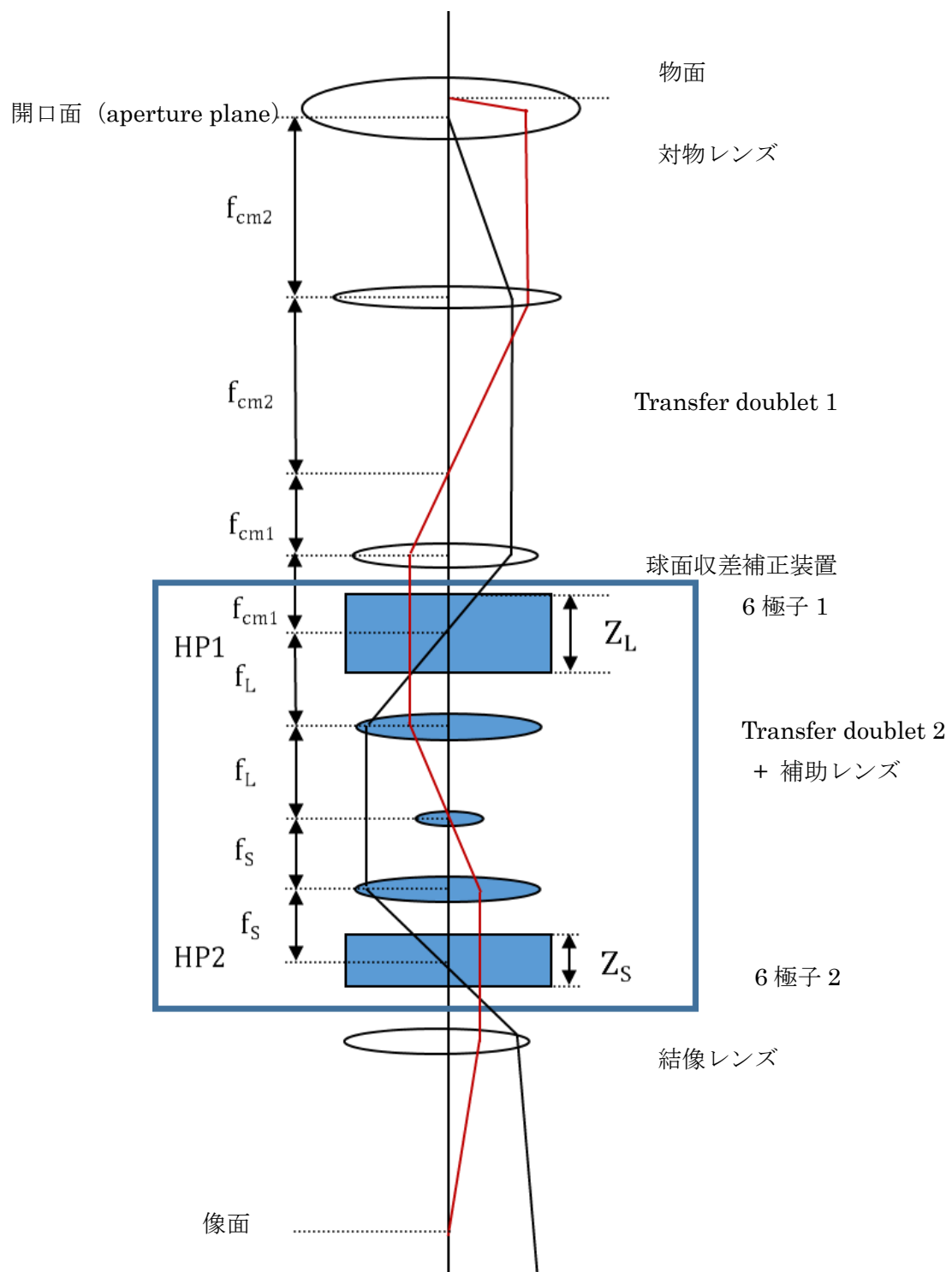


図 4-7 非対称 2 段 6 極子による球面収差補正光学系

図 4-7 の非対称 2 段 6 極子による球面収差補正光学系においては、対物レンズの磁界内にある物面に置かれた試料から射出する電子は、異なる焦点距離(f_{cm2}, f_{cm1})を持つ 2 つのレンズで球面収差補正装置入射する。この 2 つのレンズは、拡大系として働く transfer doublet 1 を構成し、像面に向かって倍率 $M_{t1}=f_{cm2}/f_{cm1}$ が光学系に乘じられる。Transfer doublet 1 は対物レンズの開口面と、球面収差補正装置の 2 つの 6 極子(HP_1, HP_2)の作用面の光学距離をゼロにするように働き、収差補正装置で生成する収差と対物レンズの収差の加算が、系全体の収差となる。この本来の目的に加えて、倍率 M_{t1} の効果により、式(4-47)に従って収差補正装置の寄生収差を低減する。電子は球面収差補正装置に入射後、負の球面収差が与えられるので、これにより対物レンズの球面収差が相殺する。球面収差補正装置は、強度(C_1, C_2)と長さ(Z_L, Z_S)が異なる非対称な 2 つの 6 極子(HP_1, HP_2)、焦点距離(f_L, f_S)が異なる transfer doublet 2、および補助レンズで構成される。Transfer doublet 2 は transfer doublet 1 と同様に拡大系として働く。6 極子の強度(C_1, C_2)、長さ(Z_L, Z_S)、transfer doublet 2 の焦点距離(f_L, f_S)は、式(4-48)、および、式(4-52)を満たすように設計されている。これにより、 HP_1 と HP_2 は光学的に、同じサイズ、同じ位置に配置されたものとして働き、かつ、transfer doublet 2 により、倍率 $M_{t2}=f_L/f_S$ が乗じられる(*注)。補助レンズは transfer doublet の焦点面に配置されており、transfer doublet 2 の機械的誤差を調整するために弱く励起される[5]。非対称 2 段 6 極子の光学系の狙いは、対称 2 段 6 極子の持つ収差補正機能に加えて、対称 2 段 6 極子では 1 であった系の倍率を高く設定することである。これにより、倍率 M によって、次数 n の収差が $1/M^{n+1}$ に低減される[12]。球面収差が補正された後は、残りの他の収差が引き続き解像度の制限の因子となる。球面収差補正後の残存収差を小さくすることが、高分解能を達成するには重要である。非対称 2 段 6 極子の光学系は、Transfer doublet 1 と transfer doublet 2 を拡大系として使用することで、球面収差補正後の残存収差の影響の少ない光学系となっている。非対称 2 段 6 極子の発生する負の球面収差を G_{cs} とする。光学系が式(4-48)、および、式(4-52)を満たすように設計されていることより、 G_{cs} は、 HP_1 と HP_2 各々に対する式(4-36)の補正成分の加算となる。 HP_1 および HP_2 から物面への、収差補正成分の換算は、transfer doublet 1、transfer doublet 2 の倍率効果を式(4-47)に適用することで得られる。 G_{ccs} は収差補正装置の持つ収差補正能力とも言い換えることができ、以下のように表される[13]。

$$G_{csc} = 6f^4z_s^3 (\mu_0 NI_2)^2 / (R^2 b^6 M_{t1}^4 M_{t2}^4) \quad (4-53)$$

ここで、 f は対物レンズの焦点距離、 μ_0 は真空の透磁率、 NI_2 は HP_2 の起磁力である。また、 $M_{t1}=f_{cm2}/f_{cm1}$ 、 $M_{t2}=f_L/f_S$ である。

*注：Transfer doublet では、物面と像面に向かう倍率と、 HP_2 から HP_1 に向かう倍率が同じとなる。すなわち、倍率に関して、向かう方向が逆となる点に注意が必要である。

4.7 非対称光学系による寄生収差の低減

収差補正装置に構成される 6 極子は、負の球面収差と 3 回非点のみを励起するのが理想であり、この目的に沿って、各極が 6 回対称を構成するように作成される。理想的には、各極先端部は放物線形状が望ましいが、現実の加工では、対称性の精度を優先して台地状の加工となる。実際上作成された 6 極子に励磁を与えると、各極の加工誤差や放物線形状からのズレ等により、3 回非点以外に他の収差が光学系の目的に反して励起される。このような収差は寄生収差 [14] と呼ばれ、光学系の持つ性能を阻害する。寄生収差は、理想的にあるべき本来の極に対して、形状誤差分により寄生的に形成された極によると考えられる。寄生収差は、主にプライマリー成分とフリンジ成分よりなると考えられる。加工精度に関連したコンビネーション成分は、寄生収差に対する微小成分となり無視できる。非対称 6 極子収差補正系は、収差補正装置以降の収差を低減する効果があることは式(4-47)により明らかである。以下の議論で、収差補正装置自身の寄生収差も非対称 6 極子収差補正系により低減される様子を示す。

寄生収差の収差係数の大きさを $|A_n|$ とすると、 $|A_n|$ はポテンシャルの次数を np として、以下のような比例関係がある。

$$|A_n| \propto \frac{1}{R} z N I \left(\frac{f}{b}\right)^{np} \quad (4-54)$$

HP₂ の寄生収差を例にとると ($z=z_s, NI=NI_2$)、寄生収差と収差補正能力の比は以下となる。

$$|A_n| / G_{csc} \propto R b^6 M_{t1}^{4-np} M_{t2}^{4-np} f^{np-2} / z_s^2 N I_2 b^{np} \quad (4-55)$$

物面から像面までの、HP₂ が関与する倍率 M は M_{t1} と M_{t2} の積となる。

$$M = M_{t1} M_{t2} \quad (4-56)$$

球面収差の生成する負の球面収差は対物レンズの球面収差と同じ大きさとする必要がある。この当然の補正条件を保持しつつ系の倍率 M を変えるとすれば、式(4-53)を一定に保つために、他の制御パラメータを変化させる必要がある。このパラメータとして起磁力の変化を選択した場合、 M と NI_2 により与えられる収差補正能力が一定であるためには、以下の比が一定である必要がある。

$$M^2 / NI_2 = \text{const.} \quad (4-57)$$

np はポテンシャルの次数であるので、 n 次の寄生収差と収差補正力の比は、以下の式で表される。

$$|A_n|/G_{csc} \propto M^{1-n} \quad (4-58)$$

式(4-58)は、6 極子 HP_2 の寄生収差が **transfer doublet** の倍率により、低減される様子を表している。 HP_1 に対しては、式(4-56)で $M=M_{t1}$ として式(4-58)は同じ結果となる。式(4-58)によれば、2 次以上の寄生収差は、**transfer doublet** の倍率 M を 1 以上に設定することで低減されてゆくことになる。例えば $M=2$ 程度であっても、3 次の収差 (A_4, S_4) は $1/4$ に、4 次の収差 (A_5, R_5, P_5) の場合は、 $1/8$ に低減されることになる。したがって、式(4-48)および式(4-52)を満たす非対称 2 段 6 極子による収差補正系により、寄生収差の影響の少ない収差補正が実現できる。

4.8 まとめ

透過電子顕微鏡の球面収差の補正に初めて成功したのは、Haider らによる 6 極子用いた光学系であった。長い 6 極場が負の球面収差を生成することは、Beck、Crewe らの研究で明らかになった。本章では、前章で明らかにしたコンビネーションアベレーションの一般式を用いて、長い 6 極場の解析を行った。その結果、長い 6 極場が、負の球面収差から 6 回非点までのコンビネーション項を生成することを確認できた。Haider の 6 極子光学系の **transfer doublet** の動作は、コンビネーションにおける負の伝播距離の発生要素と考えられる。コンビネーション項と伝播距離の関係 (式 4-39) に見られるように、2 段 6 極子に負の伝播距離が与えられることが、球面収差補正装置として動作する必要条件であることが明らかになった。さらに 6 極子場が **transfer doublet** により転送される際の、縦倍率を考慮した結果、**transfer doublet** の焦点距離と 6 極子の長さおよび起磁力が満たすべき一般則 (式 4-49、式 4-53) が導出された。これより、対称な 6 極子により収差補正装置を構成できるとされていたのは、補正の特殊条件であり、非対称な 6 極子において、一般の補正系を構成できることが理論上証明できた。このような考察をもとにして、一般則に則った非対称 6 極子の光学系を設計した。非対称系を用いると、対称系に比べて残収差が小さくできることより、日本、米国、欧州、ドイツにて特許を取得した。次章にて、本研究で作成した収差補正装置を電子顕微鏡への搭載と、その性能評価について述べる。

参考文献

- [1] A. V. Crewe and D. Kopf, A sextupole system for the correction of spherical aberration, *Optik* 55, 1-10 (1980).
- [2] 太田恵造、磁気工学の基礎 II、共立出版 (1996)
- [3] H. Rose, Outline of a spherically corrected semi-aplanatic medium-voltage transmission electron microscope, *Optik* 85, 19-24 (1990).
- [4] Haider, H. Rose, S. Uhlemann, E. Schwan, Bernd Kabius and K. Urban, A spherical-aberration-corrected 200kV transmission electron microscope, *Ultramicroscopy* 75, 53-60 (1998).
- [5] 細川史生、JP 3896043 B2 (2007. 3.22).
- [6] 細川史生、JP 3896150 B2 (2007. 3.22).
- [7] Fumio Hosokawa, US 6836373 B2 (2004. 12.28).
- [8] Fumio Hosokawa, US 7060985 B2 (2006.06.13).
- [9] Fumio Hosokawa, EP 2226831 B1 (2011.12.28).
- [10] Fumio Hosokawa, DE10262340 B4 (2012.02.02)
- [11] Fumio Hosokawa, DE10231426 B4 (2015.08.06)
- [12] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Sannomiya, T. Kaneyama, Y. Kondo, M. Hori, S. Yuasa, M. Kawazoe, T. Nakamichi, Y. Tanishiro, N. Yamamoto and K. Takayanagi, Design and development of Cs corrector for a 300 kV TEM and STEM. IMC-16, Sapporo. 2, 582. (2006)
- [13] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi and K. Suenaga, Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy, *Microscopy* 62, 23-41 (2013).
- [14] P. W. Hawkes and E. Kasper, Principles of Electron Optics: Basic Geometrical Optics, Academic Press (1996), San Diego.

5. 300kV 球面収差補正光学系の開発

5.1 序論

非対称 2 段 6 極子を用いた球面収差補正系の有効性は、第 4 章での議論により確認された。また、6 極場の励起強度、極の長さ、**transfer doublet** の焦点距離に関して系が満たすべき条件も得られた。このような成果は、JST CREST プロジェクト「0.5 Å 分解能物質解析電子顕微鏡基盤技術の研究」(研究代表者： 高柳邦夫 東京工業大学大学院理工学研究科 教授)における新規開発項目である、300kV 収差補正電子顕微鏡に搭載する収差補正装置の設計に適用された。CREST プロジェクトで開発した 300kV 電子顕微鏡は、“世界最高分解能を持つ電子顕微鏡を開発する” という目標を挙げて、プロジェクト名を R005 として開発が開始された[1]。当時すでに対称 2 段 6 極子による収差補正が成功していたため、R005 にて開発する電子顕微鏡は、それ以上の性能が見込める収差補正装置を搭載していなければならない。この要望に応えるために、第 4 章までの議論を経て、非対称 2 段 6 極子球面収差補正装置を 300kV 電子顕微鏡に搭載することとなった。本章では、300kV 収差補正電子顕微鏡に搭載した非対称 2 段 6 極子収差補正装置についてその詳細を述べる。本章の目的は、これまでの議論により有効性が見込まれる新たな収差補正装置を製作し、これを実際に電子顕微鏡に装着し、その性能を実証することである。

5.2 目標分解能

透過電子顕微鏡の収差補正に関する、初の成功例はすでに述べたように Rose の 2 段 6 極子であった。初の球面収差補正の成功は、**diffractogram tableau** [2] を解析することで確認された。球面収差補正により到達される分解能に関しては、Haider らによる 1.2 Å の分解能が報告された。球面収差の補正と、それによる到達分解能の報告は、前者は光学における評価であり、後者は技術的側面がさらに加わるので、両者は分けて評価されるべきであるが、収差補正電子顕微鏡の分解能値としては十分とは言えなかった。これに対して、Haider の研究グループは、球面収差補正後、残存収差が像に与える影響を議論することで、状況的な回答を与えた[3]。すなわち、球面収差の補正後、さらに残存する他の幾何収差による解像度の低下を考慮すべきである。球面収差の補正後は、その次の何らかの収差が分解能の新たな制限因子となる。その次の収差とは、一般には対物レンズの色収差と考えられるが、これは残存する幾何収差が十分に小さいことが前提である。本研究にて開発した球面収差の補正においては、非対称 2 段 6 極子を用いること、および残存収差の補正機能を用意することで[4]、分解能の制限因子は、対物レンズの色収差に収差補正系の **transfer lens** の色収差を加えたものが分解能制限因子となると、装置の設計段階において見通された。対物レンズ

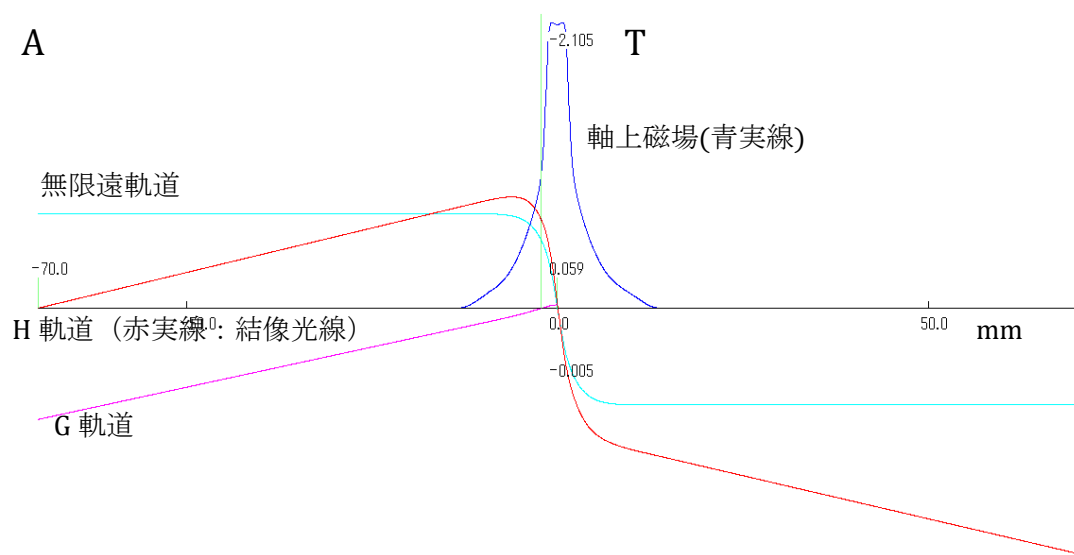
の色収差係数を C_{co} 、収差補正装置の **transfer doublet** の色収差係数を C_{ct} とすると、両者の和 C_c が光学系の色収差係数となる。到達分解能はこの C_c の値により決まると見込まれた。対物レンズの色収差係数は、通常、数値計算で十分な精度で計算できる。すなわち、ポールピースの軸上磁場を有限要素法で計算し、近軸における電子の軌道を求め、軌道に収差の積分公式適用することで C_c を求めることができる。R005 TEM (300kV 収差補正電子顕微鏡)の対物レンズの軸上磁場 (青実線)、および軸近傍での電子の結像軌道 (H 軌道 : 赤実線) を図 5-1 A に示す。H 軌道は近軸であることにより、収差の影響を受けない理想的な軌道であり、各種の光学定数は近軸軌道の積分公式から求めることができる[5]。H 軌道は、軸上磁場から受けるローレンツ力による以下の微分方程式を数値計算で解くことで求めることができる。

$$H''(z) + \frac{eB^2(z)}{8mU(1+\gamma U)} = 0 \quad (5-1)$$

H 軌道が求まれば、レンズの球面収差係数 C_{so} および色収差係数 C_{co} は以下の数値積分により計算される[6],[7]。

$$C_{so} = \int_{z_i}^{z_o} H^4(z) \left(\frac{2e}{mU(1+\gamma U)} B^4(z) 5B'^2(z) - B(z)B''(z) \right) dz \quad (5-2)$$

$$C_{co} = \int_{z_i}^{z_o} \frac{e}{8mU(1+\gamma U)} H^2(z) B^2(z) dz \quad (5-3)$$



B

kv

s+b (mm)

J

r0 (um)

r0'

z0 (mm)

Analytical

fo(mm)

Cs(mm)

Cc(mm)

Get

Orbital scale

Calc

Exit

Numerical

☒ To LEFT

fo(mm)	Cs(mm)	Coma_R (um)	Hiten_R (um)	FieldCv (um)	Dist_R (um)
2.1005	0.7225	0.2117	-0.0004	0.0012	0

☐ To RIGHT

Cc(mm)	Mag	Coma_I (um)	Hiten_I (um)	Off Axis (um)	DistI (um)
1.2583	21.378	1.872	0	1	0

図 5-1 300kV R005 収差補正電子顕微鏡の対物レンズ軸上磁場、各種電子軌道、および光学定数

図 5-1B に、このようにして求めた R005 TEM の対物レンズの各種光学定数を示す。これらのうち、収差補正装置の設計に必要なとなる光学定数の値を表 5-1 に示す。

表 5-1 R005 TEM の対物レンズの光学定数

加速電圧 300kV		
Cco 球面収差係数	Cco 色収差係数	fo 焦点距離
0.72 mm	1.25 mm	2.10 mm

ポールピースは、前側レンズ、および、後ろ側レンズとも、同じ特性を持つように設計されている。物面は、磁場の中心にあり、TEM の結像における光学定数（後ろ側レンズ）とプローブ形成における光学定数（前側レンズ）はともに、表 5-1 の値となる。対物レンズの色収差係数が 1.25 mm であるので、Transfer lens の色収差係数を 0.25mm 以下に抑えることで、系の色収差係数 Cc を 1.5mm 以下に抑えることができる。

$$Cc = Cco + Cct < 1.5 \quad (\text{mm}) \quad (5-4)$$

Transfer lens の色収差係数はその焦点距離と同じ値となるので、系の光学設計により Cct は物面換算で 0.25mm が実用上の設計値と判断された。これより、R005 TEM の到達分解能は、300kV で色収差係数 0.15mm にて得られる分解能と見込まれた。球面収差が補正され、残収差が十分小さい場合は、2.4 節で述べた伝達関数の最初のゼロ点は、幾何収差によるのではなく、色収差によるエンベロープ関数となる。また、STEM 像の分解能は、試料面で形成される電子プローブの大きさとされる。R005 における実験上での到達分解能の確認は、STEM の HAADF(High angle anular darknfield) 像に現れる最小分離原子間距離で行うこととした。というのは、TEM 像の場合分解能が 1.0 Å を上回ると、単原子のポテンシャル分布関数のフーリエ変換は、この領域においての情報が少なく、光学系の性能が正確に反映されなくなるからである。TEM 像では、ポテンシャルの線型成分により分解能が定義されているが、STEM の HAADF 像は、ポテンシャルの 2 乗が結像成分と考えてよいので[8]、原子の位置に対応する結像成分は TEM に比べシャープな位置関数となる。このため、HAADF 像は 1.0 Å を上回る分解能の確認に適している。

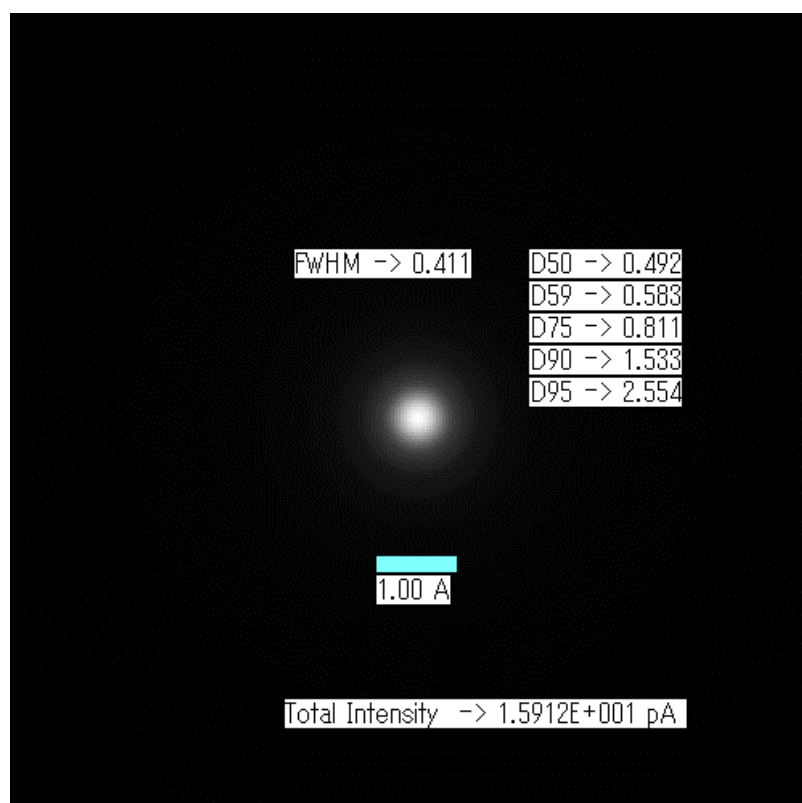


図 5-2 300kV 非対称球面収差補正装置の電子ビームシミュレーション計算

図 5-2 に、300kV 非対称球面収差補正装置にて期待されるビーム系のシミュレーションを示す。計算条件は以下に示す。

加速電圧：	300kV
開口収差：	30mrad 半角まで補正
色収差：	1.5mm
Energy spread：	0.35 eV
ガウス像サイズ：	0.025 nm

波動光学のシミュレーションで得られた、ビーム径は以下である。ただし、D50 等は 50 パーセントの強度を含むビームの直径を表す。D50 は強度がガウス分布となる場合、半値幅と一致する。

半値幅：	0.041 nm
D50：	0.049 nm
D59：	0.058 nm
D75：	0.081 nm
D90：	0.153 nm
D95：	0.255 nm

計算条件にある、energy spread 0.35 eV およびガウス像サイズ 0.025 nm は、令陰極電界放出電子銃をもちいることで達成可能である。ビーム強度の半値幅または D50 は、STEM の HAADF 像の分解能を表すと考えてよい。本研究のこの段階において、電子顕微鏡の分解能 0.05nm が十分達成可能と判断できた。次の節では、設計された R005 TEM の光学系の構成に関して述べる。

5.3 光学系構成

加速電圧 300kV において、0.05nm の分解能達成を目標とした CREST R005 プロジェクトの光学系を、本研究の成果として設計、制作した。図 5-2 に、照射系および結像系収差補正装置を含む、光学系の主要部を示す。図中の仮想光源位置に、光源の像が主要部以外の光学系にて作成されている。結像系コレクターは、図 4-7 の非対称な 6 極場と transfer doublet による収差補正装置と同じである。照射系コレクターはこれと試料面を挟んで、鏡面对称な構成となっている。コレクター以外の光学素子も、CL と倍率調整レンズの間で、試料面を介して鏡面对称になっている。以下、光学系の動作を箇条書きにして説明する。

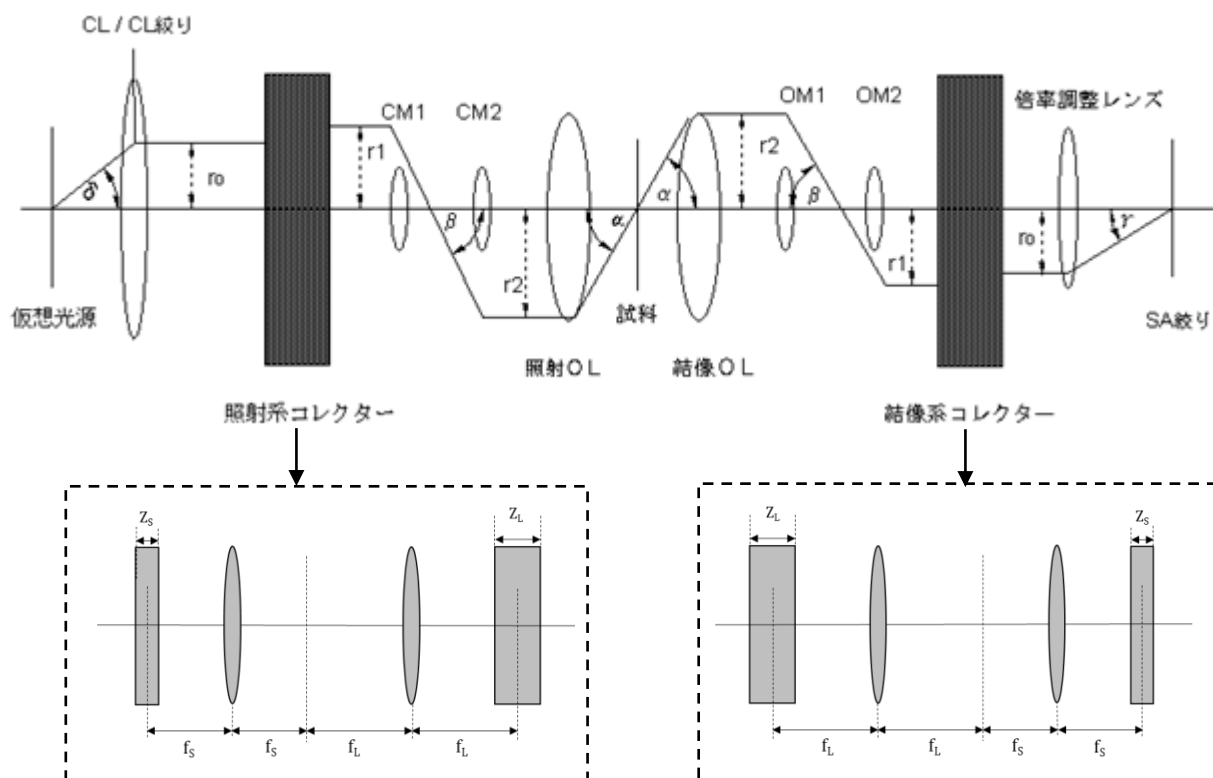


図 5-2 CREST R005 プロジェクトの、照射系および結像系収差補正装置を含む光学系

1. 軸上の仮想光源より射出する電子は、平行光線となり照射系球面収差補正装置（照射系コレクター）に入射する。図の光線図は、照射絞り（CL 絞り）による最大取り込み角度 δ にて射出し、コンデンサーレンズ(CL)より光軸から距離 r_0 の平行な光線となる電子に関するものである。
2. 照射系コレクターにより、対物レンズの球面収差を相殺する負の球面収差が与えられた後、照射系コレクターから平行に射出する。照射系コレクターは 2 段非対称 6 極子で構成されており、電子は、入射軌道 r_0 に対して r_1 で軸に平行に射出する。このとき、軌道の符号は **transfer doublet** により反転するが、図では反転の様子は省略してある。照射系コレクターにより、光源から物面に向かう縮小率(物面から光源に向かう倍率の逆数) r_0/r_1 が与えられる。
3. 照射系コレクターより射出した電子は、焦点距離の異なる 2 つのレンズ **CM₁**, **CM₂** にて対物レンズの前側レンズ(照射 OL)に入射する。**CM₁**, **CM₂** は、光源から物面に向かって縮小率が高くなるような **transfer doublet** として働く。**CM₁**, **CM₂** が構成する **transfer doublet** により、照射系コレクターの作用面と照射 OL の収差導入面の光学距離がゼロとなる。

CM₁,CM₂による transfer doublet にて電子は、照射系コレクターに軌道 r₁にて入射し、軌道 r₂ となって射出する。このとき光源から物面に向かう縮小率 r₁/r₂ が与えられる。

4. 前側の対物レンズ(照射 OL)により、試料面で収束角 α により光源の像が形成される。このとき、仮想光源から物面までのトータルとしての縮小率は δ/α となる。対物レンズは図 5-1 A に示した磁場分布を持ち、図 5-1 B および表 5-1 に示した磁場分布の解析結果のように、球面収差係数は 0.72mm、色収差係数は 1.25mm である。球面収差は照射系コレクターにより補正され、残存収差も収束角 30mrad 以内において補正される。また、軸上色収差は、照射系コレクターと前側対物レンズの合計で 1.5mm 以内である。このように設計された光学系により、図 5-2 のシミュレーションで確認されたように試料面での半値幅および D5 とともに、0.05nm 以下の電子ビームが得られる。したがって、STEM HAADF 像にて、0.05nm 分解能が達成される設計となっている。
5. 試料面の一点から、角度 α により射出した電子は後ろ側の対物レンズ(結像 OL)により軌道 r₂ で軸と並行な結像光線となる。このとき、開口面で照射 OL と同様の球面収差 0.72mm の収差係数で球面収差が導入される。
6. 結像 OL より平行に射出した結像電子は、焦点距離の異なる 2 つのレンズ OM₁,OM₂ にて、結像系球面収差補正装置(結像系コレクター)に入射する。OM₁,OM₂ は、物面(試料)から像面に向かって倍率が高くなるような transfer doublet として働く。OM₁,OM₂ が構成する transfer doublet により、結像系コレクターの作用面と結像 OL の収差導入面の光学距離がゼロとなる。OM₁,OM₂ による transfer doublet により、軌道 r₁ の電子は軌道 r₂ となって結像系コレクターに入射する。このとき試料から像面に向かう倍率 r₂/r₁ が与えられる。
7. 結像系コレクターにより、負の球面収差が与えられ、対物レンズの球面収差と相殺する。結像系コレクターは 2 段非対称 6 極子で構成されており、電子は、入射軌道 r₁ に対して r₀ で軸に平行に射出する。このとき、軌道の符号は transfer doublet により反転するが、図では反転の様子は省略してある。結像系コレクターにより、像面に向かう倍率 r₁/r₀ が与えられる。
8. 結像系コレクターより r₀ で射出した電子は、倍率調整レンズ(PCL : post corrector lens)により、像面(SA 絞り面 : SA =selected area aperture)に、物面からのトータル倍率 α/γ にて結像される。

5.4 補正系の色収差

図 5-2 の仮想光源、および、SA 絞りの各光学面における物面からの倍率は、それぞれ、 α/δ 、および、 α/γ である。各面における倍率は CL および倍率調整レンズの焦点距離を長くすることで、20 倍～100 倍程度で調節できる。仮に倍率 20 倍とした場合でも、式(4-47)において示したように、各面以降に配置された光学素子の n 次収差係数は、物面換算で $1/20^{n+1}$ に縮小される。よって、2 次以降の収差は物面収差としては無視できる（軸外収差は別途検討が必要であるが、分解能の障害要素という視点からすればはやはり無視できる）。色収差に関してはこれが 1 次収差であることより、収差の倍率による圧縮率も高次収差ほどではなくなる。R005 の設計において式(5-4)を満たすためには、CL および倍率調整レンズの色収差の物面換算値は無視できなくなる。さらに、照射系コレクター、CM1,CM2,OM1,OM2,結像系コレクターの色収差、すべてを含めて、照射側収差補正系、および、結像側収差補正系の色収差係数の総和は、各 0.25mm 以内とする必要がある。

一般にいう色収差係数とは式(2-4)に示したように、エネルギー変化をレンズの焦点ズレに換算する係数である。具体的には、色収差係数とは 1 次回転対称収差のエネルギー微分係数に、設定エネルギーを乗じた値である。弱いレンズ x （対物レンズ以外のレンズ）の焦点距離 f_x は実用に十分な近似で以下のように与えられる。

$$f_x = \frac{8mU^*}{e \int B^2(z)dz} \quad (5-5)$$

これより、弱いレンズの色収差係数 C_{c_x} は、

$$\begin{aligned} C_{c_x} &= U^*(\Delta f/\Delta U^*) \\ &= f_x \end{aligned} \quad (5-6)$$

すなわち、焦点距離と同じとなる。図 5-2 の照射側収差補正系の各レンズの焦点距離、物面からの倍率、色収差係数の物面換算値を表 5-2 に示す。

表 5-2 照射側収差補正系レンズの、焦点距離および色収差係数の物面換算値

焦点距離	倍率	色収差係数物面換算値	（全加算値）
$f_{CL} > 30 \text{ mm}$	40.0 以上	0.019 mm 以下	
$f_s = 30 \text{ mm}$	40.0	0.019 mm	
$f_L = 36 \text{ mm}$	40.0	0.023 mm	
$f_{CM1} = 30 \text{ mm}$	33.3	0.027 mm	
$f_{CM2} = 70 \text{ mm}$	33.3	0.063 mm	(0.151 mm 以下)

照射側収差補正光学系の物面換算色収差係数の全加算値 (0.151mm : 表 5-2) と対物レンズの色収差係数(1.25mm : 表 5-1)の和は 1.401m となり、式(5-4)の要求を満たしている。結像側収差補正光学系は、照射側と PCL 以外鏡面对称となっている。PCL に関しては、CL よりさらに長焦点の設定となっているため、結像側も照射側同様に式(5-4)の要求を満足する。

5.5 開発装置外観

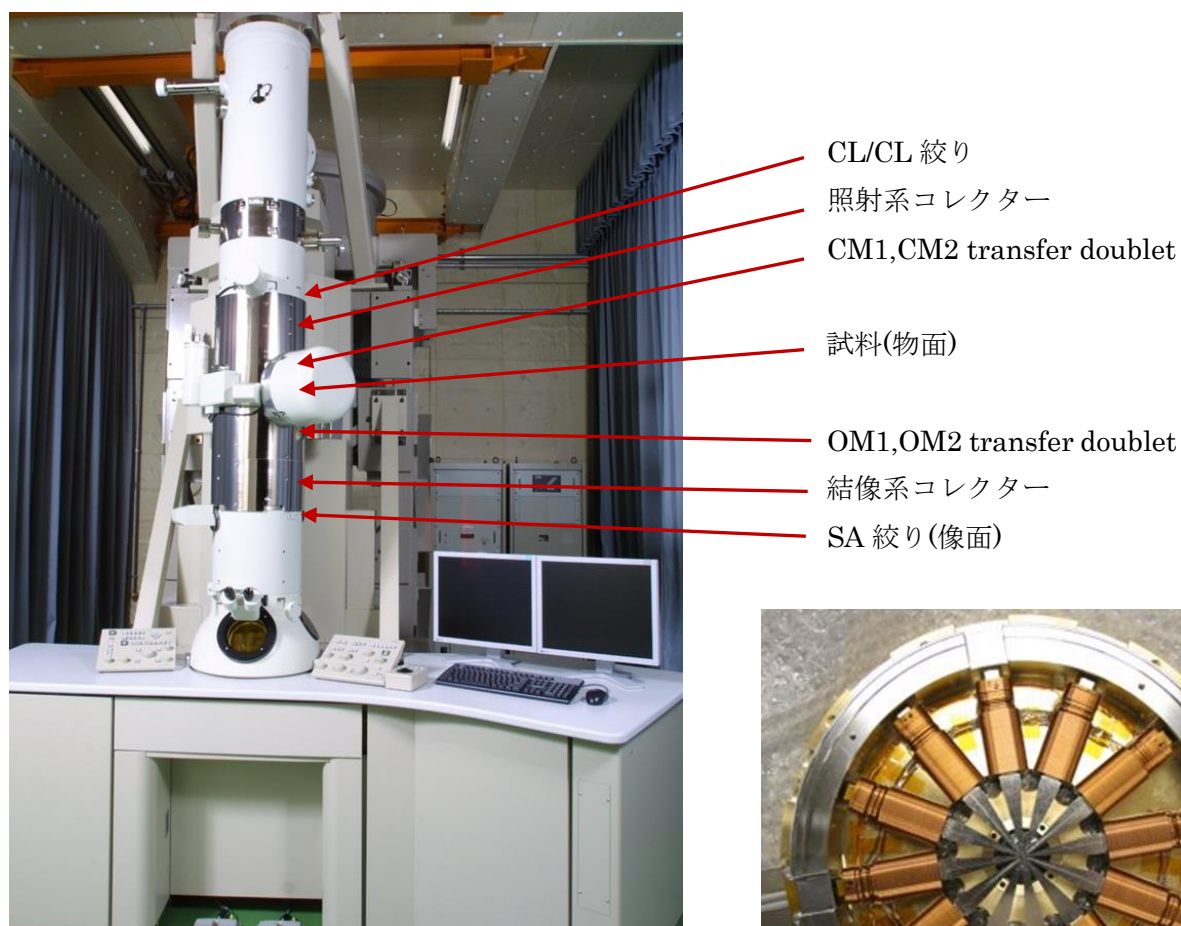


図 5-3 ROO5 300kV 収差補正電子顕微鏡



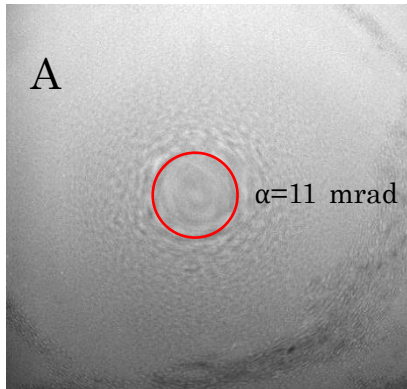
図 5-4 収差補正 12 極子

図 5-3 および図 5-4 に、開発制作した装置および 6 極場を生成する多極子の外観を示す。実際の装置では、12 極子を用いて、6 極場の強度と位相角を任意に設定できるようになっている。

5.6 Ronchigram による照射光学系の評価

R005 プロジェクトにて開発した照射系コレクターの収差補正動作を、Ronchigram [9]を観察し、残収差の影響範囲を調べることで確認した。Ronchigram とは、十分薄いアモルファス試料上に電子プローブを照射形成したとき、回折面に現れる shadow image のことである。球面収差が補正されていない電子顕微鏡では、Ronchigram の中心近傍に一樣なコントラストをもつ円形領域が現れる。円形領域におけるコントラストの一樣性は、この領域においては球面収差などによる位相攪乱が現れていないことを示しており[10]、位相攪乱のない領域に照射絞りを挿入することで、位相のそろった状態でのビームが形成される。Ronchigram の一樣領域の視覚的な評価は、定性的な目安ではあるが、これにより収差の有無を直感的に判断できる簡便かつ実践的な手法である。高分解能 STEM 観察の際、ほとんどすべての場合において、その場で Ronchigram を確認しつつ照射絞りを選択するという手法がとられている。

図 5-5 に Ronchigram による照射系コレクターの動作確認を示す。図 5-5 A は、収差補正を行っていない状態で得られた Ronchigram である。R005 の対物レンズの球面収差係数は 0.72 mm であり、Ronchigram に現れる一樣領域の半径は 11 mrad 程度である。図 5-5 B は照射系コレクターを動作させて、球面収差を補正した状態で得られた Ronchigram である。収差が補正されたことにより、Ronchigram に現れる一樣領域は半径 42 mrad 程度まで広がっている。一樣領域の外側に見られる 6 回対称の模様は、5 次 6 回対称の収差によるものであり、表 3-3 に挙げた 6 回非点(A_6)によりこの領域が位相攪乱を受けていることを表している。6 回非点は、式(3-36)に見られるように、6 回対称のポテンシャルのプライマリー効果であるが、6 極子コレクターの動作においてに現れる場合は、式(4-34)に示したように、6 極場によるコンビネーションアベレーションであると考えられる。6 極子コレクターにおいて、図 5-5 B に見られるように、6 回非点が顕著に表れる場合は、5 次までの他の残収差がすべて補正されている証明といえる。図 5-5 C に multi-slice シミュレーション [11] により $A_6=0.25 \text{ mm}$, $df = -5 \text{ nm}$ にて計算したアモルファスカーボン膜 (2 nm 厚さ) の Ronchigram を示す。C に示すシミュレーションは、B の実験像をよく再現しており、これにより収差補正動作の成功が確認できる。 A_6 以外に、他の残収差がある場合は Ronchigram は 6 回対称とはならず複雑な形状となる[12]。



- A : コレクター動作なし($C_s = 0.72\text{mm}$)
- B : 照射系コレクターによる収差補正
- C : Multi-slice 法による Ronchigram シミュレーション。計算条件 : 300kV , $C_s = 0.003\text{ mm}$, $df = -5\text{ nm}$, $A_6 = 0.25\text{mm} / 20\text{ degree}$)

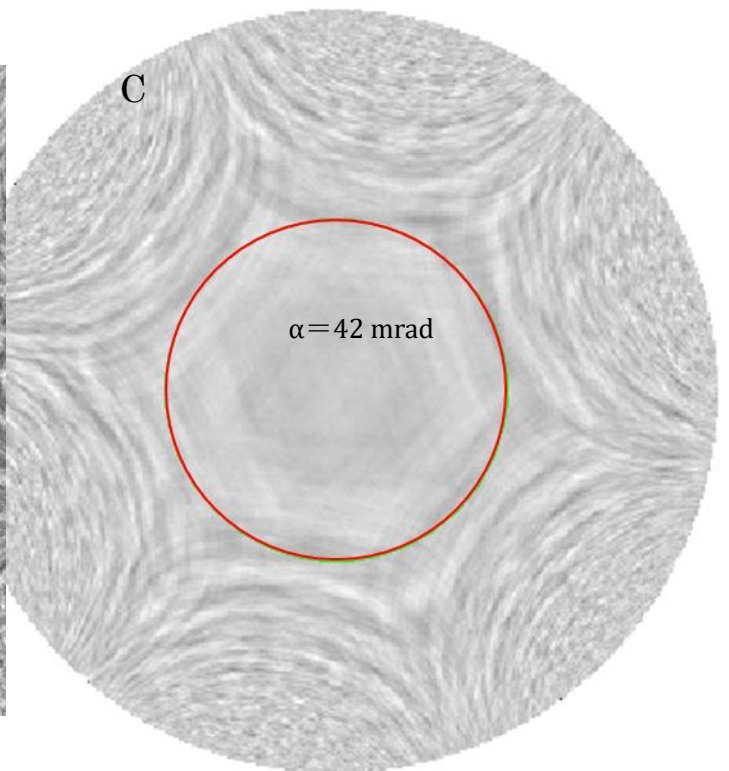
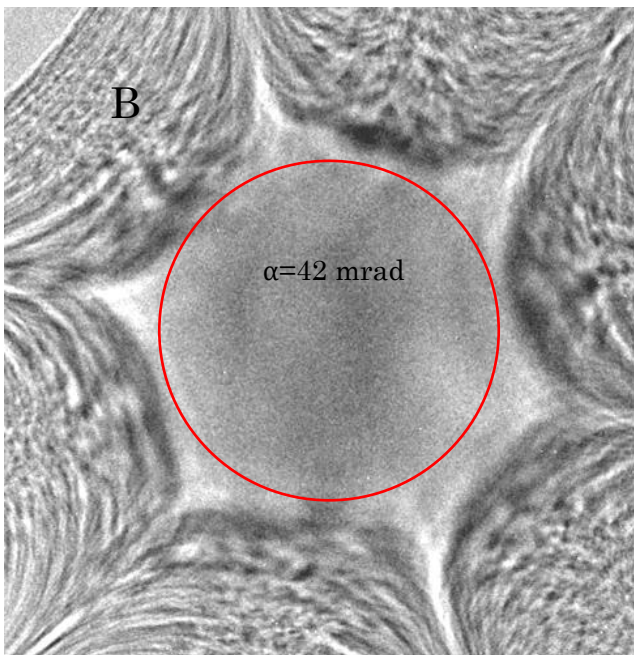
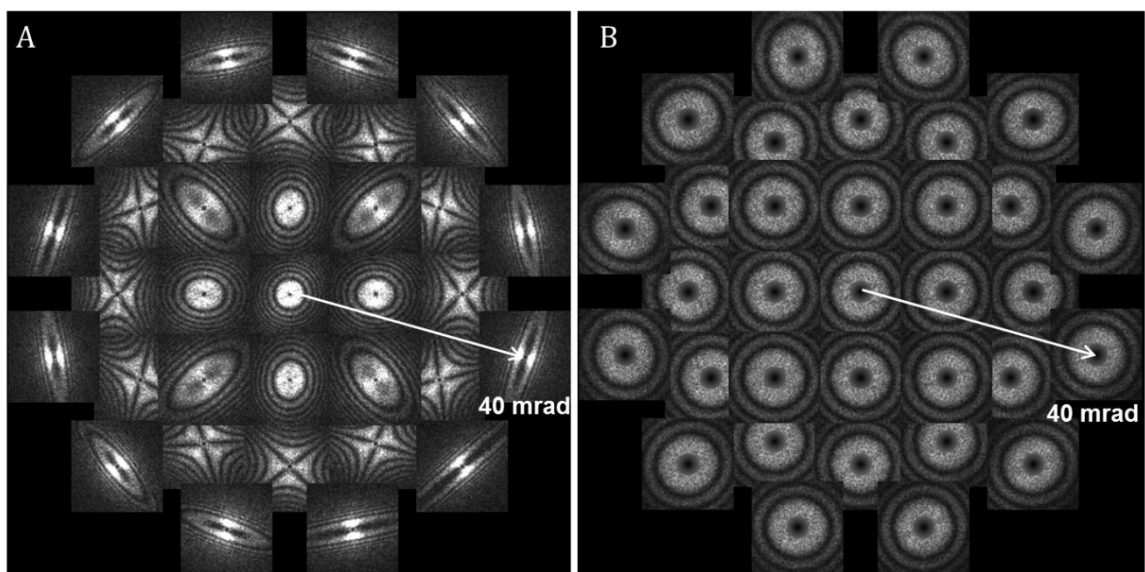


図 5-5 Ronchigram による R005 照射系コレクターの動作確認

6 極子コレクターには、その物理形状に対する内在的な定数項として生成される A_6 がある [13]。このことは式(4-34)に示されている。R005 に装備した 6 極子コレクターの A_6 は、収束半角 α が 42 mrad 以内に Ronchigram で確認できる程の位相攪乱の干渉は無いことが図 5-5 B で確認された。 α が 42 mrad であるプローブ形成の場合、式(2-1)より得られる回折収差(D/2)は 0.029 nm となり、R005 の目標分解能 (0.05 nm) の制限とはなっていない。 A_6 の補正が重要となってくるのは、低加速電圧の電子顕微鏡(～60kV 以下)において分解能 0.1nm を得ようとする場合などである。 A_6 の補正は、これを単純に行うには、対物レンズの開口面に対して拡大率の上がっていない光学面で 12 極場を生成し、場の作用を A_6 と相殺させればよい。また、6 極場コレクターを 3 段並べて、3 lobe と 3 回非点のコンビネーションにて補正する方法も考案されている[14]。

5.7 Zemlin tableau による結像光学系の評価

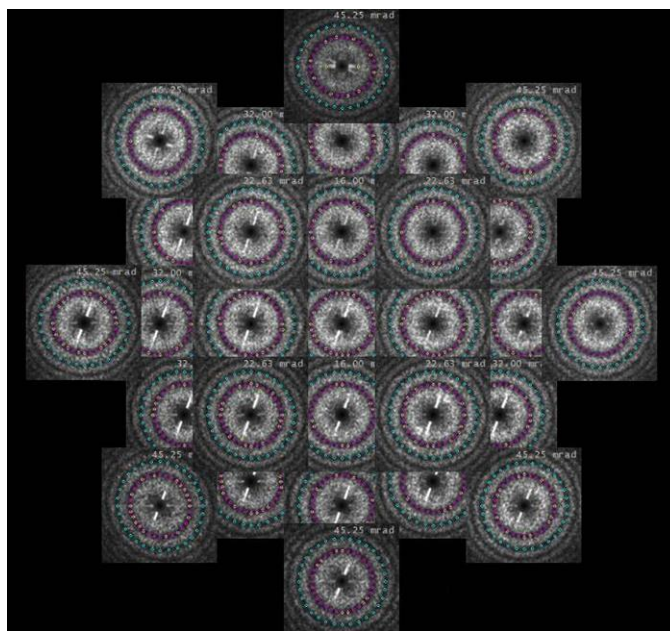
R005 結像系コレクターの収差補正動作は、Zemlin tableau [2]を解析し、残収差の影響範囲を調べることで確認した。Zemlin tableau とは十分薄いアモルファス試料を用いて、電子線の試料に対する入射角をコーン状に変化させて得られる diffractogram のセットのことである。この手法は、もともとは奇数次の波面収差を測定するために考案されたものである。1 枚の diffractogram に現れる情報は、一般には像に含まれる偶数次の波面収差のみであるため、3 回非点、コマなどの測定は 1 枚の diffractogram からは不可能とされている。一方、奇数次の波面収差は、電子線の入射方向に傾斜を与えると、傾斜角と傾斜方向をパラメータとして、偶数次の波面収差に転化し diffractogram に現れるようになる。転化し現れる偶数次波面収差の大きさと向きは、元の奇数次の波面収差と傾斜パラメータから解析的に計算できる[15]。また、偶数次波面収差についても電子線の傾斜により、他の偶数次収差への同様な転化が起こる。したがってこれらの性質を利用して、実際に得られた Zemlin tableau の偶数次収差のセットを最小二乗法により解析すれば、現状の光学系の収差測定が行える[16]。図 5-6 に、Zemlin tableau による結像系コレクターの動作確認を示す。図 5-6 A は、収差補正を行っていない状態で得られた Zemlin tableau である。R005 の対物レンズの球面収差係数 (0.72 mm) により、tableau 中心に配置された diffractogram から、ビーム傾斜によって、2 回非点(A_2)、およびデフォーカス(df)が急激に導入され、diffractogram の形状が変化する様子が明確に表れている。図 5-6 B に示すように、結像系の収差が補正されたことにより、diffractogram はビーム傾斜 40 mrad 程度まで明確な変化は起きていない。すべての収差がゼロの完全なレンズでは、diffractogram はビーム傾斜に対してどのような変化も起きないが、球面収差補正後の残収差により、図 5-6 B においてもわずかな diffractogram の形状変化が認められる。図 5-7 に Zemlin tableau のわずかな diffractogram の形状変化の解析により、残収差を計算した結果を示す。



収差補正動作なし($C_s = 0.72 \text{ mm}$)

結像系コレクターによる収差補正($C_s = -5 \mu\text{m}$)

図 5-6 Zemlin tableau による R005 結像系コレクターの動作確認



収差係数 測定値

df	-432.27 [nm]	
A ₂	3.378 [nm]	-54.14 degree
P ₃	87.69 [nm]	66.06 degree
A ₃	56.892 [nm]	46.76 degree
C _s	-5.042 [μm]	
S ₄	0.793 [μm]	-82.89 degree
A ₄	0.553 [μm]	20.54 degree
P ₅	38.056 [μm]	-141.36 degree
R ₅	29.535 [μm]	23.05 degree
A ₅	36.817 [μm]	-29.91 degree
C ₅	0.774 [mm]	
A ₆	0.611 [mm]	0.24 degree

図 5-7 収差補正後の残収差解析

Tableau の各位置に配置された diffractogram の、それぞれの A2 と df の値と各位置が持

つ傾斜パラメータより、残収差が計算される。結果は diffractogram の右に示してある。球面収差は対物レンズの元の値である 0.72mm から -0.005mm まで補正されている。

5.8 HAADF 像による $0.47\text{\AA}$ 分解能の確認

図 5-5 の Ronchigram に見られるように、照射半角 40mrad 以内においては、収差による位相攪乱を受けずに電子プローブが試料上に形成されることになる。したがって、図 5-2 のシミュレーション結果より、 $0.5\text{\AA}$ の HAADF 分解能を得るための、収差補正条件が達成できたといえる。電子顕微鏡の分解能は、原子一個分を見分けるほどの微細領域にあるため、光学素子の駆動における技術的な安定度、外乱電磁場、振動等の外部環境が非常に重要となる。それゆえ、補正光学系にて収差条件を整えることは、分解能達成の第一歩程度に考えるべきであるが、ともあれ、 $0.5\text{\AA}$ の分解能達成のためのもっとも重要な核心部分はクリアされた。 $0.5\text{\AA}$ の分解能を確認するには、そのような原子間距離をもつ結晶は今のところ存在しないので、投影距離がそのような短距離となる結晶方位を用いることになる。Ge の単結晶（立方晶：ダイヤモンド型構造、 $a=5.675\text{\AA}$ ）の $[114]$ 方位からの投影原子間距離は $0.47\text{\AA}$ のものが存在するので、これを解像できるか否かで、 $0.5\text{\AA}$ の分解能が確認できる。Ge 単結晶の $[114]$ 方位から見た、Ge 原子の投影像を図 5-8 に示す。

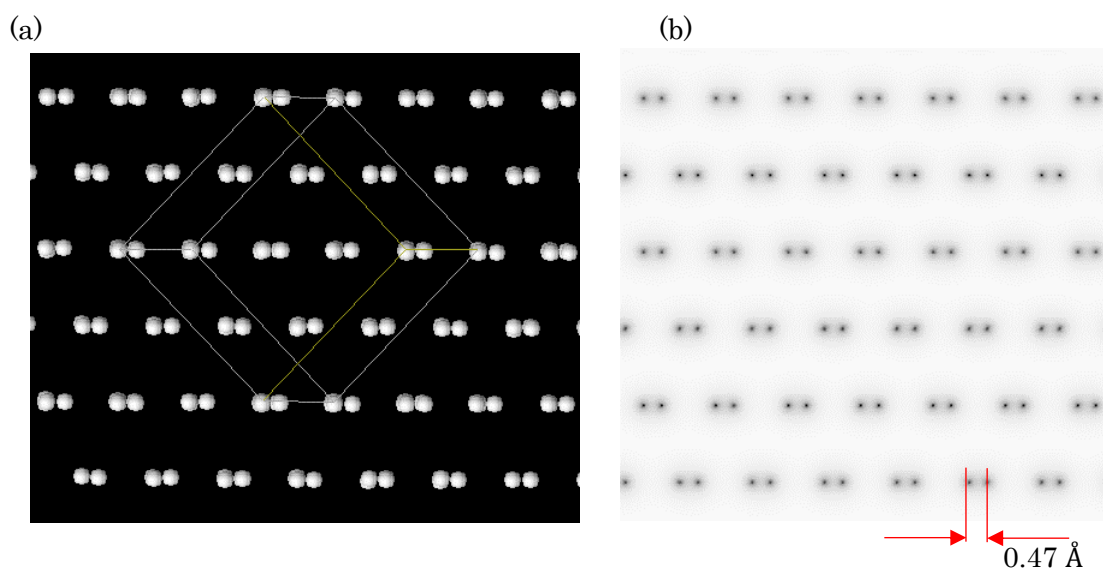
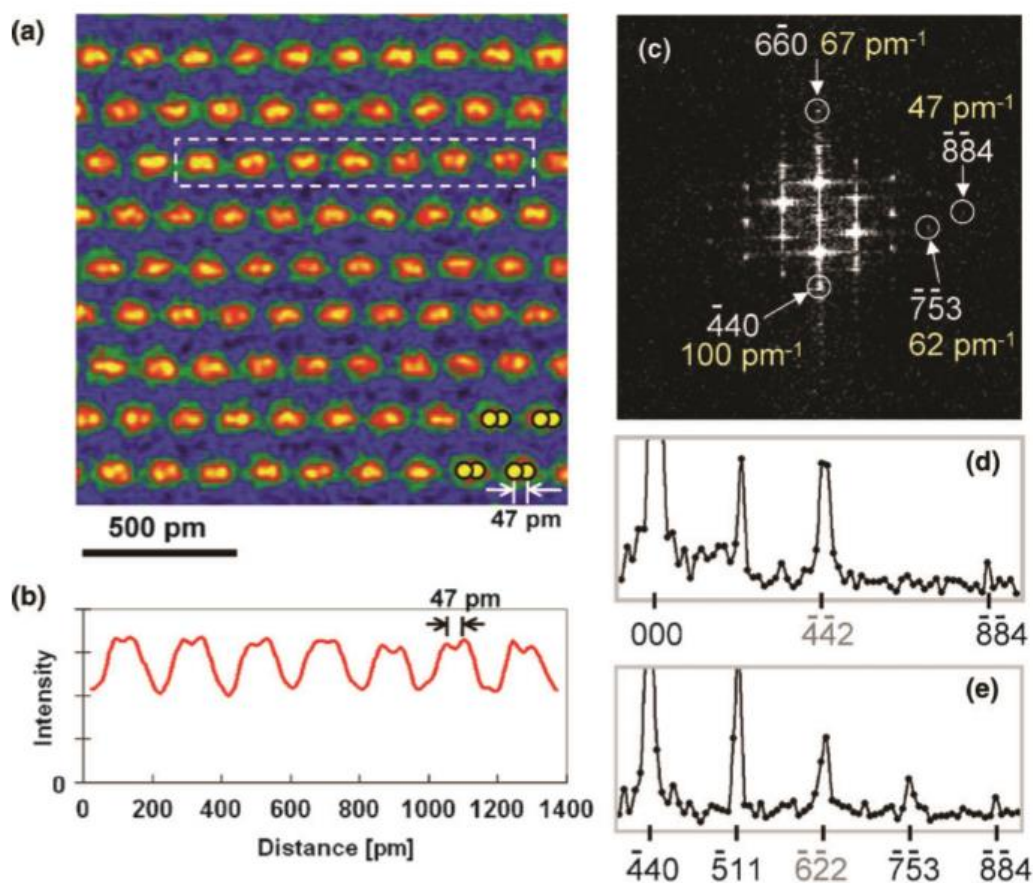


図 5-8 Ge 単結晶の $[114]$ の投影像 (a) 疑似原子による構造モデル枠線はユニットセルを表す、(b) 投影原子散乱因子より計算した投影 potential (原子核による正 potential を黒とした)。

図 5-9 に収差補正 STEM で撮影した、Ge 単結晶の[114]方位の HAADF 像を示す。



(H. Sawada, F. Hosokawa et al., Journal of Electron Microscopy 58 (2009))

図 5-9 HAADF STEM 像による $0.47 \text{ \AA}$ 分解能の確認 (a) 疑似カラー像、(b) 像強度のラインプロファイル(領域は a に表示された破線内部)、(c) HAADF 像のパワースペクトル、(d), (e) パワースペクトルのラインプロファイル

図 5-9 では、(a) HAADF 像、(b) HAADF 像のラインプロファイル、(c) HAADF 像のパワースペクトル、(d) (e) パワースペクトルのラインプロファイル、これらすべてにおいて、 $0.47 \text{ \AA}$ の投影原子間距離の解像が確認できている。これにより、CREST プロジェクトの目的である、国産の新規技術を用いた世界最高 $0.5 \text{ \AA}$ 分解能を持つ電子顕微鏡の開発が達成された [17]。

5.9 5章のまとめ

本研究による成果として、非対称 2 段 6 極子の球面収差補正装置が設計された推移は 3 章および 4 章に述べた。この国産初の収差補正装置を CREST プロジェクト R005 における 300kV 透過電子顕微鏡に組み込み、収差補正動作の確認実験を行った。その結果、非対称 2 段 6 極子を用いた球面収差補正装置により、結像系および照射系ともに、球面収差を含む残収差の値が、40mrad 以上の開口半角内において十分補正されていることが、Zemlin tableau および Ronchigram により確認できた。到達分解能として、Ge 結晶の原子列を [114] 方位に投影して現れる、0.47Å の原子間距離が HAADF 像により確認できた。

参考文献

- [1] 谷城康眞、近藤行人、高柳邦夫、国産球面収差補正電子顕微鏡 R005 の開発、*Journal of the Vacuum Society of Japan* 51, 714-718 (2008)
- [2] F. Zemlin, K. Weiss, P. Schiske, W. Kunath and K.-H. Herrmann, Coma-free alignment of high resolution electron microscopes with the aid of optical diffractograms, *Ultramicroscopy* 3, 49-60 (1978).
- [3] M. Haider, S. Uhlemann and J. Zach, Upper limits for the residual aberrations of a high resolution aberration-corrected STEM, *Ultramicroscopy* 81, 163-175 (2000).
- [4] 細川史生、JP 4851268 B2 (2012.01.11)
- [5] W. Glaser, On the Aberration Theory of the Electron Microscope, *Zeitschrift fur Physik* 97, 177-201 (1935).
- [6] 裏克己、電子・イオンビーム光学、共立出版 (1994)
- [7] P. W. Hawkes, *Magnetic Electron Lenses*, Springer (1982), Berlin Heidelberg
- [8] P. Hartel, H. Rose and C. Dinges, Condition and reason for incoherent imaging in STEM, *Ultramicroscopy* 63, 93-114 (1996).
- [9] V. Ronchi, Forty years of history of a grating interferometer, *Appl. Optics* 3, 437-450 (1964).
- [10] J. M. Cowley, Electron Diffraction Phenomena Observed With a High Resolution STEM Instrument, *Journal of Electron Microscopy Technique* 3, 25-44 (1986).
- [11] E. J. Kirkland, *Advanced Computing in Electron Microscopy*, Plenum Press (1998), New York
- [12] H. Sawada, T. Sannomiya, F. Hosokawa, T. Nakamichi, T. Kaneyama, T. Tomita, Y. Kondo, T. Tanaka, Y. Oshima, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, Measurement method of aberration from Ronchigram by autocorrelation function, *Ultramicroscopy* 108, 1467-1475 (2008).
- [13] H. Sawada, T. Sasaki, F. Hosokawa, S. Yuasa, M. Terao, M. Kawazoe, T. Nakamichi, T. Kaneyama, Y. Kondo, K. Kimoto and K. Suenaga, Correction of higher order geometrical aberration by triple 3-fold astigmatism field, *Journal of Electron Microscopy* 58, 341-347 (2009).
- [14] H. Sawada, T. Sasaki, F. Hosokawa, S. Yuasa, M. Terao, M. Kawazoe, T. Nakamichi, T. Kaneyama, Y. Kondo, K. Kimoto and K. Suenaga, Higher-order aberration corrector for an image-forming system in a transmission electron microscope, *Ultramicroscopy* 110, 958-961 (2010).
- [15] T. Sannomiya, H. Sawada, T. Nakamichi, F. Hosokawa, Y. Nakamura, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, Determination of aberration center of Ronchigram for automated aberration correctors in scanning transmission electron microscopy, *Ultramicroscopy* 135, 71-79 (2013).
- [16] 細川史生、ディフラクトグラムによる TEM オートチューニング、*電子顕微鏡* 36, 115-117 (2001).

- [17] K. Takayanagi, Y. Oshima, T. Tanishiro, H. Sawada, F. Hosokawa, T. Tomita, T. Kaneyama and Y. Kondo, Lithium Atom Microscopy at Sub-50pm Resolution by R005, Jeol News 45, 2-7 (2010).

6. 電磁場重畳 4 極子による色収差補正

6.1 序論

本章の目的は、色収差補正の新たな原理を考案しこれを実証することである。

6.1.1 電磁場重畳 4 極場

レンズの色収差により、結像電子のエネルギー分布は像面でのデフォーカス分布となる[1]。デフォーカスの分布は像に畳み込まれ、解像度は劣化する。レンズの開口収差が、第 5 章で述べたような収差補正装置で十分に補正された場合、色収差または各種の安定度が次の解像限界を決める要因となる[2]。電気的および機械的な各種安定度は、装置制作に関する技術の進歩で確実に改善されるものである。開口収差補正後のさらなる高分解能達成のためには、色収差の補正に関する光学原理と技術の確立が不可欠である。式(2-4)に示したように、色収差によるデフォーカスの分布幅は、加速電圧に対する電子のエネルギー分布の比に比例するので、加速電圧が 100kV 以下の電子顕微鏡で解像度を上げるには、特に色収差の補正が重要となってくる。色収差を補正するには、開口面にレンズ作用と同じ次数で作用方向が逆の力を働かせる必要がある。すなわち、1 次の収束作用であるレンズに対して、補正素子は 1 次の発散力をもつものでなければならない。このとき、作用力としてはレンズの収束力が補正の発散力より勝っていなければならない。収束力により本来のレンズ作用が達成される。つまり開口面もしくはそれと等価な面で 1 次の発散力を持つ素子を用意し、補正光学系と対物レンズが通常の結像光学系として働く状態で、その光学系のエネルギーに対する結像面での、軌道分散をゼロにすることが色収差の補正である。このような色収差補正を、多極子を用いて達成するには、以下の 3 条件を持つ光学系が必要である。

1. 1 次の発散力（軸から遠ざかる力）をもつこと
2. 補正系の発散力の分散が、対物レンズの収束力の分散より大きいこと
3. スチグマチックな結像が可能な光学系であること (x, y に関して等方的結像条件[3])

任意のポテンシャルのフーリエ級数展開により、収差の次数と対称性の満たすべき関係は 3.3 節にて議論した。表 3-3 にまとめたその結果より、1 次の発散力を持つ収差は、4 極場による 2 回非点のみである。また、伝播距離をへだてた 2 つのポテンシャルにて、見かけ上現れる力の次数と対称性の議論は、3.6 節にて行った。その結果は式 (3-57) に表れている。式(3-57)において、 $m_1=m_2=2$ 、 $n_1=n_2=0$ 、とすると、1 次の発散力をもつ回転対称収差、すなわち凹レンズが、コンビネーションアベレーションとして現れる。したがって、4 極場

のプライマリー効果、または、4 極場間のコンビネーションアベレーションにより、上記の条件 1 はクリアできる。4 極場のプライマリー効果を用いる場合は、2 回非点の発散力のみ利用し、収束力の影響を受けない光学系を作成することになる。このことは、色収差の補正面が、 x 方向の軌道と y 方向の軌道で異なることになることを示唆している。一方、4 極場間のコンビネーションアベレーション（見かけ上の凹レンズ）を利用する場合、色収差補正効果の回転対称性が保証されているので、すべての軌道に対して、1 つの色収差補正面が定義可能となる。

以上までの議論より、多極子を用いる色収差補正における条件 1 を満たすには、4 極場のプライマリー効果、またはコンビネーション効果のどちらかを用いればよい。条件 2 の分散力に関しては以下の工夫をすればよい。すなわち、電場による 4 極場と磁場による 4 極場を同時に用意し、この 2 つの 4 極場の電子に与える力の向きが、互いに逆になるようにする。これにより、電子に働く力（4 極場の強さ）が、電場と磁場の強さの差分として調整できるようになる。クーロン力とローレンツ力は、それぞれエネルギーの微分係数が異なるので、電磁場重畳 4 極場の場合、その電子軌道のエネルギーによる分散は、電場と磁場の差分を保ったまま絶対値を変更することで任意に調整できる。したがって、電磁場重畳の 4 極場を用いることで、条件 2 を満たすことができる。

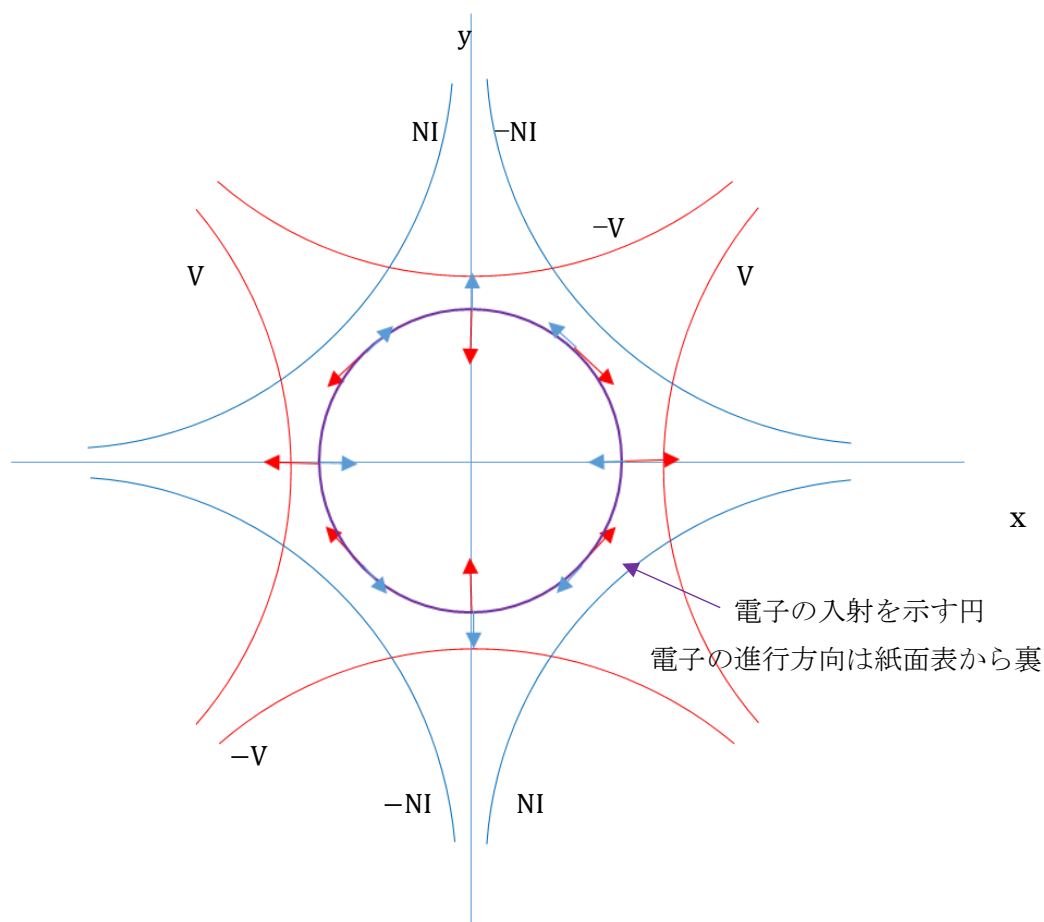


図 6-1 電磁場重畳 4 極場のポテンシャル配置（電位 V , 磁位 NI , $\theta_E=0$, $\theta_B=-\pi/4$ ）

電磁場重畳 4 極場を図 6-1 に示す。図 6-1 の 4 極電場 ($V, -V$ の等ポテンシャル線を赤で表示) と 4 極磁場 ($NI, -NI$ の等ポテンシャル線を青で表示) は、それぞれの位相角が、 $\theta_E=0$ および $\theta_B=-\pi/4$ として、 $\pi/4$ 異なって配置されている。 NI および V が正の値で与えられた場合、図での例として円周上に入射する電子が受ける力は、電場と磁場に関して互いに反対方向に働く。図では、 V が正の値の場合、 x の正軸上に入射電子が受ける力が x 軸の正方向に働く位相角で配置してある。このように、電磁ポテンシャルが配置された開口面において、電子の入射位置を複素角座標 ω として、開口面にて与えられる電子の軌道変化の z 微分 ω'' は、ローレンツ力とクーロン力による軌道変化より、以下のように表される。(複素角座標 ω : ω は光軸上のどこかにある結像点から、開口面の座標を見た角度成分とする。したがって ω は無次元量である。実際の設計にあたって、 ω を長さ次元に戻す必要のある時は、設計する系の対物レンズの焦点距離 f を乗ずる。)

$$\omega'' = C \omega^* \quad (6-1)$$

$$C = \frac{fV}{Ub^2} \left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right) \exp(2i\theta_E) + \sqrt{\frac{e}{2mU(1+\gamma U)}} \frac{2f\mu_0 NI}{b^2} \exp(2i(\theta_B - \pi/4))$$

$$= C_E + C_B \quad (6-2)$$

ここで、 C は式(4-19)と同様に定義される 4 極場のプライマリー効果の強さ、 f は対物レンズの焦点距離、 V および NI は、それぞれ、電極の電位および磁極の磁位 (起磁力、number of ampere turns)、 b は電極および磁極のボア半径、 θ_E および θ_B は、電場および磁場の位相角である。 C_E および C_B は、それぞれ、 C の電場成分および磁場成分を表す。加速電圧 U の微小変化に対する C の変化分が、このような電磁場重畳 4 極場のエネルギーに対する分散となる。また、4 極場の強さは C の値そのものであるので、 V と NI の組みあわせを適当に変えることで、 C と C のエネルギーに対する分散を、それぞれ任意に設定できる。

6.1.2 Scherzer による 4 段 4 極場による色収差補正

色収差の補正光学系は、1947 年 Scherzer [4] により初めて提唱された。Scherzer の補正光学系は、2 段の円筒レンズ (cylinder lens) を用いたものであったが、円筒レンズのポテンシャルの一部は、本研究でいう 4 極場のプライマリー効果を生成するものである。Scherzer の光学系を単純化すると、4 段 4 極場で構成された光学系となることが 1954 年 Archard [5] により示された。Scherzer-Archard による 4 段 4 極場での色収差補正の光学系を図 6-2 に示す。4 段 4 極場での色収差補正は、本来プローブ形成における色収差補正系として考案されたものであり、これを結像系に用いられた報告はなされていない。

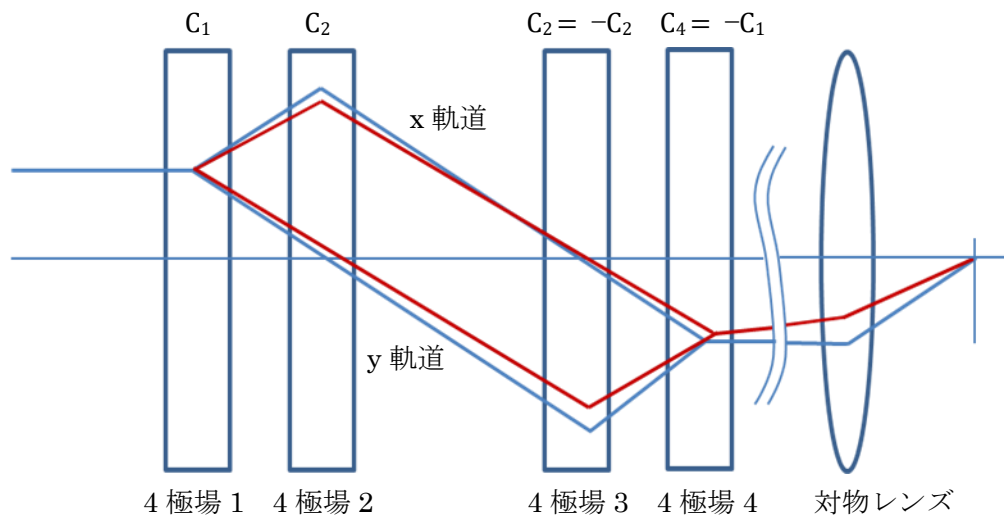


図 6-2 Scherzer-Archard の 4 段 4 極場の色収差補正光学系

図 6-2 の色収差補正光学系の働きを、図 6-1 の入射円にて示すような、平行電子ビームが入射する場合について以下に説明する。図における電子の軌道は、通常の加速エネルギーを青いライン、正のエネルギー Spredd による色収差軌道を赤いラインで示してある。

4 極場 1 :

プライマリー効果を C_1 とし、 x 軸方向の軌道に発散力、 y 軸方向の軌道に収束力が働くように設定する。4 極場 1 の目的は、 y 軸方向の軌道を 4 極場 2 の作用面において軸と交わるように偏向することである。4 極場の性質により x 軸方向の軌道は軸から遠ざかることになる。回転対称の入射電子ビームは 4 極場の特性により、図 3-4 D に示すようにライン状のビームとなる。4 極場 1 の働きは、このように 4 極場 2 の作用面でビームをラインフォーカスすることである。この場合、 C_1 のエネルギーによる分散力は特に必要ではないので、 C_1 は電場または磁場のどちらか一方で構成すれば十分である。

4 極場 2 (x 成分の色収差補正) :

プライマリー効果を C_2 とし、 x 軸方向の軌道に収束力が働くように設定する。このとき、 C_2 を構成する磁場 C_{2B} および電場 C_{2E} により、 x 軸方向の軌道に対して、それぞれ収束力および発散力が働くようにする。式(6-2)により、 C_2 を必要な値に保ちつつ C_{2B} および C_{2E} の値を適当に選択することで、加速電圧に対する C_2 の微分係数を負とすることが可能となる。 C_2 の微分係数が負となることで、軌道の x 成分に負の色収差が導入される。4 極場 2 の作用面では、4 極場 1 の作用によりビームが x 軸上にラインフォーカスされている。このため、4 極場 2 の作用は x 軸上の作用のみを考慮すればよい C_2 の強さは 4 極場 3 の作用面におい

て、 x 軌道が軸と交わるように設定される。 y 軌道は 4 極場 3 の作用面において最も遠ざかった軌道となる。すなわち、 y 軸上に、図 3-4 D に示すようなライン状のビームが形成される。

4 極場 3 (y 成分の色収差補正) :

プライマリー効果を C_3 とし、 y 軸方向の軌道に収束力が働くように設定する。このとき、 C_3 を構成する磁場 C_{3B} および電場 C_{3E} により、 y 軸方向の軌道に対して、それぞれ収束力および発散力が働くようにする。式(6-2)により、 C_3 を必要な値に保ちつつ C_{3B} および C_{3E} の値を適当に選択することで、加速電圧に対する C_3 の微分係数を負とすることが可能となる。 C_3 の微分係数が負となることで、軌道の y 成分に負の色収差が導入される。4 極場 3 の作用面では、4 極場 3 の作用によりビームが y 軸上にラインフォーカスされている。このため、4 極場 3 の作用は y 軸上の作用のみを考慮すればよい。 C_3 の強さは C_2 と同じとし、位相角について C_2 と $\pi/2$ 異なるようにする。強さが同じで位相角が $\pi/2$ 異なる設定により、 $C_3 = -C_2$ の関係となる。

4 極場 4 :

プライマリー効果を C_4 とし、 x 軸方向の軌道に収束力、 y 軸方向の軌道に発散力が働くように設定する。4 極場 4 の目的は、4 極場 1 にて導入された 2 回非点を補正することである。 C_4 の強さは C_1 と同じとし、位相角について C_1 と $\pi/2$ 異なるようにする。強さが同じで位相角が $\pi/2$ 異なる設定により、 $C_4 = -C_1$ の関係となる。

図 6-2 の光学系により、軌道の x 成分は電磁場重畳 4 極場 C_2 により、また軌道の y 成分は電磁場重畳 4 極場 C_3 により、それぞれ負の色収差が導入される。導入される色収差係数の大きさは式(6-3)の C_E の成分比を変えることで C_B 制御できるので、対物レンズの色収差係数を打ち消す大きさに設定できる。このとき $C_E + C_B$ の和を変えなければ、図 6-2 の軌道は変わらない。4 段 4 極場は、多極子を用いたレンズの色収差補正光学系に必要な条件に必要な、スチグマチックな結像が可能な光学系であること (**stigmatic condition**) が知られている [3]。3 段の 4 極場でも、色収差の補正は可能である。しかし、3 段 4 極場では x 方向と y 方向の結像点を一致させることはできても、 x 方向と y 方向の倍率が異なる。4 極場を単純に連結して **stigmatic condition** を満たすためには、4 段以上の 4 極場の構成が必要とされている。4 段 4 極場による色収差補正は、電磁場重畳の 4 極場のプライマリー効果を利用した補正方法である。プライマリー効果は 2 回対称の力を生成するので、レンズの回転対称な色収差を補正するには、入射軌道を 4 極場 1 により x 軌道、および y 軌道に分けて、4 極場 2 および 4 極場 3 にて軌道成分ごとに色収差を補正することになる。

6.2 2 段 4 極子と transfer doublet による色収差補正

6.2.1 概要

レンズの色収差の補正には、1 次の発散力がどうしても必要である。多極子でこれを生成するには 4 極場以外にあり得ない。このことは、3.3 節で議論したポテンシャル場のフーリエ級数展開による次数と対称性の関係で、証明されている。前節の 4 段 4 極場は、4 極場のプライマリー効果を色収差補正に利用した例である。さらに、多段化した複雑な色収差補正系も Rose[6]により考案されているが、プライマリー効果を用いるという点で同じ原理による補正といえる。プライマリー効果を用いるかぎり、補正力の導入面は、x、y 軌道個別に設定されるので、これらを同時に、対物レンズの収差導入面（開口面）に一致させることは不可能である。

本研究の成果として、3.6 節にまとめたように、コンビネーションアベレーションという概念が物理的に明確になり、また収差としての定量性を評価できるようになった。4 極場による 1 次力をコンビネーションアベレーションに適用すれば、式(3-57)により、1 次の回転対称な発散力となることがわかる。4 極場によるコンビネーションアベレーションを利用すれば、4 段 4 極場とは異なる原理で、レンズの色収差補正が可能である[7]。1 次の回転対称な発散力とはすなわち凹レンズであり、補正力の導入面として x 軌道および y 軌道に同時に作用する、色収差補正面が定義できる。図 6-3 に 2 段 4 極場と transfer doublet を用いた色収差補正光学系を示す。この光学系は、結像系の色収差補正のために考案したものであるが、4 段 4 極子との比較のため、図 6-3 は照射系の色収差補正系として作図した。

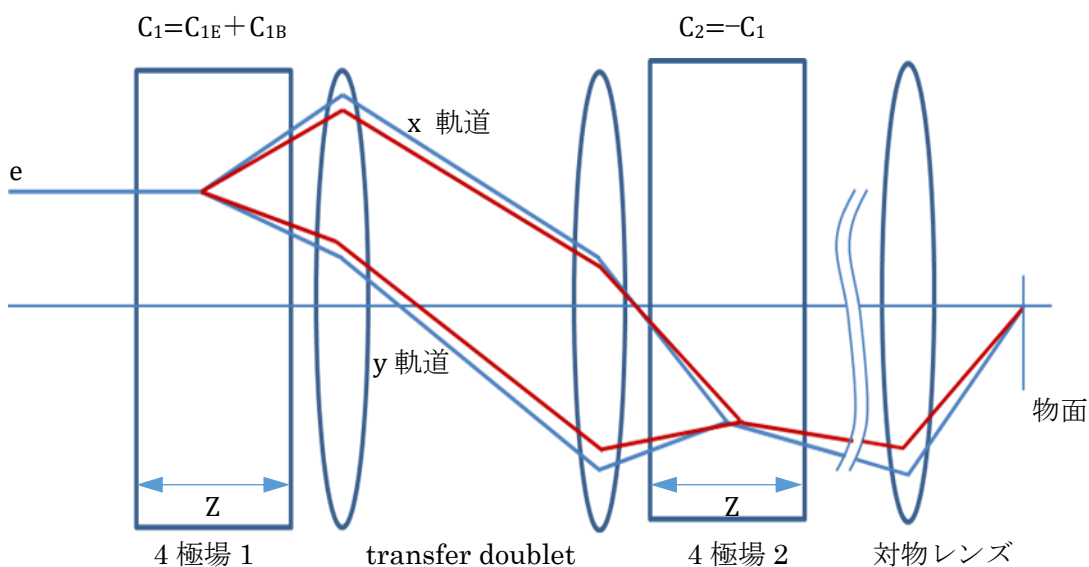


図 6-3 2 段 4 極場と transfer doublet による色収差補正光学系

図 6-3 の色収差補正光学系の働きを、図 6-1 の入射円にて示すような、平行電子ビームが入射する場合について以下に説明する。図における電子の軌道は、通常の加速エネルギーを青いライン、正のエネルギーブレッドによる色収差軌道を赤いラインで示してある。

4 極場 1 : (色収差補正)

電磁場重畳 4 極場 C_1 であり、電場 C_{1E} と磁場 C_{1B} による 4 極場が互いに打ち消しあい、かつ電場 C_{1E} が磁場 C_{1B} より若干勝る強度にて励起されている。4 極場 1 に十分な厚さ (z 方向の長さ) を持たすことで、内部での電子軌道の変化が起こり、これがコンビネーションアベレーションを励起する。コンビネーションアベレーションは、式 (3-57) により 1 次の回転対称な発散力をもつ、すなわち 4 極場 1 の内部で凹レンズが生成される。凹レンズの強度は C_1 にてきまり、 C_1 の加速電圧による微分係数は、 C_{1E} と C_{1B} の構成比を変えることで制御できる。すなわち、 C_1 により凹レンズの強度、 C_{1E} と C_{1B} の構成比により凹レンズの色収差係数を任意に決められる。4 極場 1 では、このように負の色収差係数を持った凹レンズが生成されるが、同時に本来の効果であるプライマリー成分 C_1 による 1 次 2 回対称収差 (2 回非点, A_2) が導入される。

Transfer doublet : (2 回非点相殺、および stigmatic condition 達成)

4 極場 1 と 4 極場 2 を完全共役関係にし、これらの 2 回非点を相殺させる。2 回非点の相殺は、前述の stigmatic condition を達成させることを含む。多段 4 極子では stigmatic condition を達成するには 4 段以上の 4 極子が必要とされていたが、これは 4 極子間の伝播距離 L が正であることが想定されている。Transfer doublet により L を適当な負の値に設定すれば、(6.2.4 節に証明するように) stigmatic condition は達成できる。

4 極場 2 : (色収差補正)

電磁場重畳 4 極場 C_2 であり、電場 C_{2E} と磁場 C_{2B} による 4 極場が互いに打ち消しあい、かつ電場 C_{2E} が磁場 C_{2B} より若干勝る強度にて励起されている。 C_2 に関して、強さ、および、電場 C_{2E} と磁場 C_{2B} の構成比は C_1 と同じとし、位相角について C_1 と $\pi/2$ 異なるようにする。強さが同じで位相角が $\pi/2$ 異なる設定により、 $C_3 = -C_2$ の関係すなわち、逆極性となる。Transfer doublet の働きにより、4 極場 2 と 4 極場 1 は光学的に共役な関係となつてるので、互いのプライマリー成分による 2 回非点は相殺される。一方回転対称な 1 次発散力は、4 極場 2 においても 4 極場 2 と同様に生成されるので、負の色収差を持つ凹レンズが励起される。

図 6-3 の光学系により、対物レンズに対して、負の色収差を持つ凹レンズが配置されることになる。凹レンズの強さと色収差係数は、それぞれ任意に制御できる。これにより、対物レンズの色収差が補正可能である。2 段 4 極場と transfer doublet による色収差補正光

学系は、30kV の低加速電子顕微鏡の結像系に組み込まれ、補正の成功がデータとともに報告された[7]。図 6-3 の 4 極場と、図 6-2 の 4 極場の違いは、その内部でのコンビネーションアベレーション効果が光学系として働くほど大きいことにある。そのためには、4 極場が z 方向に十分な厚みを持つかが要点となる。一般には 10 mm 以内の厚さの 4 極場においては、コンビネーション効果は無視できて、プライマリー効果のみを考慮すればよい。このような 4 極場は、電子顕微鏡の非点収差補正に用いられている。本研究によれば、4 極場の厚みが 20mm 程度でコンビネーションアベレーション効果があらわれ始め、40mm もあれば負の色収差が確認できると考えられる。

以上、厚みのある 2 段 4 極場と transfer doublet による色収差補正を定性的に説明した。次節以降において、4 極場のコンビネーション効果による凹レンズ項とそれを利用した色収差補正条件等を、定式化してゆく。

6.2.2 4 極場のコンビネーションアベレーションによる凹レンズ効果

ここでは色収差補正を念頭に置いているため、この目的に必要な 4 極場として、式(6-2)に述べた電磁場重畳の 4 極場を取り扱う。電磁場重畳の光学系の一般的な配置手法として、電場と磁場が電子に与える力が同一線上のベクトルとなる配置を設定し、実際においては、これらの力は打ち消しあう方向に作用させることとなる。この目的で、一般性を失わない表現として、式(6-2)における電場の位相角 θ_E および磁場の位相角 θ_B を、それぞれ、 $\theta_E=0$ 、 $\theta_B=\pi/4$ として議論する。 $\theta_E=0$ 、 $\theta_B=\pi/4$ として式 (6-1) は以下のようにになる。

$$C = \frac{V}{Ub^2} \left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right) + \sqrt{\frac{e}{2mU(1+\gamma U)}} \frac{2\mu_0 NI}{b^2} \quad (6-3)$$

軌道位置を複素座標 r 、その傾きを r' とすると、電磁場重畳 4 極場の軌道の微分方程式は、以下となる。

$$r'' = Cr^* \quad (6-4)$$

無次元の複素変数 ω および長さ次元の変換定数 f を用いて複素変数 r を書き換える。 f を対物レンズの焦点距離とすれば、 ω は開口角度座標となる。

$$r = f\omega \quad (6-5a)$$

$$r' = f\omega' \quad (6-5b)$$

運動方程式は以下のようにになる。

$$\begin{aligned}\omega'' &= \left(\frac{1}{f}r'\right)' = \frac{1}{f}Cf\omega^* \\ &= C\omega^*\end{aligned}\quad (6-6)$$

式(6-4)と式(6-6)が形式的に同一であるのは、式(6-4)が 1 次力による軌道変移であることによる。n 次力の軌道変移に対しては、式(6-6)には係数 $(1/f)^{n-1}$ が乗じられる。

ω_0 、および、 ω_0' を、軌道の初期値およびその z 微分として、4 極場内での軌道 $\omega(z)$ をテーラー級数に展開すると以下ようになる (式(4-17a)と同じ。 ω' は z による微分で得られる)。

$$\omega(z) = \omega_0 + \omega_0'z + \frac{1}{2}\omega_0''z^2 + \frac{1}{6}\omega_0'''z^3 + \frac{1}{24}\omega_0''''z^4 + \frac{1}{120}\omega_0'''''z^5 + \dots \frac{1}{n!}\omega_0^{(n)}z^n + \dots \quad (6-7)$$

クーロン力とローレンツ力による運動方程は式(6-6)としてすでに示したが、これは、まず初期条件に適用される。また、式(6-3)より $C = C^*$ であるが、ここでは式(6-2)の一般性を生かすことを考慮した表現とした。

$$\omega_0'' = C \omega_0^* \quad (6-8)$$

これを逐次微分してゆくことで、

$$\omega_0''' = C\omega_0'' \quad (6-9)$$

$$\omega_0'''' = CC^*\omega_0 \quad (6-10)$$

$$\omega_0^{(5)} = CC^*\omega_0' \quad (6-11)$$

$$\omega_0^{(6)} = C^2C^*\omega_0^* = CC^*\omega_0'' \quad (6-12)$$

式(6-12)には、式(6-8) の左辺が再帰的に現れており、以下順次、解析的な表現が可能となるが、これは、4 極場が 1 次力による軌道変移を与えることによる。式(6-9)～式(6-12)を、式(6-7)に適用すると、4 極場の軌道 $\omega(z)$ およびその z による微分である傾き $\omega'(z)$ が得られる。

$$\omega(z) = \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{z^{4n}}{(4n)!} C^n C^{*n} \omega_0 + \frac{z^{4n+1}}{(4n+1)!} C^n C^{*n} \omega_0' + \frac{z^{4n+2}}{(4n+2)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0^* + \frac{z^{4n+3}}{(4n+3)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0'^* \right] \quad (6-13)$$

$$\omega'(z) = \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{z^{4n+3}}{(4n+3)!} C^{n+1} C^{*n+1} \omega_0 + \frac{z^{4n}}{(4n)!} C^n C^{*n} \omega'_0 + \frac{z^{4n+1}}{(4n+1)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0^* + \frac{z^{4n+2}}{(4n+2)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0'^* \right] \quad (6-14)$$

ここで、電場 4 極子を用いていることに関して考慮すべき注意点がある。図 3-5 または図 6-2 において、入射電子のエネルギーが、式(3-2)により、入射座標に依存して異なることである。これにより、厳密には式(6-3)を書き換える必要があり、その結果、式(6-13)および式(6-14) に付加すべき収差軌道が現れる。この収差の効果は、電場 4 極子に付属する収差として 6.2.6 節で議論する。本節では、以下に式(6-13)および式(6-14)が表す収差について議論を続ける。

式(6-13)と式(6-14)により、光軸方向に十分な厚みを持った 4 極場を通過する電子の軌道の位置と傾きを知ることができる。これらの式において、括弧内の第 3 項および第 4 項は、それぞれ、 ω_0^* および $\omega_0'^*$ に線型な項となっている。表 3-3 にまとめたように、開口座標の複素共役線型な軌道変化は 2 回非点を表す。したがって、式(6-13)と式(6-14)の括弧内の第 3 項および第 4 項は 2 回非点による軌道位置と軌道の傾きを表している。第 3 項と第 4 項の係数において $n=0$ とすれば、プライマリー効果に対応する項となる。 $n=1,2,3..$ として得られる係数はコンビネーションアベレーションの 2 回非点成分である。式(6-13) と式(6-14) の括弧内の第 1 項および第 2 項は、 ω_0 および ω_0' に線型な項となっており、表 3-3 にもあるように、これらは回転対称な 1 次力による軌道位置と傾きを表している。また、これらの係数は $|C|^{2n}$ となっており、発散力として働くことを意味する。すなわち、括弧内の第 1 項および第 2 項はコンビネーションアベレーションの凹レンズ成分である。ここまでの議論により、厚みのある 4 極場を電子が通過することで与えられる幾何収差 G は、2 回非点収差 A_2 と凹レンズによる焦点ズレ df であることがわかる。開口面の複素角座標の変化 ω' は対物レンズの焦点距離 f により、軸からの距離の z 微分 $f\omega'$ に変換される。軸からの距離の z 微分は開口面の進行電子に与えられる角度変化であるので、これに f を乗じたもの $f^2\omega'$ が幾何収差 G となる。

$$G = f^2\omega' \quad (6-15)$$

これより、十分長い 4 極場により電子が与えられる幾何収差 G は、以下のようになる。

$$\begin{aligned} G(\omega_0) &= f^2(\omega'(z) - \omega_0') \\ &= f^2 \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{z^{4n+1}}{(4n+1)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0^* + \frac{z^{4n+2}}{(4n+2)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0'^* + \frac{z^{4n+3}}{(4n+3)!} C^{n+1} C^{*n+1} \omega_0 + \frac{z^{4n+4}}{(4n+4)!} C^{n+1} C^{*n+1} \omega_0' \right] \\ &= G_{df}(\omega_0) + G_{A2}(\omega_0) \end{aligned} \quad (6-16)$$

ここで、 $G_{df}(\omega_0)$ と $G_{A2}(\omega_0)$ は、それぞれ幾何収差の凹レンズ成分と 2 回非点成分に対応し、初期入射位置 ω_0 を開口座標として以下のように表される。

$$G_{A2}(\omega_0) = f^2 \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{z^{4n+1}}{(4n+1)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0^* + \frac{z^{4n+2}}{(4n+2)!} C^{n+1} C^{*n} \omega_0'^* \right] \quad (6-17)$$

$$G_{df}(\omega_0) = f^2 \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{z^{4n+3}}{(4n+3)!} C^{n+1} C^{*n+1} \omega_0 + \frac{z^{4n+4}}{(4n+4)!} C^{n+1} C^{*n+1} \omega_0' \right] \quad (6-18)$$

式(6-16)～(6-18) は厚みのある 4 極場による収差を、コンビネーション効果まで含めて表したものである。4 極場のプライマリー効果は 1 次力であるため、式(3-57)により、コンビネーション効果を取り入れても次数は 1 次のままであるのがその特徴といえる。式 (6-18) は回転対称な 1 次発散力を表す項であり、エネルギーの低い電子はこの項の作用によって、より強い発散軌道が与えられる。この軌道変化は対物レンズの色収差軌道を打ち消すものであるので、式(6-18) により、厚みのある 4 極場を用いることで、対物レンズの色収差補正が可能であることが示唆される。

6.2.3 発散軌道 $\omega_h(z)$ と収束軌道 $\omega_s(h)$

4 極場内での電子の軌道は、図 6-3 に見られるように、発散軌道 $\omega_h(z)$ と収束軌道 $\omega_s(z)$ に分けることができる。式(6-3)において $C > 0$ とすると、式(6-5)より x 方向が発散軌道 $\omega_h(z)$ 、 y 方向が収束軌道 $\omega_s(z)$ となる。式(3-57) に表れているコンビネーションアベレーションの対称性の規則により、4 極場内での電子の軌道の対称性は、 x 方向の軌道と y 方向の軌道の比較により議論が可能である。例えば、 x 軌道と y 軌道の等価性が最終的に得られれば、回転対称性の証明にはそれで十分となる。実際の光学系の設計に有用な発散軌道 $\omega_h(z)$ および収束軌道 $\omega_s(z)$ は、以下のように解析的に表現される。

まず式(6-13)の、複素変数 ω_0 と、その z による微分である傾き ω_0' を、 x 成分(実部)と y 成分(虚部)に分ける。

$$\omega_0 = \omega_{0x} + i\omega_{0y} \quad , \quad \omega_0' = \omega_{0x}' + i\omega_{0y}' \quad (6-19)$$

次に、双曲線関数および三角関数に関する、以下の級数表現を用いる。

$$\sinh(z) = z + \frac{z^3}{3!} + \frac{z^5}{5!} + \frac{z^7}{7!} \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{z^{2n+1}}{(2n+1)!} \quad (6-20)$$

$$\cosh(z) = 1 + \frac{z^2}{2!} + \frac{z^4}{4!} + \frac{z^6}{6!} \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{z^{2n}}{(2n)!} \quad (6-21)$$

$$\sin(z) = z - \frac{z^3}{3!} + \frac{z^5}{5!} - \frac{z^7}{7!} \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{z^{2n+1}}{(2n+1)!} (-1)^n \quad (6-22)$$

$$\cos(z) = 1 - \frac{z^2}{2!} + \frac{z^4}{4!} - \frac{z^6}{6!} \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{z^{2n}}{(2n)!} (-1)^n \quad (6-23)$$

発散軌道 $\omega_h(z)$ およびその z 微分 $\omega'_h(z)$ は、 $\omega_0 = \omega_{0x}$ として、式(6-13)、式(6-14)、式(6-20)、式(6-21)より、以下のように与えられる。

$$\omega_h(z) = \omega_{0x} \cosh(\beta) + \frac{\omega'_{0x}}{\alpha} \sinh(\beta) \quad (6-24)$$

$$\omega'_h(z) = \omega_{0x} \alpha \sinh(\beta) + \omega'_{0x} \cosh(\beta) \quad (6-25)$$

$$\alpha = \sqrt{C} \quad (6-26)$$

$$\beta = \sqrt{C} z \quad (6-27)$$

発散軌道とその傾きは、式(6-24)、式(6-25)にて与えられるように、これらは z とともに単調増加する関数である。

収束軌道 $\omega_s(z)$ およびその z 微分 $\omega'_s(z)$ は、 $\omega_0 = i\omega_{0y}$ として、式(6-13)、式(6-14)、式(6-22)、式(6-23)より、以下のように与えられる。

$$\omega_s(z) = i\omega_{0y} \cos(\beta) + \frac{i\omega'_{0y}}{\alpha} \sin(\beta) \quad (6-28)$$

$$\omega'_s(z) = -i\omega_{0y} \alpha \sinh(\beta) + i\omega'_{0y} \cos(\beta) \quad (6-29)$$

収束軌道とその傾きは、式(6-25)、式(6-26)にて与えられるように、周期 $\beta = \sqrt{C} z$ で光軸に対して振動を繰り返す三角関数である。

発散軌道 $\omega_h(z)$ と収束軌道 $\omega_s(z)$ を用いて、無限遠に点光源をもつ電子が、図 6-3 の光学系に入射した場合の x 軌道と y 軌道が計算できる。式(6-5)より、一般の軌道は、 x 軌道と y 軌道の線型結合で表される。

x 軌道：

x 軌道に対しては、4 極場 1 が発散軌道として働き、transfer doublet にて適当な伝播距離 L を与えられた後、4 極場 2 が収束軌道として働く。4 極場 1 に対する x 軌道の入射位置と傾きを、それぞれ、 ω_{0x} 、 ω'_{0x} とすると、これらの 4 極場 2 の射出 ω_{hs} 、 ω'_{hs} は、以下のよう

になる。

$$\begin{pmatrix} \omega_{hs} \\ \omega'_{hs} \end{pmatrix} = M_s M_t M_h \begin{pmatrix} \omega_{0x} \\ \omega'_{0x} \end{pmatrix} \quad (6-30)$$

ここで、 M_h 、 M_t 、 M_s は、それぞれ、発散、transfer doublet による伝播、収束を表す作用行列であり以下の要素で構成される。

$$M_h = \begin{pmatrix} \cosh(\beta) & \frac{1}{\alpha} \sinh(\beta) \\ \alpha \sinh(\beta) & \cosh(\beta) \end{pmatrix} \quad (6-31)$$

$$M_s = \begin{pmatrix} \cos(\beta) & \frac{1}{\alpha} \sin(\beta) \\ -\alpha \sin(\beta) & \cos(\beta) \end{pmatrix} \quad (6-32)$$

$$M_t = \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (6-33)$$

ここで、 L は transfer doublet による4極場1の射出面から4極場2の入射面までの、光学的な伝播距離である。また、 M_t に関してはレンズによる反転効果は無視している。反転効果は2つの要素1を-1とすれば取り入れられるが、ここでは扱う光学系が2回対称となっているので、 M_t を用いる光学計算はどちらを用いても同じ結果を与える。

y 軌道：

y 軌道に対しては、4極場1が収束軌道として働き、transfer doublet にて適当な伝播距離 L を与えられた後、4極場2が発散軌道として働く。4極場1に対するy軌道の入射位置と傾きを、それぞれ、 ω_{0y} 、 ω'_{0y} とすると、これらの4極場2の射出 ω_{sh} 、 ω'_{sh} は、以下のようになる。

$$\begin{pmatrix} \omega_{sh} \\ \omega'_{sh} \end{pmatrix} = M_h M_t M_s \begin{pmatrix} \omega_{0y} \\ \omega'_{0y} \end{pmatrix} \quad (6-34)$$

6.2.4 Stigmatic condition による凹レンズの成立

図6-3の一般軌道が stigmatic な結像であるための必要十分条件は、x軌道とy軌道が等価になることである。式(3-56)に表れているコンビネーションアベレーションの対称性の規

則により、一般軌道は回転対称と 2 回対称の混合軌道であるので、x 軌道と y 軌道が等価になる条件を課せば、軌道は回転対称性となり、stigmatic な結像が保証される。したがって、式(6-30)と式(6-34)の作用行列が等価となることから、Stigmatic condition となる[8]。

$$M_s M_t M_h = M_h M_t M_s \quad (6-35)$$

式(6-35)が成り立つためには、式(6-31)～(6-33)より、伝播距離 L が以下の関係を満足すればよい。

$$L = -(Z + \Delta) = -Z \frac{2 \sin(\beta) \sinh(\beta)}{\beta (\cos(\beta) \sinh(\beta) + \sin(\beta) \cosh(\beta))} \quad (6-36)$$

ここで Z は、2 つの 4 極場の沿軸方向の長さである。 Δ は、4 極場 2 の完全転送位置からのズレを表し、転送距離が短くなる方向を正と定義した（ Δ は次節の図 7-1 に示した）。Stigmatic condition が式(6-36)の成立で満たされる場合、図 6-3 の 4 極場 2 の射出面以降、軌道は回転対称となる。つまり、長い 4 極場の作用成分のうち式(6-17)の 2 回非点成分が 4 極場 1 と 4 極場 2 で相殺され、式(6-18)の凹レンズ成分のみが電子作用することとなる。この凹レンズの焦点距離を f_c とすると、 f_c は以下のように求められる。すなわち、光学系への入射条件（初期条件）を無限遠からの入射とし、式(6-30)、および、式(6-34)より、4 極場 2 からの射出の傾きが、x 軌道および y 軌道についてそれぞれ ω'_{sh} および ω'_{hs} が求まるので、これらより f_c は以下ようになる。

$$f_c = - \frac{\omega_{0x}}{\omega'_{hs}} = - \frac{\omega_{0y}}{\omega'_{sh}} \quad (6-37)$$

式(6-37)において、x 軌道の焦点距離と y 軌道の焦点距離が同じになるのは、式(6-36)の stigmatic condition の成立が前提である。右辺のマイナス記号は、凹レンズの焦点距離を負と定義したことを意味する。stigmatic condition の成立により、式(6-30)または式(6-34)どちらによっても、 f_c は以下のように計算される。

$$f_c = \frac{\cos(\beta) \sinh(\beta) + \sin(\beta) \cosh(\beta)}{\sqrt{C} (\sinh^2(\beta) - \sin^2(\beta))} \quad (6-38)$$

6.2.5 色収差補正条件

以上の議論より、図 6-3 の 2 段 4 極場と transfer doublet は、凹レンズとして働くことが

理解できる。図 6-3 は、したがって、簡易的に図 6-4 に示すように、凹レンズを対物レンズの前に配置した光学系と考えることができる。図において電子の軌道は、通常の加速エネルギーの軌道を青い実線ライン、正のエネルギーブレッドによる色収差補正軌道を赤い実線ラインで示してある。また、赤の破線ラインは、色収差が相殺されていない場合、すなわち、各レンズ単体における色収差軌道を示している。

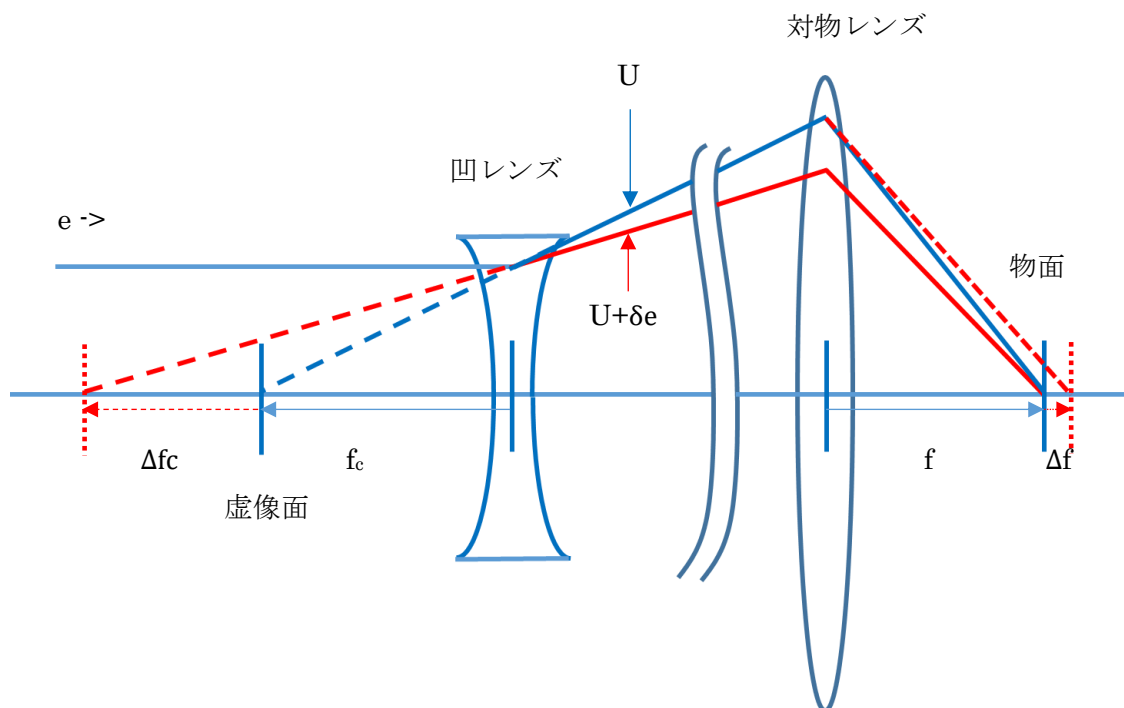


図 6-4 2 段 4 極場と transfer doublet の作用を凹レンズとして簡易化した図

図 6-4 において、加速電圧 U の電子に対して、正のエネルギーブレッド δe により、凹レンズの焦点距離 f_c は、電子の進行方向の反対側に Δf_c だけズレる。対物レンズに対しては同じ正のエネルギーブレッドに対して、焦点距離 f が電子の進行方向の側に Δf だけズレる。 Δf_c と Δf は、それぞれ、式(6-37)の U による微分、および、式(2-4)より与えられる。

$$\Delta f_c = \frac{df_c}{dU} \delta e \quad (6-39)$$

$$\Delta f = C_c \frac{\delta e(1+2\gamma U)}{U(1+\gamma U)} \quad (6-40)$$

図 6-4 では、電子の通常の加速電圧による軌道（青ライン）と正のエネルギーブレッドに

よる色収差軌道は、凹レンズと対物レンズによる効果が相殺することで、物面に置いて一致している。これは、凹レンズの焦点距離 f_c と対物レンズの焦点距離 f に関して、正のエネルギーブレッドによるそれぞれのズレ量、 Δf_c 、および、 Δf が物面で相殺することで達成される。焦点のズレは 1 次の幾何収差係数(df:デフォーカス)であるので、式(4-49)により、以下の関係を満たす Δf_c と Δf は、物面で相殺される。

$$\Delta f_c = -M^2 \Delta f \quad (6-41)$$

ここで、 M は物面から虚像面までの倍率である。したがって、色収差の補正条件は以下のよう表される。

$$\frac{df_c}{dU} = -M^2 C_c \frac{(1+2\gamma U)}{U(1+\gamma U)} \quad (6-42)$$

式(6-42)の左辺の微分は、式(6-37)、式(6-26)、式(6-27)、式(6-3)で計算できるが、解析解を求めるよりも数値計算によるほうが実際には都合がよい。式(6-41)を満たす、電位と磁位の解は無数に存在し、解に依存して式(6-36)、式(6-38)による軌道も無数に存在するからである。光学系が機械的に設計可能かどうかを判断するには、軌道の様子を確認しつつ、色収差補正条件を見つける必要がある。

図 6-4 には記載していないが、対物レンズの作用面と凹レンズの作用面を、**transfer doublet** 等でこれらを等価面とするのが光学的に有利である。これは、3.6 で議論したように、2 つの光学作用面を一致させることで副作用的な意図しないコンビネーションアベレーションの生成を防ぐことができるからである。倍率 1 の **transfer doublet** を用いることで、式(6-41)の M は、凹レンズと対物レンズの焦点距離の比となる。

$$M = -\frac{f_c}{f} \quad (6-43)$$

6.2.6 静電 4 極場によるポテンシャル収差

図 6-1 のように開口面において、 x 軸方向に正ポテンシャルを与えられた静電 4 極場がある場合、複素角座標 ω を用いて、ポテンシャル分布 V_c は以下のように表される。

$$\omega = |\omega| \exp(i\theta) \quad (6-44)$$

$$V_c(\omega) = \frac{V}{b^2} |f\omega|^2 \cos(2\theta) \quad (6-45)$$

光学系の加速電圧を U とすると、静電 4 極場の電位分布 V_c により、 ω に依存した開口面における加速電圧の分布 $U_c(\omega)$ が生じる。

$$U_c(\omega) = U + \frac{V}{b^2} |f\omega|^2 \cos(2\theta) \quad (6-46)$$

ω に依存した加速電圧の分布 $U_c(\omega)$ が生じることは、すなわち、開口面での電子に対する作用力が ω に依存するということであり、像に対するその働きは収差と同じである。4 極場の作用において、加速電圧の分布 $U_c(\omega)$ の効果を取り込むには、式(6-3)の U を式(6-43)の $U_c(\omega)$ に置き換えればよい。置き換えにおいて $U_c(\omega)$ を、以下に示すように ω による 2 次元のテーラー級数に展開することで、収差と同等に扱うことができるようになる。

$$\frac{1}{U_c(\omega)} = \frac{1}{U} - f^2 \frac{V}{2b^2 U^2} (\omega^2 + \omega^{*2}) + f^4 \frac{V^2}{4b^4 U^3} (\omega^4 + \omega^{*4} + 2\omega^2 \omega^{*2}) + \dots \quad (6-47)$$

$$\sqrt{\frac{1}{U_c(\omega)}} = \sqrt{\frac{1}{U}} - f^2 \frac{V}{4b^2 U} \sqrt{\frac{1}{U}} (\omega^2 + \omega^{*2}) + f^4 \frac{3V^2}{32b^4 U^3} \sqrt{\frac{1}{U}} (\omega^4 + \omega^{*4} + 2\omega^2 \omega^{*2}) + \dots \quad (6-48)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{1+2\gamma U_c(\omega)}{1+\gamma U_c(\omega)} \right) &= \left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right) + f^2 \frac{\gamma V}{2b^2 (1+\gamma U)^2} (\omega^2 + \omega^{*2}) \\ &\quad - f^4 \frac{\gamma^2 V^2}{4b^4 (1+\gamma U)^3} (\omega^4 + \omega^{*4} + 2\omega^2 \omega^{*2}) + \dots \end{aligned} \quad (6-49)$$

$$\begin{aligned} \sqrt{\frac{1}{1+\gamma U_c(\omega)}} &= \sqrt{\frac{1}{1+\gamma U}} - f^2 \frac{\gamma V}{4b^2 (1+\gamma U)} \sqrt{\frac{1}{1+\gamma U}} (\omega^2 + \omega^{*2}) \\ &\quad + f^4 \frac{3\gamma^2 V^2}{32b^4 (1+\gamma U)^3} \sqrt{\frac{1}{1+\gamma U}} (\omega^4 + \omega^{*4} + 2\omega^2 \omega^{*2}) + \dots \end{aligned} \quad (6-50)$$

式(6-3)における $\frac{1}{U}$ 、 $\sqrt{\frac{1}{U}}$ 、 $\left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right)$ および $\sqrt{\frac{1}{1+\gamma U}}$ を、(6-47)～式(6-50)で与え

られる $\frac{1}{Uc(\omega)}$ 、 $\sqrt{\frac{1}{Uc(\omega)}}$ 、 $\left(\frac{1+2\gamma Uc(\omega)}{1+\gamma Uc(\omega)}\right)$ および $\sqrt{\frac{1}{1+\gamma Uc(\omega)}}$ で置き換えれば、加速電圧の分布 $Uc(\omega)$ の効果を考慮した電磁場重畳 4 極場の作用を与える C_U が得られる。

$$C_U = \frac{V}{Uc(\omega)b^2} \left(\frac{1+2\gamma Uc(\omega)}{1+\gamma Uc(\omega)} \right) + \sqrt{\frac{e}{2mUc(\omega)(1+\gamma Uc(\omega))}} \frac{2\mu_0 NI}{b^2}$$

$$= C_0 + C_1\omega^2 + C_2\omega^{*2} + C_3(\omega^4 + 2\omega^2\omega^{*2}) + C_4\omega^4 \quad (6-51)$$

$$C_0 = C \quad (6-52)$$

$$C_1 = f^2 \left\{ \frac{E^2}{2} \left(-U^{-2} \left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right) + \gamma U^{-1} \frac{1}{(1+\gamma U)^2} \right) \right.$$

$$\left. - B \sqrt{\frac{e}{2m}} \frac{E}{4} \left(U^{-3/2} \frac{1}{(1+\gamma U)^{1/2}} + \gamma U^{-(1/2)} \frac{1}{(1+\gamma U)^{3/2}} \right) \right\} \quad (6-52)$$

$$C_2 = C_1$$

$$C_3 = f^4 \left\{ \frac{E^3}{4} \left(U^{-3} \left(\frac{1+2\gamma U}{1+\gamma U} \right) - \gamma U^{-2} \frac{1}{(1+\gamma U)^2} - \gamma^2 U^{-1} \frac{1}{(1+\gamma U)^3} \right) \right.$$

$$\left. - B \sqrt{\frac{e}{2m}} \frac{E^2}{32} \left(U^{-5/2} \frac{3}{(1+\gamma U)^{1/2}} + \gamma U^{-(3/2)} \frac{2}{(1+\gamma U)^{3/2}} + \gamma^2 U^{-(1/2)} \frac{3}{(1+\gamma U)^{5/2}} \right) \right\} \quad (6-53)$$

$$C_4 = C_3 \quad (6-54)$$

ここで、電場と磁場の強さに関して、以下のように表現した (V : 極の電位、 b : 極のボア半径、 NI : 起磁力、 μ_0 : 真空透磁率)。

$$E = \frac{V}{b^2} \quad (6-55)$$

$$B = \frac{2\mu_0 NI}{b^2} \quad (6-56)$$

(6-47)～式(6-50)の右辺の第 1 項は、それらはテーラー級数であるので C の表現と一致しており、第 2 項以降は ω の次数と対称性による級数項であるので、式(6-3)による C の表現に収差項が付加された形式となる。 $Uc(\omega)$ を考慮した 4 極場 C_U によるプライマリー収差係数を A とすると、表 3-3 における 2 回非点の表現を適用することで収差 G は与えられる。

$$G = A\omega^* \quad (6-57)$$

式(6-15)より、

$$\begin{aligned}
 A\omega^* &= f^2\omega' = f^2Z\omega'' = f^2ZC_0\omega^* \\
 &= f^2Z (\quad C_0\omega^* \quad \dots \text{2 回非点} : \\
 &\quad + C_1\omega^2\omega^* \quad \dots \text{球面収差} \\
 &\quad + C_2\omega^{*3} \quad \dots \text{4 回非点} \\
 &\quad + C_3(\omega^4\omega^* + 2\omega^2\omega^{*3}) \quad \dots \text{5 次 2 回対称収差} \\
 &\quad + C_4\omega^4\omega^* \quad \dots \text{6 回非点} \\
 &\quad) \quad (6-58)
 \end{aligned}$$

式(6-58)は、電磁場重畳 4 極場において、電場 4 極子の電位分布による加速電圧変化まで考慮したプライマリー収差を表す式である。式(6-46)の示す加速電圧分布は、大きくなっても加速電圧の 10^{-5} 程度となるので、この程度の誤差は 4 極場全体の振舞いの説明に対しては、第 1 項のみを考慮した議論で（加速電圧の 10^{-5} の精度を必要としなければ）十分である。したがって、たとえば式(6-42) に示した色収差の補正条件については、これに関する変更は実質不要である。式 (6-58) の第 2 項以降の収差の存在は、像面に置けるこれらの収差の大きさを検討する必要があることを意味する。

stigmatic condition の成立とは、式 (6-58) 第 1 項が、1 段目の 4 極場と 2 段目の 4 極場にて相殺されることを意味する。これと同様に、第 4 項 (C_3) 第 5 項(C_4) に関しても、1 段目と 2 段目の 4 極場では、E と B は同じ強さで符号が変わる。したがって、第 4 項 (C_3) 第 5 項(C_4) は 1 段目と 2 段目の 4 極場で相殺される。第 2 項(C_2) の球面収差と第 3 項(C_2) の 4 回非点は、1 段目と 2 段目の 4 極場で同符号となるので、加算されることになる。したがって、図 6-3 の色収差補正装置においては、式(6-46)の効果により、球面収差と 4 回非点が付加されることになる。これらの値は、実際の光学系のパラメータ(U,f,b,NI,V,Z,)に依存するので、色収差補正系を設計する際に値を見積もり、結果によっては補正手段を講じておく必要がある。

6.3 30kV 色収差補正装置の開発

電子顕微鏡の結像媒体に用いる電子のエネルギー分布は、対物レンズの色収差により、像に重畳されるデフォーカス分布となり、電子顕微鏡の分解能は劣化する。5章に述べたように、球面収差の補正技術は実用レベルで確立されており、電子顕微鏡のさらなる分解能向上を目指すには、色収差の補正が次のターゲットとなる。式(6-39)に見られるように、電子の加速電圧が小さいほど、電子のエネルギー分布は大きなデフォーカス分布に変換される。一般には、加速電圧が低いほど、色収差による像の劣化は大きくなるので、低加速電圧の電子顕微鏡で高解像度を得ようとする場合に、色収差補正の重要度が増す。前節で議論したように、2段4極場と transfer doublet により、電子レンズの色収差に対して、逆符号の色収差を発生させることができる。前節で得た理論的成果を元に、2段4極場と transfer doublet を用いた色収差補正系を試作し、30kVの透過電子顕微鏡にて色収差補正動作を検証したので[8]、以下にその詳細を述べる。

6.3.1 光学系構成

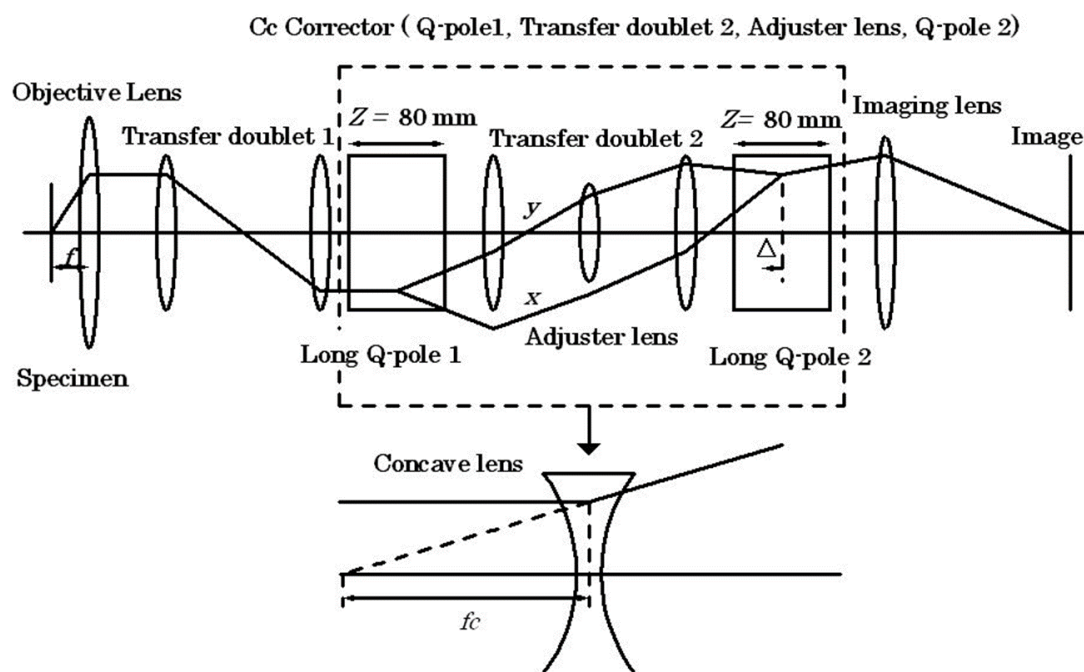


図 6-5 30kV TEM 結像系色収差補正の光学系

図 6-5 に 30kV 電子顕微鏡の結像系色収差補正の光学系を示す。図に示した色収差補正光学系は、6章にて議論した電磁場重畳型2段4極場と transfer doublet が生成する負の色

収差を、対物レンズの色収差と相殺させる光学系である。対物レンズは、加速電圧 30kV の電子に対して、表 6-1 に示す光学定数を持つものを用いた。

表 6-1 色収差補正光学系の開発に用いた対物レンズの光学定数と energy spread

加速電圧 30kV			
Cc 色収差係数	f 焦点距離	Cs 球面収差係数	電子銃 δe (energy spread)
0.6 mm	0.75 mm	0.6 mm	0.7 eV

図 6-5 の光学系において、色収差補正を動作させなければ、表 6-1 に示した対物レンズの色収差係数と結像電子のエネルギー分布により、観察される像は、色収差によるデフォーカス分布が重畳されたものとなる。以下に、図 6-5 の光学系の動作について説明する。

1. 電子は加速電圧 30kV で試料(specimen)に入射する。試料(specimen)の軸上点から散乱された電子は、焦点距離 f だけ離れて配置されている対物レンズ (Objective lens) の結像作用により、軸と並行な軌道が与えられる。
2. 対物レンズと 4 極場 1 (Long Q-pole 1) の間には、transfer doublet 1 が配置されており、transfer doublet 1 の働きにより、対物レンズの作用面と 4 極場 1 の作用面が、完全共役となる。transfer doublet 1 により対物レンズと 4 極場 1 は光学距離がゼロとなり、色収差補正に伴う余計なコンビネーションアベレーションが発生しない。
3. 軸上の結像電子は、4 極場 1 に平行軌道で入射する。4 極場内部において電子は、式(6-17) の作用により、 x 軸方向は発散力を受けた発散軌道となり、 y 軸方向は収束力を受けた収束軌道となる。また同時に、式(6-18) の作用により電子は、 x 軌道、 y 軌道ともに回転対称な 1 次発散力を受ける。4 極場内部で電子の受ける作用は、したがって、式(6-17) による 2 回非点、式(6-18) による凹レンズ効果、そして式 (6-58) の第 2 項～第 5 項に示した、電場 4 極子による収差項である。
4. 4 極場 1 と 4 極場 2 (Long-Qpole 2) の間には、transfer doublet 2 と adjuster lens が配置されており、transfer doublet 2 により 4 極場 1 と 4 極場 2 がほぼ完全共役となっている。ほぼ完全共役とは、以下の意味である。すなわち、完全共役では光学距離が $-Z$ であるところを、光学距離が式(6-36)で与えられる L となるように transfer doublet 2 と adjuster lens が働く。完全転送位置から Δ だけ移動した位置に、4 極場 2 を配置することで、光学距離 L はおよそ確保でき、adjuster lens はその微調整に用いる。光学距離 L の確保は、stigmatic condition の成立に不可欠である。

5. 結像電子は4極場1を射出後、transfer doublet 2 と adjuster lens の作用により、式(6-36)を満たす光学距離 L を経て、4極場2 (Long Q-pole 2) に入射する。4極場2と4極場1は、励起強度が同じで位相角が $\pi/2$ 異なった配置となっており、x軌道は収束作用、y軌道は発散作用を置ける。励起強度が同じであることと、光学距離が式(6-36)で与えられる L となっていることより、互いの2回非点成分は相殺される。したがって、図6-5の破線で示した光学素子類は、その下に示した焦点距離 f_c の凹レンズ(Concave lens)としてとして働く。 f_c と f の加速電圧による分散が相殺することで色収差が補正される。補正条件は、式(6-42)に示したとおりである。
6. 4極場2の射出面では、色収差補正された回転対称軌道となっている。ただし、式(6-58)の第2項～第5項に示した収差の影響は残っており、これらの収差係数は後に示す。Imaging lens により、いわゆる初段像を形成する。この初段像は、微小な加速電圧の変動分による対物レンズの焦点距離 f の変動と、凹レンズの f_c の変動が打ち消しあった結果、色収差補正された像となる。

6.3.2 補正電圧と起磁力

式(6-3)の4極場電位 V と4極場起磁力 NI を適当な値に設定することで、色収差条件である式(6-42)を成立させることができる。このとき、4極場1 (Long Q-pole 1) と4極場2 (Long Q-pole 2) は、それぞれ大きさが同じで極性が打ち消しあうような、電位 V と磁位 NI を与える。このような、電位 V と磁位 NI の組は、図6-5に与えられた光学系に対して無数に存在する。色収差条件を満たすこれらの組は、軌道の変移が異なる色収差の補正軌道となる。ここで、stigmatic condition を満たす Δ に関して注意する必要がある。 Δ は4極場1の射出から4極場2の入射までの光学距離 L を決める値であるが、式(6-36)で与えられるように、 β の関数すなわち、電位 V と磁位 NI の関数である。図6-5のadjuster lens がなければ、 Δ は機械的な配置で固定されてしまうため、式(6-42)と式(6-36)を同時に満たす電位 V と磁位 NI は一組と決まってしまう。Adjuster lens を励磁すると、 Δ の値のみを、これを正方向に調整することができる。Adjuster lens は、4極場2 (Long Q-pole 2) 以降の系をあたかも、機械的に紙面右方向に移動させるかの如く作用し、これにより、色収差補正条件と stigmatic condition の独立制御が可能となる。

図6-5に示す光学系において色収差補正条件を満たす4極子電位 V と4極子磁位 NI の組を、表7-1に4組示す。さらに、各組に付随する Δ 、凹レンズ焦点距離、4極電位分布による収差、凹レンズ像面での倍率を、それぞれ示す。

表 6-2 色収差補正条件を満たす 4 極子電位 V および 4 極子磁位 NI 、およびそれに不随する光学定数。式 (6-42) の計算に必要な値として、4 極場の長さ $Z=80\text{mm}$ 、対物レンズの焦点距離 $f=0.75\text{ mm}$ 、対物レンズの色収差係数 $Cc=0.6\text{ mm}$ 、これらの値を用いた。

$V\text{ (V)}$	$NI\text{ (A)}$	$\Delta\text{ (mm)}$	$f_c\text{ (mm)}$	$C1,C2\text{ (}\mu\text{m)}$	$M = f_c /f$
3000	23.71	11.87	33.84	1.567	45.12
4000	31.90	7.115	57.67	2.759	76.89
5000	40.06	4.637	89.60	4.289	119.5
6000	48.20	3.208	130.5	6.158	174.0

表 6-2 に示した 4 組は、どれを用いても色収差補正が可能である。以下に 4 極場電位が高い場合と低い場合の、特徴を利点と欠点に分けてあげる。

4 極場電位が高い補正条件：

利点

- 軌道変移が小さい
- 凹レンズ焦点距離が長い
- M が高い

欠点

- 4 極間の微小放電が増す
- 4 極電位による収差 (C_1,C_2) が大きい

4 極場電位が低い補正条件：

利点

- 4 極間の微小放電が減る
- 4 極電位による収差 (C_1,C_2) が大きい

欠点

- 軌道変移が大きい
- 凹レンズ焦点距離が短い
- M が低い

端的に言えば、放電による安定度が確保できる設計ができる限り、4 極場電位の高い補正条件が有利といえる。4 極電位による収差 (C_1,C_2) は、表 6-2 程度の値であれば、これを補正する光学系 (8 極場等) を追加することが可能である。図 6-6 に 4 極場電位 $V=5000\text{ v}$ の補正条件における電子の軌道を示す。

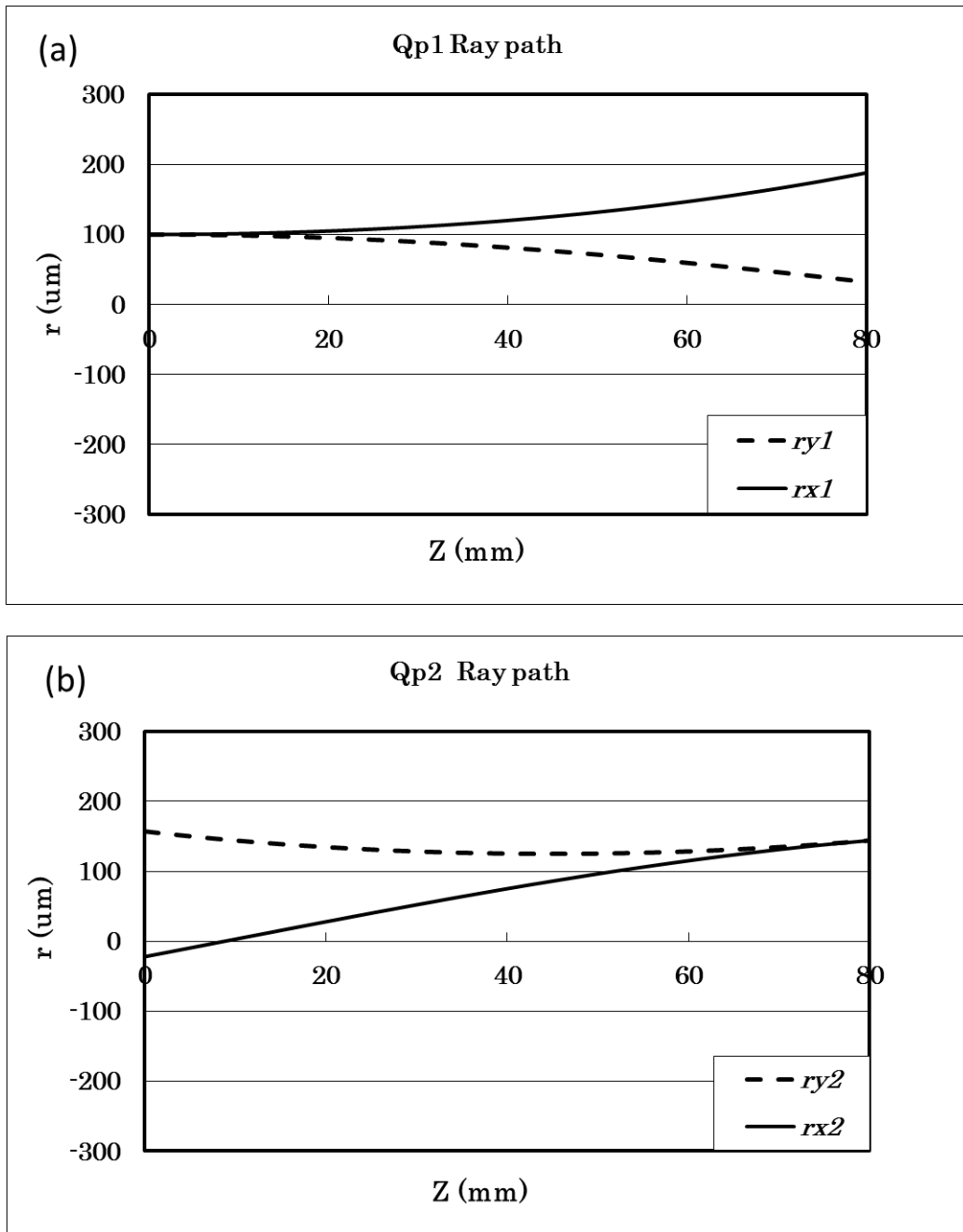


図 6-6 加速電圧 30kV の 2 段 4 極場内での色収差補正軌道(x 軌道:rx1, rx2, y 軌道:ry1, ry2)

4 極場電位 $V = 5000$ v, 4 極場磁位 $NI = 40.06$ A。 (a) 4 極場 1 における軌道。 (b) 4 極場 2 における軌道。

6.3.3 色収差補正の動作確認

図 6-5 の色収差補正光学系を、透過電子顕微鏡に組み込み、補正動作の確認を行った。透過電子顕微鏡の主な光学定数は表 6-1 に示してある。

色収差を補正しない場合：

図 6-7 に色収差補正を行わないで撮影したアモルファス Ge の像を示す。中心に配置してある像は加速電圧 30kV で撮影したものである。その直下に像の diffractogram を示す。diffractogram の解析により、像のデフォーカスは $0.103\ \mu\text{m}$ であることが確認された。中心の像の左と右に配置されている像は、中心の像を取得した条件から加速電圧のみを、それぞれ、 -25V および $+25\text{V}$ 変化させて取得した像である。色収差が存在する場合は、加速電圧の変化により、像および diffractogram とともに一見して明確な変化が見て取れる。それぞれの diffractogram の解析により、 -25V の加速電圧変化の像ではデフォーカス $0.039\ \mu\text{m}$ 、 $+25\text{V}$ の加速電圧変化の像ではデフォーカス $0.167\ \mu\text{m}$ と確認された。中心の像からのデフォーカスの変化は、補正されていない色収差によるもので、式 (6-40) により与えられる。測定されたデフォーカス変化から、色収差係数を測定値 C_{c0} として計算すると、 $C_{c0} = 0.75\ \text{mm}$ が得られる。これは、対物レンズの色収差係数 $C_c=0.6\text{mm}$ より $0.15\ \text{mm}$ 大きい値となっている。この 0.15mm の増加分は、光学系構成される 2 つの transfer doublet と adjuster レンズによる色収差が加算された結果である。

色収差を補正した場合：

図 6-8 に色収差補正を行って撮影したアモルファス Ge の像を示す。中心に配置してある像は加速電圧 30kV で撮影したものである。その直下に像の diffractogram を示す。diffractogram の解析により、像のデフォーカスは $0.039\ \mu\text{m}$ であることが確認された。中心の像の左と右に配置されている像は、中心の像を取得した条件から加速電圧のみを、それぞれ、 -25V および $+25\text{V}$ 変化させて取得した像である。色収差補正を行った場合は、加速電圧による像および diffractogram の変化は、一見して判別できない。それぞれの diffractogram の解析によって、 -25V の加速電圧変化の像および $+25\text{V}$ の加速電圧変化の像とも、デフォーカス $0.039\ \mu\text{m}$ と確認された。これは、diffractogram によるデフォーカス想定限界内で、色収差がゼロ「になっていることを意味する。Diffractogram の解析誤差を考慮して、色収差係数は補正を行わない値 0.75mm から、補正動作により 0.02mm 以下まで補正されたと結論できた。

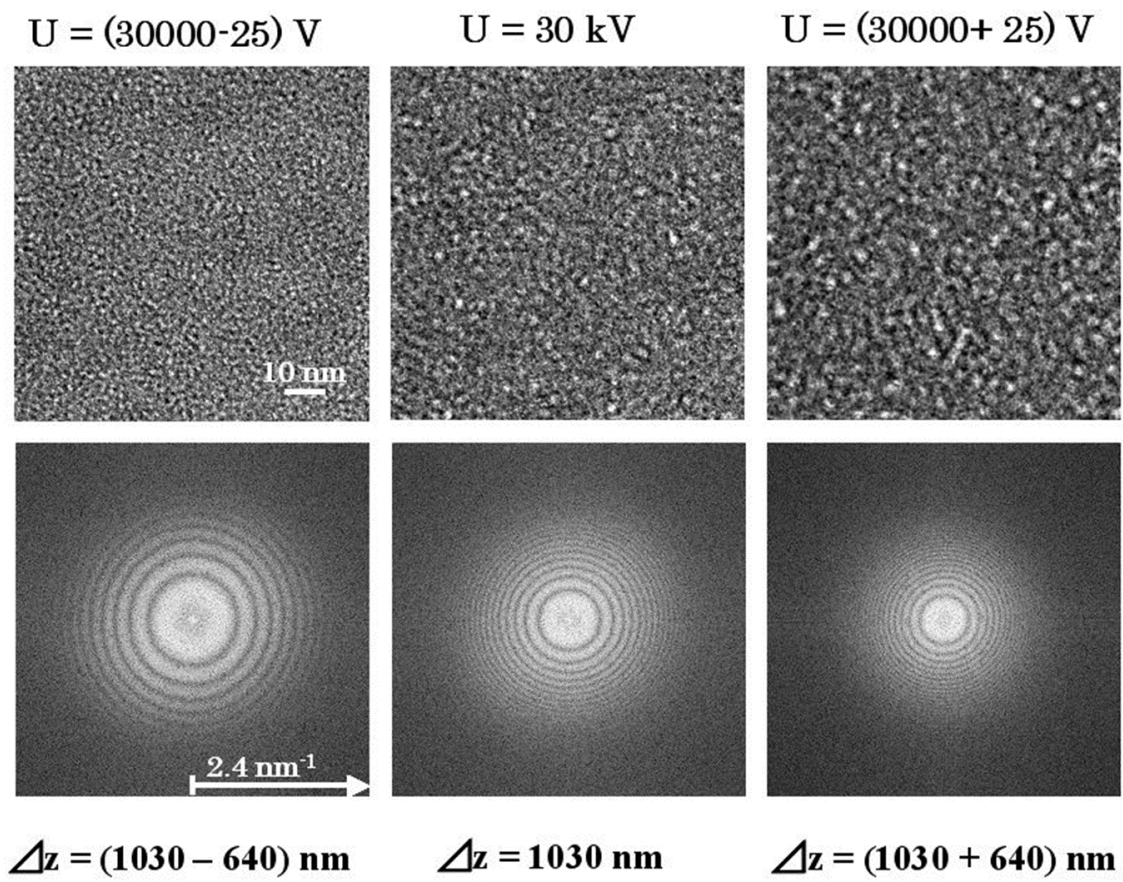


図 6-7 加速電圧の変化と色収差による像のデフォーカス(Δz)の変化

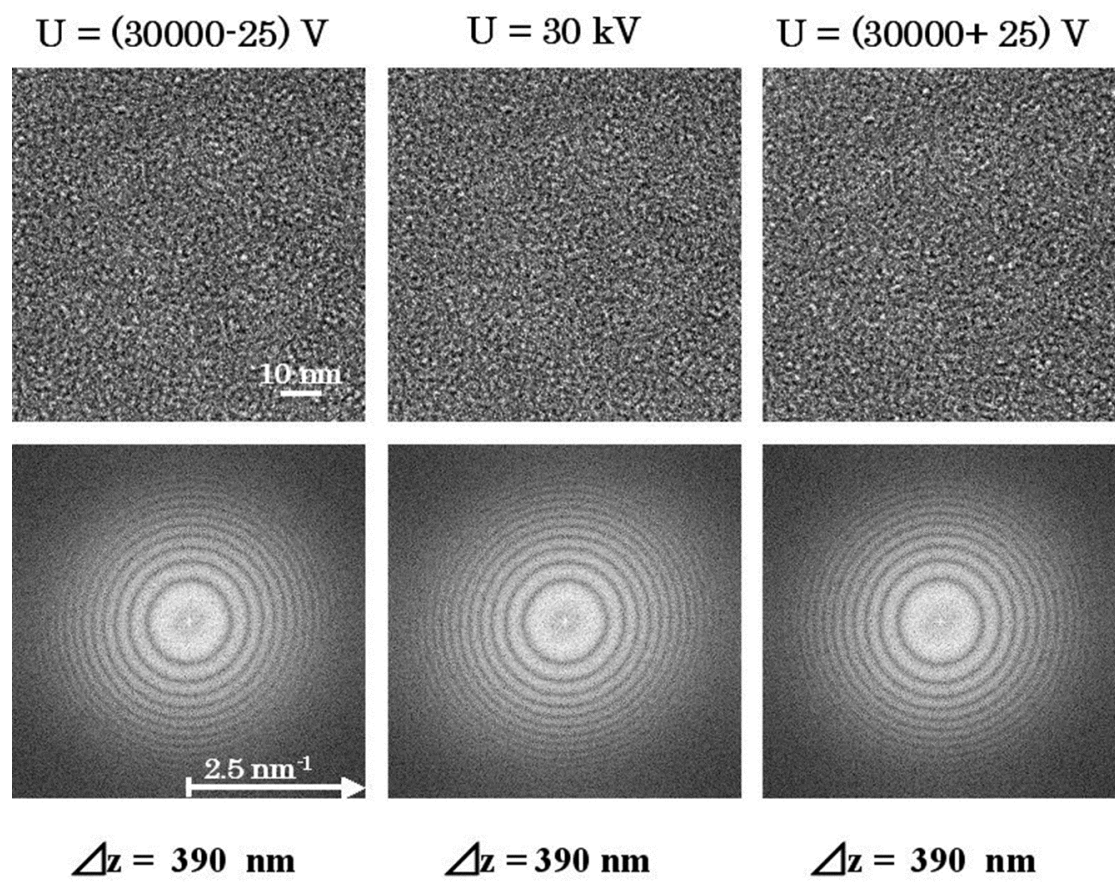


図 6-8 色収差補正の補正による、加速電圧変化に対するデフォーカス(Δz)の不変効果

6.4 6章のまとめ

電子光学系の球面収差の補正に関する理論と設計（3章、4章）その実証（5章）により、電子顕微鏡の軸上開口収差は、40 mrad の照射半角内での補正が可能であることが実験的に示された。加速電圧 300kV にける 40mrad 開口半角の回折収差は式 (2-1)で与えられる D の半分となり、すなわち $0.3\text{\AA}$ となる。開口収差が十分補正された系において、次に現れる分解能の制限因子は色収差である。色収差による解像度の低下は、低加速電子顕微鏡においてより顕著になる。本章では、コンビネーションアベレーションの解析により、長い4極場が凹レンズを生成することを示し、長い4極場による色収差補正装置の設計手法を確立した。コンビネーション効果を利用する長い4極場による色収差補正の特徴は、収差補正面を、 x 軌道と y 軌道について同一面として定義できる点である。4極場の凹レンズ面を収差導入面と一致させることで、余計な収差の混入を防ぐことが可能となる。従来の **Scherzer** による4極場のプライマリー効果による色収差補正は、 x 軌道と y 軌に対して、それぞれ補正面が異なるので、対物レンズの収差導入面にこれらを同時に一致させることができず、この場合は余計な収差が少なからず混入すると考えられる。長い4極場による色収差補正装置を設計し、加速電圧 30kV の透過電子顕微鏡に搭載し、補正動作の確認を行った。その結果、色収差係数は、補正前の 0.75mm の値から、補正後は 0.02mm 以下まで補正できたことを確認した。

6 章 参考文献

- [1] Zhifeng Shao and A. V. Crewe, Chromatic Aberration Effects in Small Electron Probes, *Ultramicroscopy* 23, 169-174 (1987).
- [2] C. Kisielowski et al., Detection of Single Atoms and Buried Defects in Three Dimensions by Aberration-Corrected Electron Microscope with 0.5-Å Information Limit, *Microscopy and Microanalysis* 14, 469-477 (2008).
- [3] P. W. Hawkes, *Quadrupoles in Electron Lens Design*, Academic Press, New York (1970)
- [4] O. Scherzer, Sphaerische und chromatische Korrektur von Elektronenlinsen., *Optik* 2, 114-132 (1947).
- [5] G. D. Archard, Requirements contributing to the design of devices used in correcting electron lenses, *Br. Journal of Applied Phys.* 9, 294-299 (1954).
- [6] Kabius B, Hartl P, Haider M, Mueller H, Uhlemann S, and Rose H (2009) Aberration correction within the TEAM project. *J. Electron Microsc.*, forthcoming.
- [7] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Sasaki, Y. Kondo and K. Suenaga (2010). Chromatic aberration correction for an objective lens utilizing concave lens effect generated from thick quadrupole field. *Kenbikyo* 45 (Supplyment), 14.
- [8] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi and K. Suenaga, Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy, *Microscopy* 62, 23-41 (2013).

7. 収差補正電子顕微鏡の像のシミュレーション

7.1 序論

収差補正電子顕微鏡により得られる像は、 $1\text{\AA}$ を軽く凌駕する優れた解像度を有する半面、わずかな結像パラメータの異なりが、得られる像に大きな変調をもたらす。本章の目的は、収差補正電子顕微鏡で得られる像に関して、すべての残収差を考慮したシミュレーション計算を可能とする手段を確立することである。そのためには、収差補正技術の実現以前に定式化された、回転対称光学系を前提とした結像計算の一部を、任意の対称性が許される形に変更する必要がある。また、この変更により生じる時間コストの膨大化を減じる工夫が必要となる。

電子顕微鏡透過像 (TEM 像) の高分解能観察とは、位相コントラストにより形成される像成分により、試料の構造を原子レベルの分解能で観察することである。位相コントラストは、試料の厚さや収差などの、電子顕微鏡内外の観察条件に非常に敏感に影響される。これらの観察パラメータのわずかな違いにより、TEM 像は全く異なったコントラストが与えられる。結晶構造の解析目的で試料を観察しても、わずかな n 回対称の収差の存在により、構造に含まれない対称性を持った像が得られる場合もある[1]。したがって、高分解能 TEM 像から試料の原子構造を議論するには、シミュレーションによる計算像と実験で得られた像の比較照合が不可欠であり、その定量的評価方法が提案されている[2]。

TEM 像のシミュレーション計算は、試料による動力学的回折を計算する部分と、光学系による像の結像を計算する部分に大別される。動力学的回折の計算は、試料への入射面と射出面における境界条件を用いて、解析的な計算を行うベーテ法[3]と、3次元試料構造を複数の2次元スライスに投影分割し、連続的な数値計算を行うマルチスライス法[4]の計算手法が知られている。ベーテ法では、境界条件に挟まれた試料内部が繰り返し構造を持つことを利用して、行列計算による完全解が得られるが、周期性を持たない非晶質構造等の試料に関しては、散乱振幅を計算することができない。一方のマルチスライス法は、完全解からの近似精度がスライスの厚さに左右されるが、非晶質、転移、結晶界面による、散乱振幅が計算可能である。近年においては、パーソナルコンピュータのメモリー容量と計算速度の向上により、十分薄いスライス分割を行うことで計算精度を確保しつつ、実験との並行計算が可能となってきた。このような背景にて、TEM の動力学的回折の計算は、ほとんどの場合マルチスライス法により行われている。

マルチスライス法等の動力学的回折の計算により、試料からの射出面における電子の複素振幅が計算される。この射出波動関数に対して、電子光学系の結像計算を行うことで TEM 像が得られる。電子光学系の結像計算手法として、光学の分野で確立された相互透過係数 (TCC) [5] の考え方を電子顕微鏡に応用した計算方法 [6] がすでに考案されている。TCC と

は、結像に関与するすべての散乱波について、その任意の組みあわせの干渉強度を記述する関数である。結像計算においては、収差による位相変化と部分干渉性による強度変化を計算する必要がある。任意の 2 つの散乱波について、これらの値が TCC により与えられる。一般の TEM 像は、結像に関与するすべての電子波の干渉強度を加算することで得られる。第 2 章で述べた弱位相物体近似を用いた伝達関数による像計算は、散乱波強度が透過波に対して非常に弱く、像形成は透過波と散乱波の組み合わせのみを考慮すればよいとして導出されたものである。

TEM 像の計算のための TCC が定式化された時点では、収差補正技術は未確立であった。このため TCC に取り入れられた収差は、最も支配的に振る舞う球面収差係数 (C_s) とデフォーカス(df) のみであった[6],[7],[8]。ところで、第 5 章で述べた球面収差補正手法の確立により、球面収差は、もはや最も支配的収差ではなくなった。球面収差補正を行った場合は、図 5-6 に示したように、デフォーカス(df)から 6 回非点(A_6)までの全ての収差が結像に関与してくる。したがって、収差補正電子顕微鏡により得られる像のシミュレーションを行う場合は、 C_s と df のみが考慮された TCC の計算を、可能性のあるすべての収差 ($df \sim A_6$) に対応できるように拡張する必要がある。また、第 2 章で述べたコントラスト伝達関数と部分干渉性の計算も、可能性のあるすべての収差($df \sim A_6$)を含む計算式に変更する必要がある。これまでに述べてきた、収差補正技術の確立により、結像の計算式も新たに収差補正対応したものが必要となる。本研究の一環として、結像理論における TCC の基本的な考え方を踏襲しつつ、収差補正電子顕微鏡の像シミュレーションが可能となる TCC の導出を行った[9]。また、TCC の特殊な場合として定義できるコントラスト伝達関数と、光源サイズに依存する部分干渉性に関しても、可能性のあるすべての収差 ($df \sim A_6$) に対応する形式を導出した。新しく導出した結像計算は、取り込む波の数によっては、計算時間の負荷が多くなる場合がある。そこで、シミュレーションが実験現場での補助としてストレスなく行えるように、GPU(Graphics Processing Unit) を用いた並列計算プログラムを開発した[10]。本章ではこれらに関して述べる。

7.2 相互透過係数 TCC の導出

7.2.1 球面収差が補正されていない従来の TCC

TEM の高分解能像は、位相コントラストにより与えられる。原子配列を反映する像が得られる試料の厚さは、数 nm ～数十 nm 程度でありこの程度の厚さの試料では、加速電圧数百 kV の電子は吸収されることなく透過する。一般に高分解能結像においては、電子は試料により、散乱によるわずかな位相ズレが与えられると考えられている。試料内部のポテンシャルでどのような位相ズレが与えられるかは、多重散乱を考慮したマルチスライス法等による動力学的回折により計算できる。これにより、試料から射出される電子の波動関数が得

られるので、これをフーリエ変換することで後焦点面での電子回折の複素振幅 $F(k)$ が得られる。 $F(k)$ はレンズの収差による位相ズレを受けて像面に伝播し、部分干渉性をもって像強度 $i(r)$ を形成する。この過程において、像強度 $i(r)$ のフーリエ変換 $I(k)$ と $F(k)$ の関係を記述するのが、相互透過係数 TCC である。

$$I(k) = \int TCC(k+k', k') F(k+k') F^*(k') dk' \quad (7-1)$$

$$TCC(k'', k') = \iint f(\Delta_f) s(q) t(q+k'') t^*(q+k') dq d\Delta_f \quad (7-2)$$

ここで、 $f(\Delta_f)$ は式 (2-35) で与えられる、結像電子のエネルギー分布がデフォーカス分布に変換された 1 次元関数である。また、 $s(q)$ は式(2-32)で与えられる、逆空間に結像された光源の強度分布である。 $t(k)$ は瞳関数(pupil function)であり、波面収差関数 $\chi(k)$ と絞り関数 $a(k)$ により、以下のように表される。

$$t(k) = a(k) \exp(2\pi i \chi(k)/\lambda) \quad (7-3)$$

$$\begin{aligned} a(k) &= 1, & k \in \text{対物絞り} \\ &0, & k \notin \text{対物絞り} \end{aligned} \quad (7-4)$$

式 (7-2) は、 $f(\Delta_f)$ と $s(q)$ に関して、 $t(q+k'') t^*(q+k')$ とのコンボリューションをあらわしている ($f(\Delta_f)$ と $s(q)$ は、2 章でみたように偶関数として計算される。 Δ_f はデフォーカス df の微小変化を表し、 $\chi(k)$ は df をパラメータに持つ。結像電子のエネルギーの微小変化は、光学系すべてに影響を与えるが、実質その影響が現れるのは、素子として最も作用力の大きい対物レンズであり、その効果はデフォーカスの連続的変化の像への重量として現れる。

2 章にて弱位相物体近似における結像について述べた際、コントラスト伝達関数と部分干渉性の関数として、式(2-39)～式(2-41) の導出を説明した。これらは、式(7-2)において $k'=0$ とすることで得られるものである。すなわち、結像が、透過波($k'=0$)と散乱波(k'')の干渉のみで記述されると近似して得られる。ここに挙げた式(7-1)、式(7-2) は、弱位相物体近似によらない、一般の TEM 像のシミュレーション計算において使用されるものである。式(7-2)の積分は式(2-27)、式(2-36)の積分を解いた時と同様に、関数のパラメータをテーラー級数の 1 次項までの展開で置き換えることで[6],[7]、解くことができる。波面収差関数 $\chi(k)$ について、球面収差 C_s とデフォーカス df のみを考慮すればよい場合、すなわち、収差補正されていない電子顕微鏡による TEM 像に対しては、TCC は以下のように計算される[8]。

$$TCC(k'', k') = \exp\{i\pi(df\lambda(k''^2 - k'^2) + C_s\lambda^3(k''^4 - k'^4)/2)\} E_j(k'', k') E_d(k'', k') \quad (7-5)$$

$$E_j(k'', k') = \exp\{-\pi^2 q_0^2 (df(k'' - k')\lambda + C_s(k''^3 - k'^3)\lambda^3)^2\} \quad (7-6)$$

$$E_d(k'', k') = \exp\{-\pi^2 \Delta_f^2 \lambda^2 (|k''|^2 - |k'|^2)^2 / 4\} \quad (7-7)$$

式(7-5)は、後焦点面の波 $F(k')$ 、 $F(k')$ が像面で干渉強度を作る際の、光学系が受け持つ応答を表している。式(7-5)の複素振幅の指数項は収差による位相差をあらわしており、続く 2 つの強度減衰を表す指数項は、角度空間の光源サイズ q_0 による部分干渉性、および、エネルギーブレッドに起因したデフォーカス重畳による部分干渉性を表している。式(7-1)に示すように、TCC を対物絞り内部の波すべての組みあわせに作用させて、像面の干渉強度を足し合わせたものが、TEM の像成分となる。 q_0 および Δ_f はそれぞれ式(2-32)および式(2-35)により、逆空間の光源サイズおよびデフォーカスの分布幅を表す。

7.2.2 球面収差補正に対応するための TCC の拡張

球面収差が補正されない状態では、分解能および結像を支配する収差は球面収差であるので、TEM 像のシミュレーションを行う際の TCC は、式(7-5)～式(7-7)を用いればよい。球面収差が補正された場合は、5 章の図 5-6 で得られる残収差が結像に寄与してくるので、これらの影響が考慮された TCC を用いて、像計算を行うことが必要となる。残収差は、収差による波同士の位相ズレと、光源サイズによる部分干渉性の両方に影響を与える。球面収差補正以前では、収差による位相ズレを表す関数 $\gamma(k)$ は 2 章の式(2-13)で与えられていたが、球面収差補正以降は、式(2-13)の $\chi(k)$ を、3 章の表 3-3 に挙げたすべての波面収差を含む形に変更すればよい。収差係数は複素角 ω と組み合わせて収差を表すこととする。複素空間周波数と複素角の関係は、以下のようになる。

$$k = k_x + ik_y \quad (7-8)$$

$$\omega = \lambda k \quad (7-9)$$

これらの関係により波面収差関数は、表 3-3 の収差をすべて考慮した以下の形式で与えられる。

$$\begin{aligned} \chi(k) = \text{Re} \{ & df|\omega|^2/2 + A_2 \omega^{*2}/2 + P_3 \omega \omega^{*2}/3 + A_3 \omega^{*3}/3 + C_s |\omega|^4/4 + S_4 \omega \omega^{*3}/4 \\ & + A_4 \omega^{*4}/4 + P_5 \omega^2 \omega^{*3}/5 + R_5 \omega \omega^{*4}/5 + A_5 \omega^{*5}/5 + C_5 |\omega|^6/6 + A_6 \omega^{*6}/6 \} \end{aligned} \quad (7-10)$$

残収差を含む位相ズレ $\gamma(k)$ は $\chi(k)$ より、ただちに得られる。

$$\gamma(k) = (2\pi/\lambda) \chi(k) \quad (7-11)$$

光源サイズによる部分干渉性の計算のために、 χ をテーラー級数の 1 次項までの展開で置き

換える。

$$\begin{aligned}\chi(k+q) &\approx \chi(k) + q\nabla\chi(k) \\ &= \chi(k) + (q_x, q_y)(\partial\chi(k)/\partial k_x, \partial\chi(k)/\partial k_y)\end{aligned}\quad (7-12)$$

式(7-2)の光源サイズに関する積分の箇所に、式(7-12)を適用して以下を得る。

$$\begin{aligned}\int s(q) t(q+k'')t^*(q+k')dq &= \exp(i\gamma(k'') - i\gamma(k')) \int s(q) \exp\{2\pi i q(\nabla\chi(k'') - \nabla\chi(k'))/\lambda\} dq \\ &= \exp(i\gamma(k'') - i\gamma(k')) \exp\{-\pi^2 q_0^2 (1/\lambda^2)|\nabla\chi(k'') - \nabla\chi(k')|^2\}\end{aligned}\quad (7-13)$$

通常の電子顕微鏡の光学系では、光源分布（0.1mrad～1mrad）が対物絞りサイズ(30mrad以上)と比較して、十分小さい。このような状況では、TCC の計算は対物絞り内部の波に関する波に限るとして、式(7-4)の絞り関数 $a(k)$ はあらわに表示しない。

式(7-13)の、 γ に関する指数項が、対物絞り内にある $F(k'')$ と $F(k')$ の位相ずれを表す。式(7-13)の χ に関する指数項は、強度の減衰を表す関数であり、このとき γ として式(7-10)の C_s と df の項のみ用いれば、収差補正が行われない場合に適用される式(7-9)と一致する。式(7-13)の $\nabla\chi$ は、式(3-1)および図 3-2 により、これを幾何収差 G と置き換えることができる。

$$\int s(q) t(q+k'')t^*(q+k')dq = \exp(i\gamma(k'') - i\gamma(k')) \exp\{-\pi^2 q_0^2 (1/\lambda^2)|G(k'') - G(k')|^2\}\quad (7-14)$$

式(3-1) は角度による微分であるので、これを空間周波数による微分で表すと以下のようになる。

$$\begin{aligned}G(k) &= \nabla\chi(k)/\lambda \\ &= df \omega + A_2 \omega^* + (2 P_3 \omega \omega^* + P_3^* \omega^2)/3 + A_3 \omega^{*2} + C_s \omega^* \omega^2 + (3 S_4 \omega^{*2} \omega \\ &\quad + S_4^* \omega^3) / 4 + A_4 \omega^{*3} + (3 P_5 \omega^2 \omega^{*2} + 2 P_5^* \omega \omega^{*3})/5 + (4 R_5 \omega \omega^{*3} \\ &\quad + R_5^* \omega^4) / 5 + A_5 \omega^{*4} + C_5 \omega^{*2} \omega^3 + A_6 \omega^{*5}\end{aligned}\quad (7-15)$$

エネルギーस्पレッドに起因したデフォーカス重量による部分干渉性は、収差補正電子顕微鏡においても、式(7-7)をそのまま用いることができる。

以上をまとめると、収差補正に適用される TCC は以下のように計算できる。

$$TCC(k'', k') = \exp(i\gamma(k'') - i\gamma(k')) E_j(k'', k') E_d(k'', k') \quad (7-16)$$

$$E_j(k'', k') = \exp\{-\pi^2 q_0^2 (1/\lambda^2)|G(k'') - G(k')|^2\} \quad (7-17)$$

$$Ed(k'', k') = \exp(-\pi^2 \Delta^2 \lambda^2 (|k''|^2 - |k'|^2)^2 / 4) \quad (7-18)$$

$\gamma(k)$ は、式(7-10)、式(7-11)により、 $G(k)$ は式(7-15)により、それぞれ得られる。 $\gamma(k)$ は波面収差を単純に加算したものを位相ズレに換算しただけである。式(7-17)が表す光源に関する部分干渉性に関しては、指数関数の指数部が、2つの干渉波 (k'' 、 k') に対応する幾何収差ベクトルの差の 2 乗となって表されている。この表現とその物理的解釈は、本研究においてはじめて明示された。光源による像の干渉性が、像点の移動を表す幾何収差により計算されるという結果は、干渉性が数学的に、少しずつ位置の異なる像強度の積算により表されていることと、理論的な整合性が見て取れる。式(7-16)、式(7-17)、および、式(7-18)により、TCC は具体的に計算できるので、このようにして得られる TCC を式(7-1)に適用することで、像のフーリエ変換 $I(k)$ が計算できる。 $I(k)$ を（逆）フーリエ変換することで得られる像は、弱位相物体近似によらない、かつ、収差補正状態のコヒーレンスが正しく計算された像となる。

7.3 収差補正 TEM 像の線型成分

第 2 章で議論したように、透過電子顕微鏡像(TEM 像)の線型結像成分の振舞いに関する理解から、顕微鏡の分解能が定義されている。前節で述べた TCC による非線型な結像成分の記述は、像のシミュレーションにおいて不可欠であるが、TCC による一律な分解能というものは定義できない。数値計算による像のシミュレーションに用いられるのが、TCC のほとんどの用途である。TEM の解像度の議論は、試料を弱位相物体に限定して（すなわち式(2-10)が適用できる程度に十分薄い）光学系が線型系として応答するような場合の結像を議論することになる。つまり、収差補正 TEM においても、弱位相物体のポテンシャルがどのようなコントラスト伝達関数で線型成分に変換されるかがわかれば、理想的試料に対する TEM の解像限界が得られると考えられる。収差補正がされない場合のコントラスト伝達関数は、2 章でその導出を述べたように、回転対称な実関数となる。波面収差として、式(7-10)に示すように任意の対称性を持ち得る場合は、コントラスト伝達関数は一般に複素数を与える関数となる。この場合伝達関数は、振幅部と位相部の積となり、振幅部が強度変調、位相部が位相変調を与える。以下に、収差補正 TEM 像の線型成分と試料の投影ポテンシャルを結び、コントラスト伝達関数を導出する。まず、弱位相物体の電子回折の複素振幅 $F(k)$ は、式(2-11)を再掲し、以下のようになる。

$$F(k) = \delta(k) - i\sigma \hat{V}_p(k) \quad (7-19)$$

$\delta(k)$ はデルタ関数、 σ は式(2-9)で得られる相互作用係数、 $\hat{V}_p(k)$ は試料投影ポテンシャルのフーリエ変換である。 $\hat{V}_p(k)$ は実関数のフーリエ変換であるので、式(2-18)を再掲し、複素共

役に関して以下の関係を持つ。

$$\hat{V}_p(k) = \hat{V}_p^*(-k) \quad (7-20)$$

弱位相物体の散乱を表す式(7-19)で得られる $F(k)$ を、一般の結像を表す式(7-1)に代入し、式(7-20)を用いることで、 $I(k)$ は弱位相物体の像成分を表す式となる。

$$\begin{aligned} I(k) &= \int TCC(k+k', k') (\delta(k+k') - i\sigma V_p(k+k')) (\delta(k') + i\sigma V_p^*(k')) dk' \\ &= i\sigma V_p(k) (TCC(0, -k) - TCC(k, 0)) \\ &\quad + \delta(k) (TCC(k, 0) + TCC(0, -k)) \\ &\quad + \int TCC(k+k', k') \sigma^2 V_p(k+k') V_p^*(k') dk' \end{aligned} \quad (7-21)$$

式(7-21)の第1項は像の線型成分、第2項は一樣強度を与えるバックグラウンド、第3項は非線型成分である。弱位相物体の定義上、非線型成分は無視できる強度しか持ち得ないので、式(7-21)の実質的な構成成分は、像の線型成分 $I_c(k)$ となる。

$$\begin{aligned} I_c(k) &= i\sigma V_p(k) (TCC(0, -k) - TCC(k, 0)) \\ &= \sigma V_p(k) B_c(k) E_d(k, 0) \end{aligned} \quad (7-22)$$

$$B_c(k) = i\{\exp(i\gamma(-k) - \pi^2 q_0^2 |G(-k)|^2) - \exp(i\gamma(k) - \pi^2 q_0^2 |G(k)|^2)\} \quad (7-23)$$

$B_c(k)$ は収差補正状態でのコントラスト伝達関数であり、逆空間の光源のサイズ q_0 による部分干渉性を含む形式となっている。 $B_c(k)$ は、収差補正されない場合 (式(2-39)および式(2-40)) を参考に、コントラスト伝達関数と部分干渉性の式の積 $\sin \gamma(k) \exp(-\pi^2 q_0^2 |df \lambda k + Cs \lambda^3 k^3|^2)$ に対応している。式(7-23)の右辺は、収差補正されない場合は Cs と df のみを含むので、 $\gamma(k)$ は回転対称な偶関数、 $G(k)$ は反対称な奇関数となり、結果として $\sin \gamma(k) \exp(-\pi^2 q_0^2 |df \lambda k + Cs \lambda^3 k^3|^2)$ というシンプルな表式で表される。式(7-23)の $\gamma(k)$ と $G(k)$ を、偶関数部 ($\gamma_e(k)$ 、 $G_e(k)$) と奇関数部 ($\gamma_o(k)$ 、 $G_o(k)$) に分けることで、伝達関数としての性質が見て取れやすい形式に表すことができる。

$$-\gamma(k) = \gamma_e(k) + \gamma_o(k) \quad (7-24)$$

$$G(k) = G_e(k) + G_o(k) \quad (7-25)$$

$$\gamma_e(k) = \gamma_e(-k), \quad \gamma_o(k) = -\gamma_o(-k) \quad (7-26)$$

$$G(k) = G_e(-k), \quad G_o(k) = -G_o(-k) \quad (7-27)$$

これらの対称性を用いることで、収差補正状態でのコントラスト伝達関数 $B_c(k)$ は双曲線関数を含む以下の形になる。

$$B_c(k) = 2 \exp(A) \exp(i \gamma_o(k)) \{ \sin \gamma_e(k) \cosh(B) + i \cos \gamma_e(k) \sinh(B) \} \quad (7-28)$$

$$A = -\pi^2 q_0^2 (|G_e(k)|^2 + |G_o(k)|^2) \quad (7-29)$$

$$B = -2\pi^2 q_0^2 (G_e(k) \cdot G_o(k)) \quad (7-30)$$

ここで、各収差の対称性は以下のように分類される。

偏向(P_1)、coma(P_3)、3 回非点(A_3)、4 次 coma、
three-lobe(R_5)、5 回非点



$\gamma_o(k)$ 、 $G_e(k)$

デフォーカス(df)、2 回非点(A_2)、球面収差(C_s)、
Star(S_4)、4 回非点(A_4)、5 次球面収差 C_5 、6 回非点(A_6)



$\gamma_e(k)$ 、 $G_o(k)$

一般の認識として、波面収差で偶関数となるものは (df, C_s 等) 伝達関数として、強度の変調を与えるとされている。これは、式(7-28)において、 $\sin \gamma_e(k)$ として表されている。また、波面収差で奇関数となるものは (coma, 3 回非点等) 伝達関数として強度に影響を与えず位相変化を引き起こすとされていた[11],[12]。これは、式(7-28)において、 $\exp(i \gamma_o(k))$ として表されている。つまり像のパワースペクトルにより、波面収差で偶関数となるものは検出されるが、波面収差で奇関数となるものは検出されないとされている。ところが、収差補正 TEM の伝達関数として導出された式(7-28)においては、 q_0 による部分干渉性を表す項の $\exp(A)$ に関して、明らかに波面収差で奇関数となるものが、伝達関数として強度変調を与えている。また、 $i \cos \gamma_e(k) \sinh(B)$ により、波面収差で偶関数となるものが位相変化を引き起こすことを示している。このように、 q_0 による部分干渉性を収差補正 TEM に適用することで、従来の結像解釈では説明されていない像成分が、新たに見出だされた。

7.4 収差補正 TEM 像の伝達関数の計算

式(7-28)で与えられるコントラスト伝達関数 $B_c(k)$ により、試料ポテンシャル $V_p(k)$ は、位相変調と振幅変調をうけて、式(7-22)により像成分 $I(k)$ に転化する。式(7-22)には色収差による振幅変調 $Ed(k, 0)$ も含まれるが、像がポテンシャルをどの程度に反映したものであるかは、第一に $B_c(k)$ で決まる。色収差による振幅変調 $Ed(k, 0)$ は、回転対称な減衰関数であり、残

収差が十分補正された状況での分解能を与える。収差補正装置は一般に、式(7-10)に含まれる各種収差の補正手段を備えている。どの収差がどの程度ある場合、伝達特性はどうなるかを、 $B_c(k)$ を具体的に計算することで可視化できる。

7.4.1 偶関数波面収差 $\gamma_e(k)$ による $B_c(k)$

$\gamma_e(k)$ （偶関数波面収差）について計算した $B_c(k)$ を（したがって幾何収差は奇関数 $G_o(k)$ となる）2次元フーリエ空間のパワースペクトルとして図 7-1 に示す。各偶関数波面収差が単一に存在するとし、各収差の大きさは、2 回非点 $A_2=10\text{nm}$ 、4 回非点： $A_4=10\mu\text{m}$ 、スター： $S_4=10\mu\text{m}$ 、6 回非点： $A_6=2.0\text{mm}$ 、5 次球面収差： $C_5=2.0\text{mm}$ である。各収差の位相角(方向)はすべて 0 度とした。

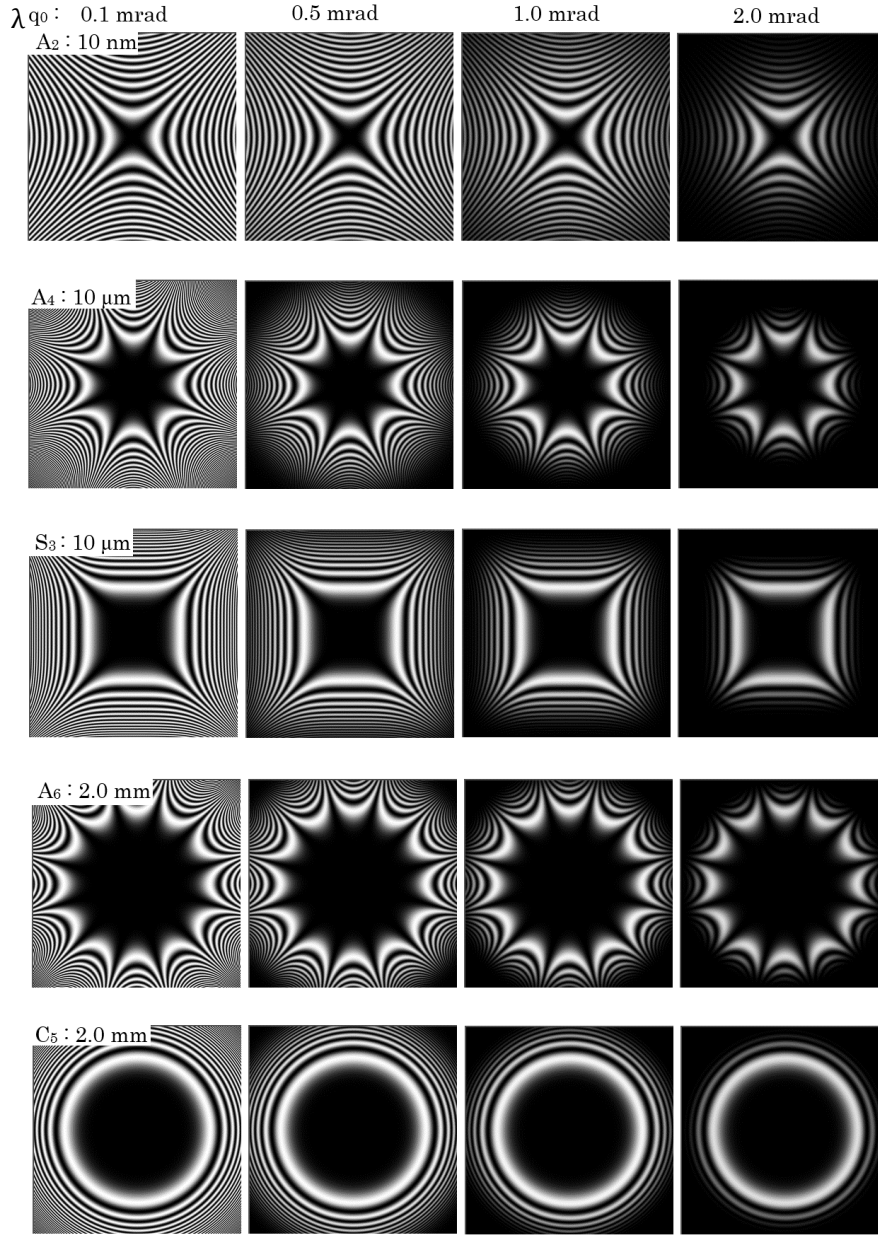


図 7-1 偶関数波面収差 $\gamma_e(k)$ （すなわち奇関数幾何収差 $G_o(k)$ ）により計算した $B_c(k)$ のパワースペクトル。 λ_{q0} が大きくなることで部分干渉性の低下がみられる。フリンジ収差である S_4 が 4 回対称のダンピングを示している。プライマリー収差は全て回転対称のダンピングを示す。ナイキスト周波数は 20.0 nm^{-1} である。

図 7-1 では、各行が各収差に対応しており、1 列から 4 列までに、 λq_0 の値が 0.1mrad, 0.5mrad, 1.0mrad, 2.0mrad として計算したものを対応させている。 λq_0 は光源の試料に対する見込み角などと呼ばれることもある。あるいは単に照射角などとも呼ばれるが、これは収束電子回折における収束角とは、物理的な意味が異なるので注意を要する。偶関数波面収差のみの場合は、 $\gamma_o(\mathbf{k})=0, G_e(\mathbf{k})=0$ であるので、式(7-30)により B はゼロとなる。式(7-28)により $B_c(\mathbf{k})$ は以下の実関数となる。

$$B_c(\mathbf{k}) = 2 \exp(-\pi^2 q_0^2 (|G_o(\mathbf{k})|^2)) \sin \gamma_e(\mathbf{k}) \quad (7-31)$$

2 章にて述べた、式(2-30)と式(2-33)による伝達関数と干渉性は、偶関数波面収差に対応した式(7-31)において、さらにこれを C_s と df に限定した形式である。

図 7-1 においては、各収差の対称性に依存した強度変調が明確に表れている。ここで、プライマリー収差(A_2, A_4, A_6)については、部分干渉性によるエンベロープ(envelope) 関数が、回転対称に減衰しているのがわかる。これは、式(7-15)より、対応する幾何収差が $A_n \omega^{*n-1}$ という形式になるので、その 2 乗が回転対称な形式 $|G|^2 = |A_n|^2$ となり、式(7-29)の A に対称性が反映されることがより理解できる。一方、フリッジ収差である S_4 は 4 回対称のエンベロープ(envelope) 関数が作用しているのが明確に見て取れる ($\lambda q_0=1.0\text{mrd}$ が見分けやすい)。これは、対応する幾何収差が $G=(3 S_4 \omega^{*2} \omega + S_4^* \omega^3)/4$ であるので、 $|G|^2$ に関して ($\omega^{*4} + \omega^4$) に比例する 4 回対称性を示す成分が残ることで理解できる。より、直感的には、式(3-45)で一般に表される波面収差の対称性は $\sin \gamma_e(\mathbf{k})$ の対称性となり、フリッジ収差の場合は波面収差の 2 乗の対称性がエンベロープ関数の対称性となると考えてよい。

7.4.2 奇関数波面収差 $\gamma_o(\mathbf{k})$ による $B_c(\mathbf{k})$

$\gamma_o(\mathbf{k})$ (奇関数波面収差) について計算した $B_c(\mathbf{k})$ を (したがって幾何収差は偶関数 $G_e(\mathbf{k})$ となる) 図 7-2、図 7-3、図 7-4、図 7-5 および図 7-6 に示す。ただし、偶関数収差が完全にゼロになると、像の伝達関数がゼロとなり像が形成されない (弱位相物体の完全結像)。よって、 $C_s=1\mu\text{m}$ および $df=-18\text{nm}$ のわずかな $\gamma_e(\mathbf{k})$ を結像成分とし与えている。結像成分に加えて、単一の奇関数波面収差が存在する場合の計算を、各図において行っており、図 7-2 は 3 回非点 : $A_3=2\mu\text{m}$ 、図 7-3 はコマ : $P_3=2\mu\text{m}$ 、図 7-4 は 5 回非点 : $A_5=0.2\text{mm}$ 、図 7-5 は three-lobe : $R_5=0.2\text{mm}$ 、図 7-6 は 4 次コマ : $P_5=0.2\text{mm}$ 、という対応関係になっている。各収差の位相角(方向)はすべて 0 度とした。各図は、各収差による $B_c(\mathbf{k})$ を 2 次元フーリエ空間で表しており、図の 1 行目、2 行目、3 行目に、それぞれ、パワースペクトル、実部、虚部を表示している。奇関数波面収差による $B_c(\mathbf{k})$ は、複素数を与える関数となるため、これを表現するには、実部、虚部を用いた。各図とも、ナイキスト周波数は 20.0 nm^{-1} である。

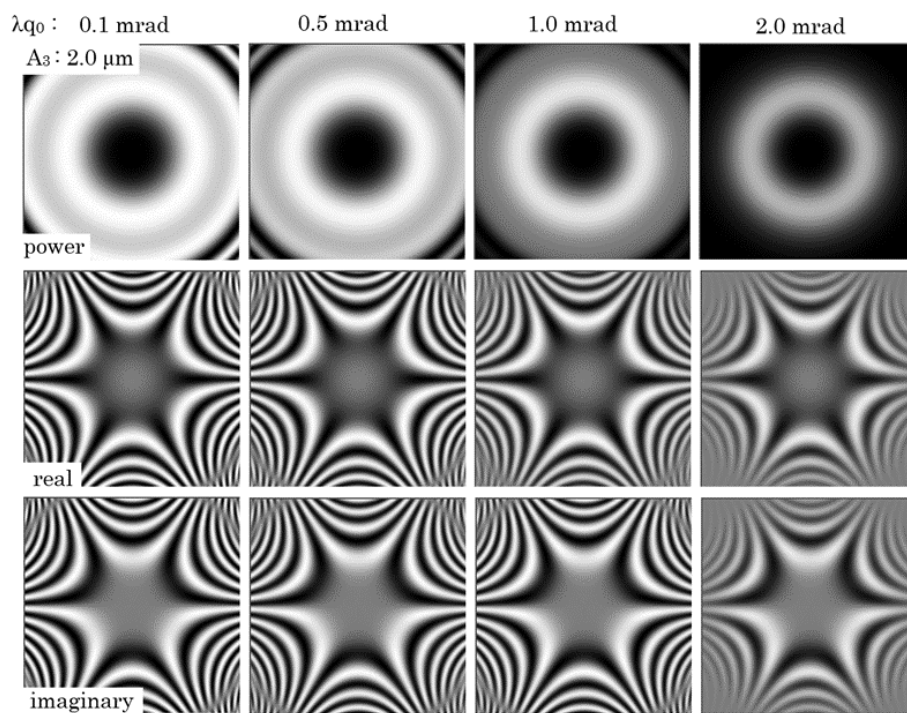


図 7-2 3 回非点 : $A_3=2\mu\text{m}$ による $B_c(k)$ 、結像成分は ($C_s=1\mu\text{m}$, $df= -18\text{nm}$)

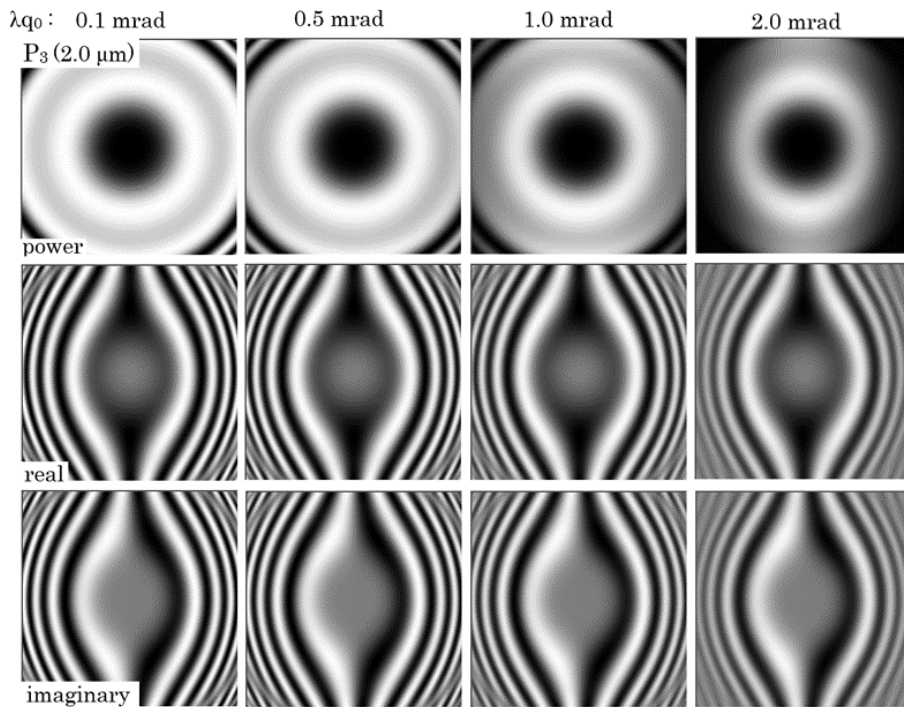


図 7-3 コマ : $P_3=2\mu\text{m}$ による $B_c(k)$ 、結像成分は ($C_s=1\mu\text{m}$, $df= -18\text{nm}$)

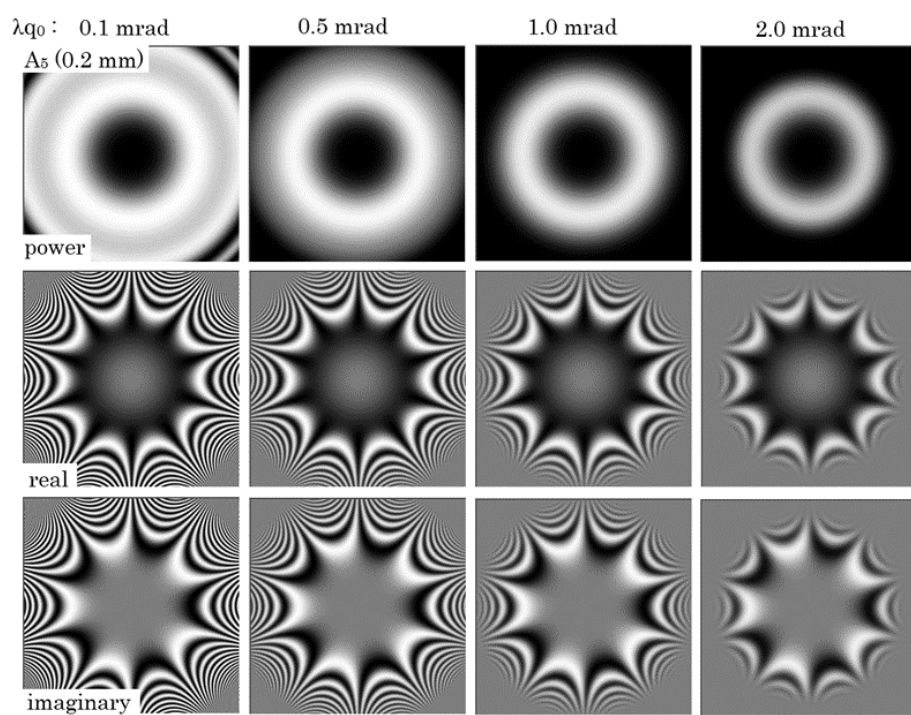


図 7-4 5 回非点: $A_5=0.2\text{mm}$ による $B_c(k)$ 、結像成分は ($C_s=1\mu\text{m}$, $df=-18\text{nm}$)

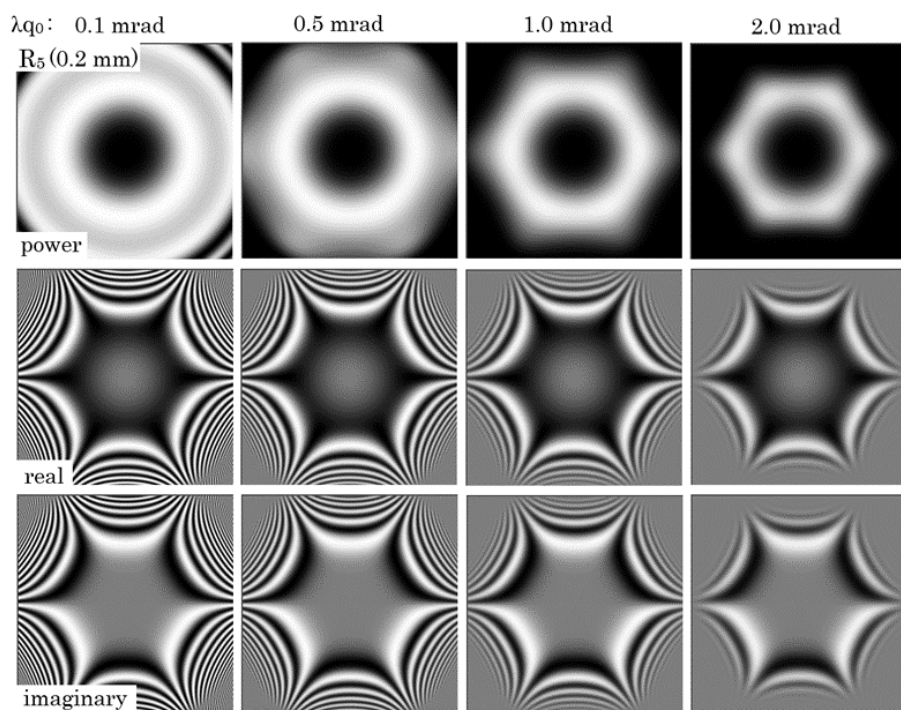


図 7-5 Three lobe: $R_5=0.2\text{mm}$ による $B_c(k)$ 、結像成分は ($C_s=1\mu\text{m}$, $df=-18\text{nm}$)

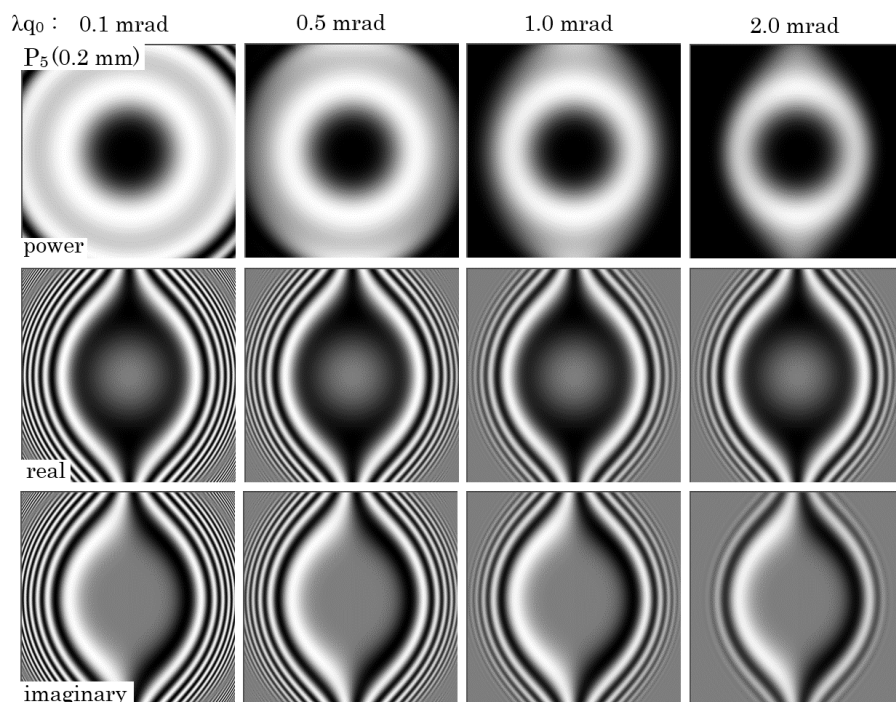


図 7-6 4 次コマ : $P_5=0.2\text{mm}$ による $B_c(k)$ 、結像成分は ($C_s=1\mu\text{m}$, $df= -18\text{nm}$)

図 7-2～図 7-6 において、各収差の対称性に依存した位相変調が明確に表れている。位相変調は、強度に対しては変化を与えないため、部分干渉性が良好な状況下($\lambda q_0=0.1\text{mrad}$)では、パワースペクトルにおいては収差が見分けられない。すなわち、観察時に **diffractogram** には良好な伝達特性が与えられているかの如く誤解される状況である。しかしながら、**real** と **imaginary** は、すべての図において明確に変調を受けており、収差による誤った情報が像に現れることになる。この点において、奇数次波面収差は、**diffractogram** に明確に現れる偶数次波面収差と比べて、やっかいな収差といえる。

部分干渉性が低下してくるにしたがって ($\lambda q_0 \leq 0.5\text{mrad}$)、奇数次波面収差においてもパワースペクトルにその影響が現れてくる。ここで、プライマリー収差(A_3, A_5)については、部分干渉性によるエンベロープ(envelope)関数が、回転対称に減衰しているのがわかる。これは、偶関数波面収差の場合と同様で、式(7-15)より、対応する幾何収差が $A_n \omega^{*n-1}$ という形式になることにより、式(7-29)の A に回転対称性が現れた結果と理解できる。一方、フリンジ収差である P_3 、 R_5 および P_5 は、それぞれ、2 回対称、6 回対称および 2 回対称のエンベロープ(envelope)関数が作用しているのが明確に見て取れる ($\lambda q_0=1.0\text{mrd}$ のパワースペクトルにおいて見分けやすい)。これも偶関数波面収差の場合と同様で、フリンジ収差においては波面収差の 2 乗の対称性がエンベロープ関数の対称性となる。

弱位相物体の結像では、試料直下の波が像面で完全に再現されると、入射波の強度分布が像となるのみで、位相項に付加されている試料情報は全く得られない。奇関数波面収差 $\gamma_o(k)$ の評価のためには、結像成分として $C_s=1\mu\text{m}$, $df= -18\text{nm}$ による $\sin \gamma_e(k)$ を同時に与えてい

るが、奇関数波面収差 $\gamma_o(\mathbf{k})$ の特徴的な振舞いがこれにより阻害されることはなく、むしろ明らかになる。実際の TEM 像観察において、収差補正状態の結像成分の最適化は目的の試料に依存する。TEM 像観察においては、意図的にわずかな球面収差 C_s を残して、これとデフォーカス df と組み合わせて得られる伝達関数を自ら設定するなどの対応法が考えられる。さらに、5 次の球面収差を加えて、伝達関数の欠点ともいえる低周波成分の応答性を回復させる等の手法も考えられる。

7.4.3 df 、 A_3 、 P_3 による $B_c(\mathbf{k})$

実際の残収差には、 $\gamma_e(\mathbf{k})$ と $\gamma_o(\mathbf{k})$ が混在しており、 $B_c(\mathbf{k})$ は複雑な対称性を示す場合がある。図 7-7 にデフォーカス： $df=-10.0$ nm、コマ： $P_3=1.0\mu\text{m}/\theta_{P3}=0^\circ$ 、3 回非点： $A_3=1.0\mu\text{m}$ 、 $\lambda q_0=1.0$ mrad にて計算した $B_c(\mathbf{k})$ を示す。図のナイキスト収差数は 20.0 nm^{-1} である。図の 1 列から 4 列が、それぞれ、3 回非点の向き θ_{P3} が 0° 、 15° 、 30° 、 45° に対応する。

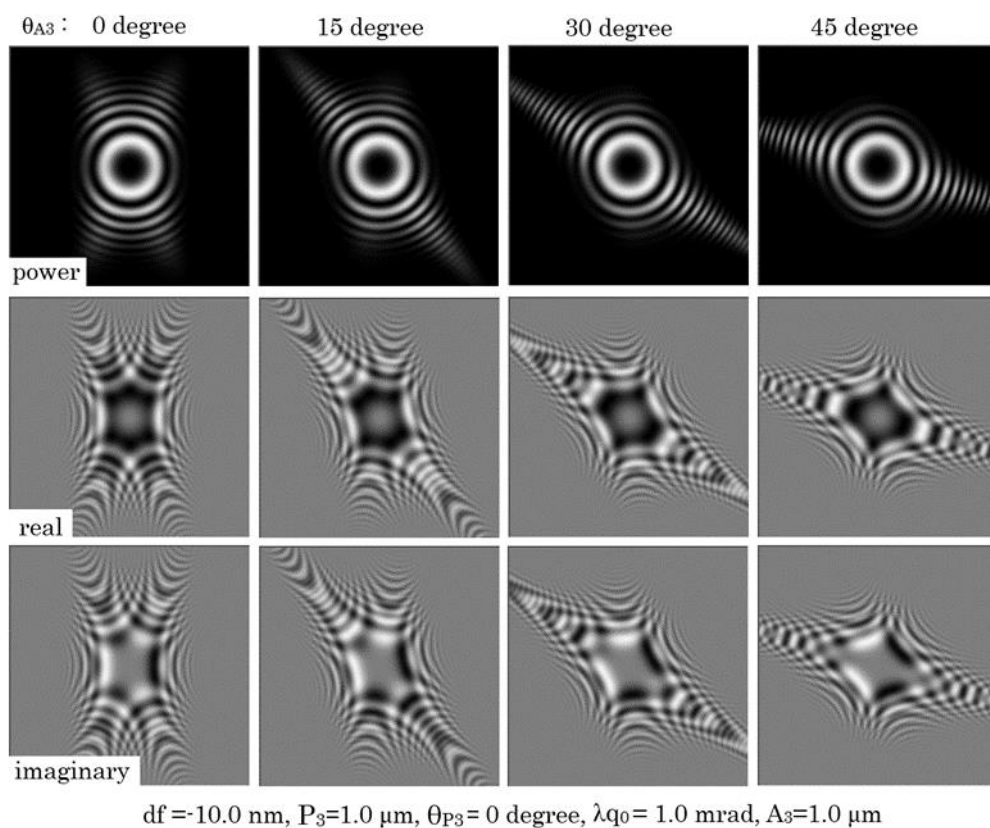


図 7-7 デフォーカス、コマおよび 3 回非点による、複雑な対称性の $B_c(\mathbf{k})$

図 7-7 のようなパワースペクトルは、試料ドリフトや振動および電気ノイズなどにより、撮像中に試料が外乱を受けた場合に見られるものと理解されていた。3 列目や 4 列目において明確にみられるように、特定方向のみに情報伝達がなされ、それ以外の方向は激しい情報損失が起きている。外乱の方向と直行した周波数ベクトルのみが、伝達される場合にこのようなスペクトルパターンが現れることが知られており、光学的要因によるこのような情報伝達は議論されたことがなかった。図 7-7 のシミュレーションにより、コマ P_3 と 3 回非点 A_3 が、 q_0 による部分干渉性と相乗して、このような特徴的なパターンを生じさせる場合があることが分かった。

7.5 相互透過係数 TCC による収差補正 TEM 像のシミュレーション

収差補正 TEM 像のシミュレーション計算例を、図 7-8、および、図 7-9 に示す。試料内部の動力的計算は、マルチスライス法を用いて行った。マルチスライス法により計算された試料からの射出波に対して、式(7-16)、式(7-17)、式(7-18)を用いて結像計算を行った。ここでは、収差補正 TEM 像計算のために導出したこれらの結像式の特徴を示すために、奇数次波面収差が残存する場合を想定したシミュレーション計算を行った。

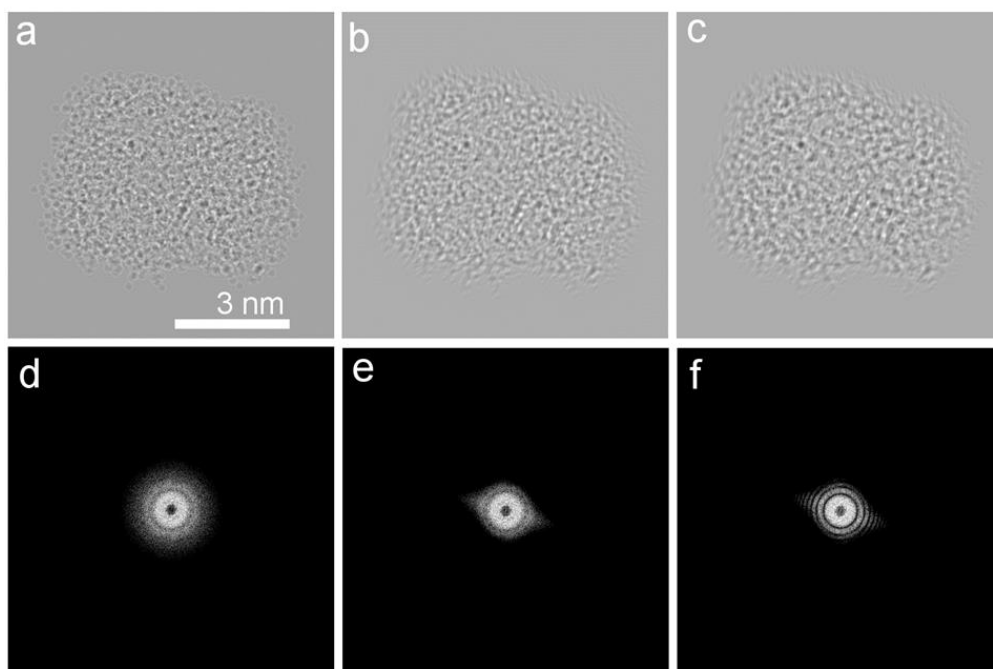


図 7-8 Hemoglobin (ヒトのヘモグロビン)の収差補正 TEM 像シミュレーション

図 7-8 にヒトのヘモグロビンの、シミュレーション TEM 像を示す。以下の計算条件を用いて計算した。

表 7-1 Hemoglobin 収差補正 TEM 像 の計算条件

“*スライス厚さ” とはマルチスライス法に用いる、試料厚みの計算単位

加速電圧： $U = 200 \text{ kV}$

球面収差係数： $C_s = 0$

焦点はずれ： $df = -10 \text{ nm}$

色収差係数： $C_c = 1.5 \text{ mm}$

エネルギーブレッド: $de = 0.1 \text{ eV}$

逆空間光源サイズ: $\lambda q_0 = 1.0 \text{ mrad}$

残収差： (a) df 以外なし

(b) $df, A_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{A3} = 45^\circ, P_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{P3} = 0^\circ$

(c) $df, A_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{A3} = 45^\circ, P_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{P3} = 0^\circ$

*スライス厚さ： (a) 0.5 nm

(b) 0.5 nm

(c) 6 nm

Hemoglobin 試料構造： PDB(Protein data bank) による。

図 7-8 の(a),(b),(c)は上記条件で計算した収差補正 TEM 像であり、(d),(e),(f)は、それぞれ各計算像のパワースペクトルである。近年、タンパク質の単粒子解析が盛んに行われるようになり、収差補正 TEM を用いた報告もなされるようになった。単粒子解析においては、任意の投影方向から撮影された数万枚以上の TEM 像をもとに、試料構造を再構成する手法がとられている。このような解析においては特に、残収差の像に対する影響を正確に把握しておくことが重要となる。残収差なしの(a)の像と、残収差が存在する (b),(c)の像では、細部において異なる像が得られており、 $A_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{A3} = 45^\circ, P_3 = 1 \mu\text{m} / \theta_{P3} = 0$ の撮影条件で実験を行った場合は、このような異なりを持って再構成することになる。再構成にあたっては、得られた像のパワースペクトルから伝達関数を推定して、コンボリューションを行う補正が行われるが、(d)と(e)ではパワースペクトルが明確に異なっている。また、(e)の残収差は、図(7-7)の 4 列目と同じである。つまり、パワースペクトルから伝達関数を推定するには、実部と虚部を分離するための工夫が必要になる。図 7-8 の(b)と(c)は、スライスの

厚さが、それぞれ 0.5nm と 6.0nm として計算されており、その他の計算条件は同じである。(b)におけるスライスの厚さが 0.5nm の計算は、試料の厚み (6nm 程度) が考慮された計算となっている。これに対して、(c)におけるスライスの厚さが 6 nm の計算は、試料の厚さと同じ程度のスライス厚みとなっており、試料が厚みを持たない投影ポテンシャルとみなされた計算になっている。(f)のパワースペクトルは、図 7-7 の 4 列目のパワースペクトルをほぼ再現しており、このことは式(7-28)による線型成分の伝達関数と式(7-16)の一般式に矛盾がないことを示している。また、(f)のパワースペクトルと、図 7-7 の 4 列目のパワースペクトルの不一致は、試料ポテンシャルが像強度に線型に現れるとみなせる考えの、適用限界を示唆している。これは、厚さ 6nm の生体試料においての多重散乱の問題ではなく、試料の上部から下部で、デフォーカス連続的に異なることに起因した問題である。

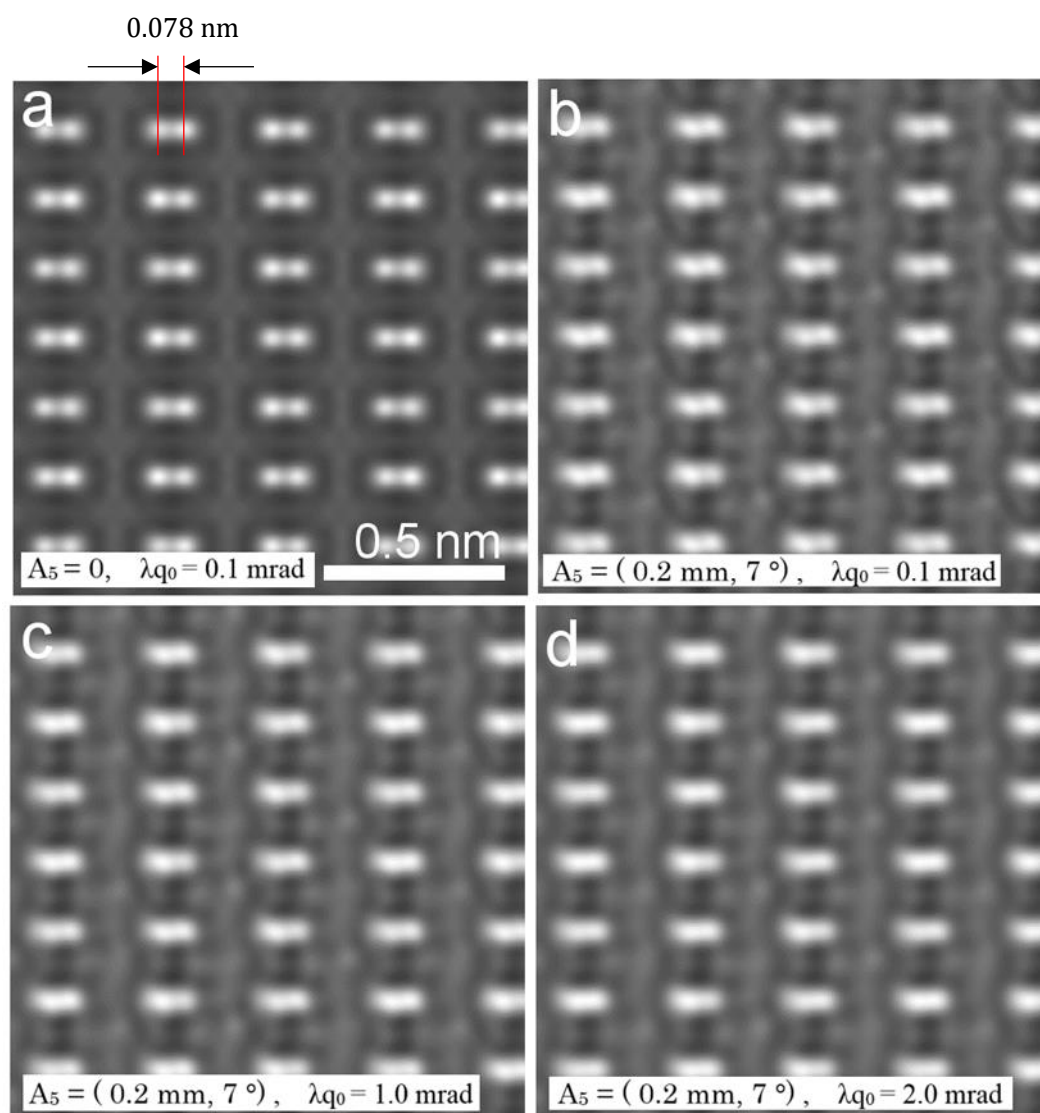


図 7-9 Si 単結晶 [211] の収差補正 TEM 像シミュレーション

図 7-9 に Si 結晶 [210] 方位の、シミュレーション TEM を示す。以下の計算条件を用いて計算した。

表 7-2 Si [211] 収差補正 TEM 像 の計算条件

加速電圧：	U= 200kV
球面収差係数：	Cs= 0
焦点はずれ：	df = -0.2 nm
色収差係数：	Cc = 1.5 mm
エネルギーブレッド:	de=0.1 eV
逆空間光源サイズ：	(a) $\lambda_{q_0}=0.1$ mrad
	(b) $\lambda_{q_0}=0.1$ mrad
	(c) $\lambda_{q_0}=1.0$ mrad
	(d) $\lambda_{q_0}=2.0$ mrad
残収差：	(a) df 以外なし
	(b) ,(c),(d) df, $A_5=0.2$ mm/ $\theta_{A5}=7^\circ$
*スライス厚さ：	0.1 nm
試料	: Si [211], 5 nm

図 7-9 の(a)は残収差が df 以外にない場合において、df = -0.2 nm として計算した像である。(a)においては、原子位置が白いコントラストで与えられており、表 7-2 の(a)に対応する撮像条件で、Si[211]の投影構造 (0.078 nm の投影原子間距離となる) が得られることをシミュレーションとして示している。構造像を得るための適正 df の値は、試料構造、試料の厚さ、加速電圧等によって異なるので、このようなシミュレーション計算が必要となる。

図 7-9 の(b),(c),(d)は、残収差として 5 回非点が存在する場合($A_5=0.2$ mm, $\theta_{A5}=7^\circ$)のシミュレーション像である。(b) ,(c),(d)はそれぞれ 逆空間での光源サイズによる部分干渉性が、 $\lambda_{q_0}=0.1$ mrad, $\lambda_{q_0}=1.0$ mrad, $\lambda_{q_0}=2.0$ mrad と低下してゆく様子を計算したものである。(a)においては、原子位置に対応した白いコントラストが得られていたものが、(b),(c),(d)においては、奇数次波面収差により原子位置が歪みをもって写像されている。(b)の条件である $\lambda_{q_0}=0.1$ mrad の計算においては干渉性の劣化が少なく、投影原子距離 0.078 nm が分解されているが、(d)の条件である $\lambda_{q_0}=2.0$ mrad においては干渉性の劣化が大きく、投影原子距離 0.078 nm はほとんど分解されていない。(b),(c),(d)の一連のシミュレーションは、奇数次波面収差でも光源サイズによる部分干渉性との相乗により、情報損失が起きることを示し

ている。

7.6 GPU を利用した並列計算による高速シミュレーション

7.6.1 背景

GPU(graphics processing unit)とは、数百～数千個の単位演算素子が集積された構造を持ち、コンピュータの発展に伴って複雑精緻化したグラフィックスを、CPU(central processing unit)タスクから切り離して高速に描画を行う目的で開発された並列演算ユニットである。GPU に集積されている単位演算素子は、CPU のような複雑な処理は行えないが、四則演算はもちろん三角関数、指数関数等の初等関数の計算は問題なく行える。科学技術計算において、CPU によりこれらの計算を膨大な回数、繰り返して行うことで多大な計算時間を要する場合、計算部分のコードを GPU に並列処理させることで、驚異的な計算時間の短縮が可能となる。グラフィックス描画に限らないこのような GPU の利用方法は、GPGPU (general purpose computing on graphics processing unit)と呼ばれ、各科学分野において目覚ましい成果が報告されつつある[13]。

前節で述べた電子顕微鏡像シミュレーション計算を行う場合も、計算条件によってはかなりの時間コストを要する。すでに述べたように、試料内部の動力的電子回折は、マルチスライス法を用いる。マルチスライス法で行う計算とは、 n 番目のスライスによる波の位相変化の計算と $n+1$ 番目のスライスまでの波の自由伝播の計算を 1 サイクルとし、これを入射スライスから射出スライスまで繰り返し計算することで、最終スライスにおける射出波の振幅と位相を求める手法である。波の位相変化は、いわゆる画素間演算と同等であり、スライス間の自由伝播はコンボリューション演算と同等である。コンボリューションは、FFT(高速フーリエ変換 : fast Fourier transform)を利用しての、逆空間における乗算として計算するほうが一般に高速である[14]。よって、スライス間の波の伝播は、画素間演算-フーリエ変換-逆空間での乗算-逆フーリエ変換、という手順で行う場合が多い。1 スライスの計算においての計算コストは、おおむね 2 回分の FFT による負荷となる。また、各スライスによる位相変化を表す 2 次元関数は、位相格子と呼ばれ、スライスに投影されたポテンシャルの DFT(離散フーリエ変換,discrete Fourier transform)を求めて計算される。この場合データ点数はスライス間に含まれる原子数で決まるので、FFT アルゴリズムは利用できない。TEM 像のシミュレーション計算においては、例えば、10 nm の厚さの試料を 0.1 nm のスライスで計算すると、100 枚のスライス計算を行うこととなり、おもな計算コストは、200 回の FFT、100 回の DFT となる。試料が結晶の場合、スライスの厚みを Z 方向の繰り返し距離とすれば、位相格子は 1 種類で済み DFT は実質 1 回である。試料が生体試料のような非晶質の場合は、異なる位相格子が数百枚必要となり、数百回の DFT 計算が必要となる。したがって生体試料のマルチスライス計算においては、一般的なパーソナルコンピュータの CPU 計算だと、数時間の計算時間を要することもある。

7.6.2 マルチスライス法の概要

マルチスライス法とは、試料内部での電子波の動力的散乱を計算する手法である。この手法により、結晶、非晶質を問わず、動力的効果を考慮した複素振幅を数値計算により求めることが可能である。

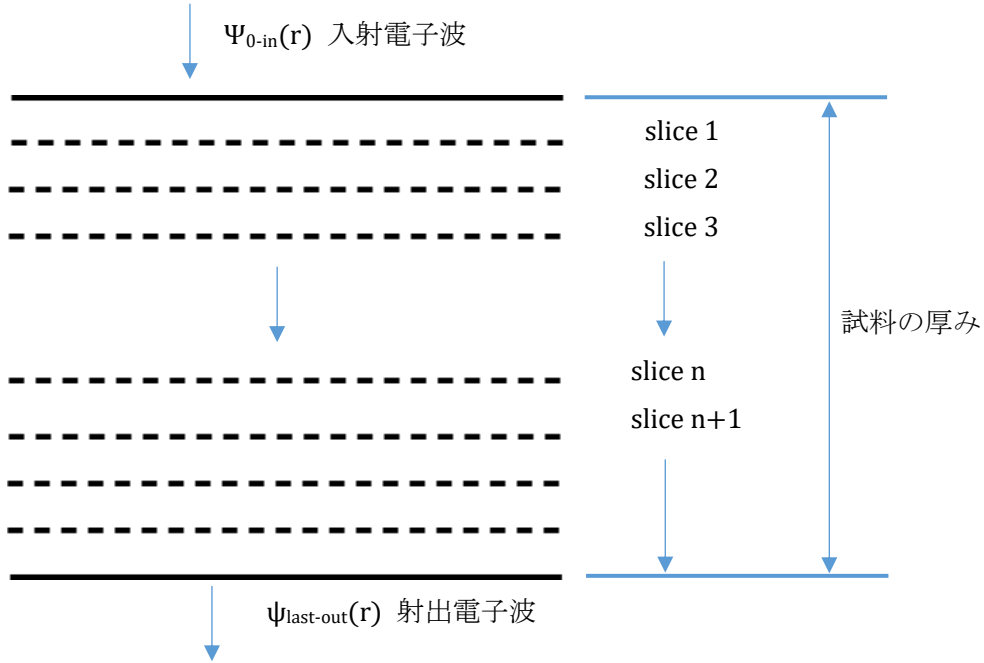


図 7-10 マルチスライス法の説明図

マルチスライスの計算手順を以下に述べる。

1. 試料の slice 分割と、slice へのポテンシャル投影

試料を電子波の進行方向に沿って仮想的 slice に分割する。通常は、数 Å 程度の slice 間隔で等分割される。結晶の場合は、等価点の間隔で分割される場合が多い。非晶質の場合は任意間隔となる。各 slice 間に存在する試料原子による電位分布を、slice 平面に投影する。投影電位とそのフーリエ変換を $V_p(r)$ 、および、 $\hat{V}_p(k)$ とすると、 $V_p(r)$ は以下のように与えられる。

$$\hat{V}_p(k) = \frac{h^2}{2\pi m e} \sum \exp(2\pi i k r_{atm}) f(s) \quad (7-32)$$

$$V_p(r) = FT^{-1}[\hat{V}_p(k)] \quad (7-33)$$

式 (7-32) においては、投影される空間内に存在する原子についての総和をとるものとし、 $\mathbf{k}$ は 2 次元逆空間のベクトル、 $\mathbf{r}_{\text{atm}}$ は原子の位置ベクトル、 f は原子散乱因子であり通常 $s=|\mathbf{k}/2|$ をパラメータとする。 h はプランク定数、 m は電子の静止質量、 e は素電荷である。

2. Slice による電子波の位相変化

試料を構成する原子は slice 面に静電ポテンシャルとして投影され、各 slice 間は真空とみなす。入射電子波に対して slice は、投影ポテンシャルによる位相格子として働くと考ええる。 n 番目の slice に投影されたポテンシャルを $V_{n-p}(\mathbf{r})$ とする。相互作用係数を σ とする (σ は投影電位を位相差に換算する定数: 2.4 節)、位相格子 $q_n(\mathbf{r}) = \exp(-i\sigma V_{n-p}(\mathbf{r}))$ は、電子に対して振幅は変えずに、以下のように位相変化のみを与える。

$$\begin{aligned}\psi_{n\text{-out}}(\mathbf{r}) &= q_n(\mathbf{r})\psi_{n\text{-in}}(\mathbf{r}) \\ &= \exp(-i\sigma V_{n-p}(\mathbf{r}))\psi_{n\text{-in}}(\mathbf{r})\end{aligned}\quad (7-34)$$

ここで $\psi_{n\text{-in}}(\mathbf{r})$ 、および、 $\psi_{n\text{-out}}(\mathbf{r})$ は、それぞれ、 n 番目の slice に関する入射、および、射出の電子波である。ここで、 σ の以下の関係を用いると、 $\sigma V_{n-p}(\mathbf{r})$ を求める計算において、無駄な項を消去できる。

$$\sigma = \frac{2\pi m e \lambda}{h^2 \sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}\quad (7-35)$$

$$\begin{aligned}\sigma V_{n-p}(\mathbf{r}) &= \text{FT}^{-1}[\sigma \hat{V}_p(\mathbf{k})] \\ &= \text{FT}^{-1}\left[\frac{\lambda}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \sum \exp(2\pi i \mathbf{k} \mathbf{r}_{\text{atm}}) f(s) \right]\end{aligned}\quad (7-36)$$

3. Slice から slice への電子波の伝播

電子の波は n 番目の slice 面で式 (7-34) で表される位相変化を与えられ、 $n+1$ 番目のスライスまで Huygens の原理に従い真空を伝播すると考える。 N 番目のスライスの射出波を $\psi_{n\text{-out}}(\mathbf{r})$ とし、 $n+1$ 番スライスへの入射波 $\psi_{n+1\text{-in}}(\mathbf{r})$ への伝播は、以下のようになされる。

$$\psi_{n+1\text{-in}}(\mathbf{r}) = \psi_{n\text{-out}}(\mathbf{r}) \otimes p_r(\mathbf{r})\quad (7-37)$$

$$p_r(r) = \frac{i}{t\lambda} \exp(-\frac{i\pi}{t\lambda} r^2) \quad (7-38)$$

ここで、 t はスライスの間隔、 $\otimes$ はコンボリューションを表す。 $p_r(r)$ は伝播関数と呼ばれる。式(7-37)の計算はコンボリューション定理(convolution theorem)を用いて、以下のように計算される場合が多い。

$$\psi_{n+1-in}(r) = FT^{-1}[FT[\psi_{n-out}(r)] \hat{p}_r(k)] \quad (7-39)$$

$$\begin{aligned} \hat{p}_r(k) &= FT[p_r(r)] \\ &= \exp(i\pi t\lambda k^2) \end{aligned} \quad (7-40)$$

ここで、 FT, FT^{-1} はフーリエ変換、および逆フーリエ変換を表す。 $\hat{p}_r(k)$ は伝播関数を逆空間で表現した形式である。

4. 繰り返し計算により射出波を得る

1 番目 slice の入射波 $\psi_{0-in}(r)$ は、TEM の場合は平面波 $\psi_{0-in}(r)=1$ 、STEM の場合は式(2-45)により $\psi_{0-in}(r)=\Psi_s(r)$ となる。 $\psi_{0-in}(r)$ が与えられれば、式(7-34)、式(7-35)または式(7-38) の操作を繰り返すことで、最終 slice の射出波すなわち結晶下面の射出波を得ることができる。最終 slice の射出波を $\psi_{last-out}(r)$ とすると、式(7-1)の F は $\psi_{last-out}(r)$ のフーリエ変換で与えられる。

$$F(k) = FT[\psi_{last-out}(r)] \quad (7-41)$$

マルチスライス法での、簡単な結晶試料の計算では、式(7-39)における2回のフーリエ変換（逆変換）が主な計算負荷となり、これを slice の数だけ繰り返すことになる。複雑な結晶、スーパーセル、非晶質モデルの計算では、各位相格子に異なる投影ポテンシャルが配置されるため、式(7-32)、式(7-33)の負荷が急激に大きくなる。特に、生体試料タンパク質の像計算は含まれる原子数が数十万～以上となってくるので、式(7-32)に含まれる総和計算の負荷が、主要負荷となる。

7.6.3 GPU による像シミュレーション計算の並列化

収差補正電子顕微鏡で得られる像を正しく計算する目的で、6章に述べたように TCC による像計算の見直しを行い、収差補正条件で必要となる収差すべてに対応できるようになっ

た。新たな TCC を導出しこれを用いることで、収差補正電子顕微鏡像で得られる像のシミュレーション計算が行えるようになった。TCC の計算は波の数の二乗に比例する要素のコンボリューション計算である。計算を収差補正に対応させたことで、収差量が数十倍に増えたため、計算負荷は相当量大きくなった。もともと、TEM 像シミュレーション計算の時間コストは、実時間計算には向かない程度に大きく、離散フーリエ変換を、数十回～数千回、STEM においては数百万回～繰り返すことが必要である。これらの計算の時間コストは、CPU による単純計算の膨大な繰り返し処理に費やされる。

CPU により、たとえば計算パラメータ i を変化させながら、 i に関する同じ計算 Func を n 回繰り返し行うとする。これは C 言語を例として以下のように処理される。

CPU による逐次処理：

CPU は逐次動作が基本の素子である（マルチコア搭載技術により、数個程度の並列動作は可能であるが、ここではシングルコアによる計算を例とする）。

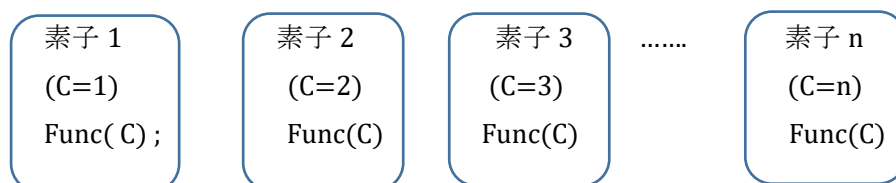
```
For(i=1; i<n+1; i++){
    Func(i);
}
```

計算（Func）を、パラメータ $i=1$ から、 i の値を 1 ずつ大きくしつつ n 回繰り返す。

同じ計算 Func を数百の GPU の各素子に各 i を割り当てて、計算を同時に（並列に）行わせることで、計算時間が数百分の一に短縮されることが期待できる。

GPU による並列処理：

GPU は並列動作する数百～数千の、独立演算素子で構成されている。



並列同動作する各素子には、固有定数 C をあらかじめ割り当てることができる。この C を Func のパラメータとして記述することで、処理を並列化できる。

実際は、CPU のメモリーから GPU のメモリーへのデータ転送、GPU による計算過程でのメモリーアクセス等による時間コストが付加されるので、これらの操作が頻繁に必要なになる計算では GPU により数百倍の処理速度が得られるとは限らない。GPU による計算の効率、計算問題に依存して決まるが、科学技術計算を GPU で並列化することで、数十倍～数百倍の速度アップが得られた実績が報告されている[13]。本章にて述べてきた TEM 像シミュレーション計算についても、GPU による並列化を以下の計算部分について行った。

1. 投影ポテンシャルのフーリエ変換の計算

$$\hat{V}_p(k) = \frac{h^2}{2\pi m e} \sum \exp(2\pi i k r_{atm}) f(s) \quad (7-32)$$

2. マルチスライス計算

$$\psi_{n+1-in}(r) = FT^{-1}[FT[\psi_{n-out}(r)] \hat{p}_r(k)] \quad (7-39)$$

3. TCC による結像計算

$$I(k) = \int TCC(k+k', k') F(k+k') F^*(k') dk' \quad (7-1)$$

$$TCC(k', k') = \exp(i\gamma(k'') - i\gamma(k')) E_j(k'', k') E_d(k'', k') \quad (7-16)$$

これらの計算式は、像シミュレーション計算において、最も負荷の高い計算部分である。具体的な並列化の詳細は、本論文以外の別の機会に譲り、以降にその結果として得られた効率について述べる。

7.6.4 ベンチマークテスト

電子顕微鏡の像シミュレーションソフトウェアとして、計算の負荷の高い部分を GPU にて並列化計算を行うソフトウェアを開発した。GPU は NVIDIA 社の製品を使用し、同社により無償で供給される GPU コードの開発環境である CUDA を用いて像シミュレーションソフトウェアの開発を行った。Microsoft 社のコンパイラである Visual studio 10 をプラットフォームとして用いて、CUDA はこのプラットフォーム上で開発環境を構築できるようになっている。すなわち、GPU プログラミングの記述およびデバッグを、Visual studio 10 のエディター機能を用いて行うことができる。GPU を用いることで、電子顕微鏡の像シミュレーションにおいて、どの程度の計算速度の向上が得られたかについて、ベンチマークテストを行った。ベンチマークテストに用いた環境を、表 7-1 に示す。

表 7-1 GPU 並列計算のベンチマークテストに用いた環境

Computer:	Fujitsu Celcius M720	16GB RAM
CPU:	Xenon E5 1650 v2	3.5 GHz
GPU:	Quadra K5000 / NVIDIA	
	CUDA Cores	1536
	Memory Size Total	4 GB
	Memory Interface	256 bit
	Memory Bandwidth	173 GB/sec
	Compute Capability	3
C++ compiler:	Visual studio 2010 /Microsoft	
GPU compiler:	CUDA 6.0 / NVIDIA	

表 7-1 に示す環境にて、Fast fourier transform (FFT)、投影ポテンシャルのフーリエ変換の計算(式(7-32))、マルチスライス計算(式(7-39))、TCC による結像計算、これらに関して CPU による計算時間、GPU による計算-時間を測定した。

1. FFT 計算時間

並列化により得られる FFT の計算効率アップは、マルチスライス計算の速度向上に大きく寄与する。表 7-2 に 2 次元 FFT の GPU および CPU による計算時間、それらの比（効率化）について、異なるデータサイズ(Array size)にて測定した結果を記す。FFT 計算は Cuda にライブラリとして装備されているが、ここでは、これを用いずに独自に並列化 FFT プログラムを作成した。並列化により、各データサイズとも、ほぼ 20 倍の速度アップが確認できた。

表 7-2 2 次元 FFT のベンチテスト結果

Array size	256×256	512×512	1024×1024
GPU (msec)	0.104	0.442	2.077
CPU (msec)	1.994	9.116	40.036
CPU/GPU	19.17	20.62	19.27

2. 投影ポテンシャルの計算時間

表 7-3 に、SrTiO₃ の単結晶を[001]方向に投影したポテンシャルの計算時間に関する結果を、各データサイズについて示す。投影ポテンシャルはまずそのフーリエ変換を、式(7-32)を用いて計算する。式(7-32)は原子座標の数がデータ点数と無相関のため FFT が使用できず、離散フーリエ変換そのものを計算することになる。投影ポテンシャル計算では、データサイズが大きい場合に GPU による計算効率が良くなっており、1024×1024 のデータサイズでは、GPU を用いることで 191 倍の計算速度が得られた。これは、CPU メモリーから GPU メモリーへのデータ転送の際、一度に転送するデータを多くするほうが効率化には有利であることを示唆している。図 7-11 に SrTiO₃ の単結晶を[001]方向に投影したポテンシャルを示す。

表 7-3 投影ポテンシャルのベンチテスト結果
SrTiO₃ cubic (a=b=c=3.905 Å) [001]

Array size	256×256	512×512	1024×1024
GPU (msec)	1.31	2.61	6.91
CPU (msec)	65.23	293.40	1320.93
CPU/GPU	49.79	112.60	191.16

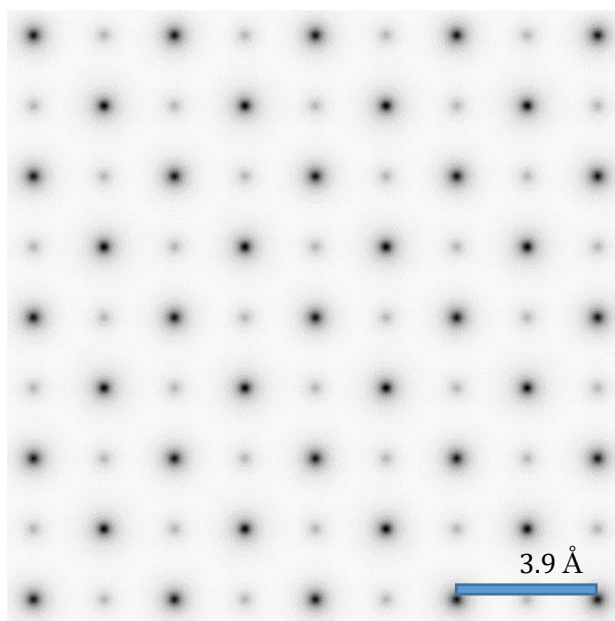


図 7-11 SrTiO₃ cubic (a=b=c=3.905 Å) [001]. の投影ポテンシャル

3. マルチスライス（動力的回折）の計算時間

表 7-4 に、加速電圧 300kV、SrTiO₃ の単結晶[001]入射(スライス厚み 3.905 Å)、厚さ 203Å(52 スライス)までのマルチスライス計算時間を示す。各データサイズに大きな効率差はなく、GPU により 14 倍～16 倍の計算速度が得られた。

表 7-4 マルチスライス計算のベンチテスト結果

Array size	256×256	512×512	1024×1024
GPU (msec)	16	63	277
CPU (msec)	226	1037	4499
CPU/GPU	14.1	16.5	16.2

300 kV, SrTiO₃ cubic (a=b=c=3.905 Å) [001], slice thickness 3.905 Å,
52 slices as specimen thickness

4. TCC による結像の計算時間

TCC の計算時間は、結像に関与する波の数 n 、および、どのレベルの収差 χ まで考慮するか
に大きく左右される。通常、試料構造が複雑になるほど、結像に関与する波の数 n は多くな
る。

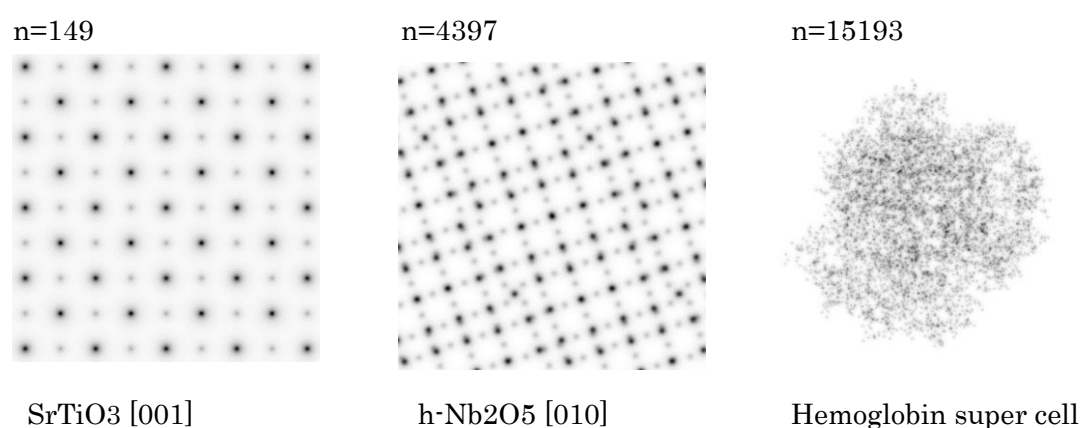


図 7-12 試料構造の投影ポテンシャルと結像に関与する波の数 n

図 7-12 に、TCC 計算のベンチマークテストに用いた試料構造の投影ポテンシャルと、各々の構造において結像に取りこまれる波の数 n を示す。

各試料構造 (SrTiO₃、h-Nb₂O₅、Hemoglobin) の複雑さにより、励起される波の数 n が異なる。それぞれの n に依存する TCC 計算時間の測定結果を表 7-5 に示す。結像にあたって考慮する収差については：

- χ_0 : 回転対称収差にのみ考慮 (Cs、df、 C_5 : 収補正以前の TCC)
- χ_1 : 収差補正 TEM で可能性のあるすべての収差を考慮 (収差補正対応 TCC)

といった 2 通りに場合分けして、TCC の計算時間を測定した。

表 7-5 TCC 計算のベンチテスト結果

TCC with χ_0 (Cs, df, C_5 : 回転対称収差のみ考慮した計算)			
n (結像波の数)	149	4397	15193
GPU (msec)	7	13	67
CPU (msec)	11	1217	10380
CPU/GPU	1.6	93.6	154.9
TCC with χ_1 (収差補正状態に対応した収差を考慮した計算 (図 5-6 参照))			
n (結像波の数)	149	4397	15193
GPU (msec)	7	46	471
CPU (msec)	33	20642	244059
CPU/GPU	4.7	448.7	518.2

表 7-5 にみられるように、TCC の計算負荷は結像波の数が少ない単純な結晶 (SrTiO₃) の場合は、収差の考慮条件によらずリアルタイムで (数十 msec 以内) 計算される。このような計算速度であれば、実験現場でデータ取得とシミュレーション計算を並行して行うことが可能である。理論計算の結果と取得データを現場で比較しつつ実験を進めることは、多様な結像因子に大きく像が左右される TEM の結像において、多大な利点を提供する。実験現場でのリアルタイムシミュレーション計算を、CPU のみによる処理で対応しようとする、複雑な試料構造において、計算時間のコストが障害となる。CPU による収差補正状態の計算時間は、h-Nb₂O₅ で 20 秒程度、Hemoglobin で 244 秒程度を要する。この計算の待ち時間を費やしては、取得した TEM 像を再現する条件を現場で見つけるのは難しい。一方、

GPU を用いれば、Hemoglobin で 244 秒程度を要する計算を 0.477 秒で行える。GPU による計算速度は Hemoglobin の収差補正 TCC 計算において、CPU の 518 倍の速度で計算が行えている。GPU を用いることで、Hemoglobin 程度の複雑さを持つ試料についても、実験現場での TEM 像のリアルタイムシミュレーション計算が可能となる。

7.7 まとめ

透過電子顕微鏡像(TEM 像) で得られる原子分解能像を、研究データとして正当に評価する場合、装置条件と試料条件を正しく見積もったシミュレーション計算で像の再現を確認することが不可欠である。シミュレーション計算は、試料内部での多重散乱を考慮した電子の伝播、試料から射出する結像電子への光学系の応答の順で計算される。計算の前半の試料内部での多重散乱計算はマルチスライス法が広く用いられている。後半の結像計算は、光学の分野で確立された干渉計算の考え方をもとに、TEM に対応した TCC として導出されたものが用いられてきた。この TEM 用の TCC は収差として、Cs、df のような回転対称収差にしか対応してない。ところが、収差補正された TEM 像のシミュレーションを正しく行うには、可能性のある残収差をすべて考慮した計算を行う必要がある。

本章の前半の研究内容は、収差補正技術が確立された場合に得られる透過電子顕微鏡像(TEM 像) を正しく計算できるように、一般収差を含む形式に TCC を変更したことである。具体的には、TCC に含まれる位相変調の部分を一般の波面収差の和の形とし、TCC に含まれる空間干渉性の低下の部分を、光源の角度分布を、角度空間から幾何収差空間へのフーリエ変換として一般化したことである。これらの一般化に関連して、弱位相物体の線型結像に用いられる伝達関数も一般収差に対応した書式が得られた。これまでは、波面収差の奇関数成分は、像の位相変調を受け持ち振幅には影響を与えないとされていた。しかし、新たに導出した伝達関数を実際に計算してみると、波面収差の奇関数成分が干渉性を通じて、像の振幅変調にかかわることができるという新たな知見が得られた。

近年、CPU にとって計算の時間コストが大きな計算を、GPU による並列計算を用いて、飛躍的に高速化することが盛んに行われている。本章の後半の研究内容は、TEM 像のシミュレーション計算の負荷の大きな部分を、GPU の並列計算で処理することで相当の処理能力の向上を確認したものである。GPU による効率化の程度は、問題となる計算処理に依存する。これを TEM 像のシミュレーション計算の主要負荷となる部分で調べた結果、投影ポテンシャルの計算では、最大で CPU の 191 倍の処理速度、マルチスライス計算で CPU の 14 倍～16 倍の処理速度、収差補正対応 TCC の計算では、最大で CPU の 518 倍の処理速度が得られた。GPU を用いれば、収差補正状態の TEM 像の、実験と並行したリアルタイムのシミュレーション計算が可能であることが確認できた。

参考文献

- [1] K. L. Merkle, R. Csencsits, K. L. Rynes, J. P. Withrow and P. A. Stadelmann, The effect of three-fold astigmatism on measurements of grain boundary volume expansion by high-resolution transmission electron microscopy, *Journal of Microscopy* 190, 204-213 (1997).
- [2] M. J. Hytch and V. M. Stobbs, Quantitative comparison of high resolution TEM images with image simulations, *Ultramicroscopy* 53, 191-203 (1994).
- [3] H. Bethe and J. Ashkin, *Experimental Nuclear Physics*, vol.1, Wiley, New York (1953).
- [4] J. M. Cowley, *Diffraction Physics*, North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1975).
- [5] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Cambridge University Press (2002), *Cambridge*
- [6] J. Frank, The envelope of electron microscopic transfer functions for partially coherent illumination, *Optik* 38, 519-536 (1973).
- [7] R. H. Wade and J. Frank, Electron microscope transfer functions for partially coherent axial illumination and chromatic defocus spread, *Optik* 49, 81-92 (1977).
- [8] K. Ishizuka, Contrast transfer of crystal imaging in TEM, *Ultramicroscopy* 5, 55-65 (1980).
- [9] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Shinkawa, T. Sannomiya, Image transfer with partial coherence for aberration corrected transmission electron microscopes, *Ultramicroscopy* 167, 11-20 (2016).
- [10] F. Hosokawa, T. Shinkawa, Y. Arai and T. Sannomiya, Benchmark test of accelerated multi-slice simulation by GPGPU, *Ultramicroscopy* 158, 56-64 (2015).
- [11] W. O. Saxton, Simple prescriptions for estimating three-fold astigmatism, *Ultramicroscopy* 58, 239-243 (1995).
- [12] O. L. Krivanek and P. A. Stadelmann, Effect of three-fold astigmatism on high resolution electron micrographs, *Ultramicroscopy* 60, 103-113 (1995).
- [13] Wen-mei W. Hwu, *GPU Computing Gems Emerald Edition* 日本語版, (中本浩訳) 株式会社ボーンデジタル.
- [14] K. Ishizuka and N. Uyeda, A New Theoretical and Practical Approach to the Multislice Method, *Acta Cryst. A* 33, 740-749 (1977).

8. 結論

8.1 収差補正の視点からの収差の理解

3 章の研究より以下の結論が得られた。

光学設計の視点から収差が研究対象となる場合、光線光路に沿って電子が粒子的運動すると捉える幾何光学的な考え方がこれまでは用いられてきた。ここにおいて、収差は、幾何収差としてその光線経路との対応が明確であり、光線経路の計算と収差係数の計算は同等ととらえることもできる。一方、高分解能の結像理論では、波動光学的な計算が不可欠となり、収差は波面のずれを表す波面収差として扱われる。この場合の収差は開口面での波の位相分布との対応が明確であり、したがって像面において収差の効果は、そのフーリエ変換として評価されるので着地点の評価があいまいになる。収差を波面収差ととらえる利点は、次数と対称性が明確になる点にある。特に対称性については、像面にて計算された幾何収差の集合からこれを各収差の対称性に分類するのは非常に困難である。波面収差として開口面でとらえた場合は、各収差に対応する基底関数の線型結合としてすでに明確に与えられている。本研究においては、収差は光学的な視点においても、波面収差ととらえてその起源を評価した。具体的には、収差の本質を波面収差にあるとし、これを決定する開口面に置けるポテンシャルを、次数と対称性に分類した基底関数で表現し収差の起源とした。言を変えれば、収差補正においては、像の着地点を評価するのではなく開口面に置ける位相を評価すれば十分と考えた。コンビネーションアベレーションとその解析的理解は、幾何収差としての視点でとらえた。このように収差をとらえることで、収差の本質としての次数と対称性として着地点の集合としての評価が、収差補正光学系の設計において非常に有効であると考えられる。

8.2 球面収差補正装置の開発

4 章および 5 章の研究より以下の結論が得られた。

本研究の目的である球面収差補正技術の確立とその検証を含めた成果としての装置開発は、Haider-Rose の 6 極子系の収差補正装置の動作を考察することから始まった。Haider-Rose の 6 極子系においては、2 つの寸法の同じ 6 極子が、焦点距離の同じレンズで構成される transfer doublet で共役関係となっている。これは 4 次収差を消滅させるために必要とされた構成であり、対物レンズ(OL)の開口における軌道位置が OL に続く光学素子の作用面で同じ軌道位置が再現されている。このような光学系は、収差に倍率が作用せず、直接伝達されるため、高次の寄生収差に対しては不利である。Haider-Rose の収差補正装置に組み込まれた 2 段の 6 極子は、transfer doublet の中心面である node 面に対して、2 つのレ

レンズ、2つの6極子が鏡面对称となっている。本研究によれば、この鏡面对称の構成は必ずしも必要ではないことが明らかになった。本研究により、4次収差消滅のために、**transfer doublet** に構成される2つのレンズの焦点距離、6極子の寸法および励磁が満たすべき一般の関係則が明らかになった。この一般則により、**transfer doublet** の **node** 面に対して鏡面对称でない光学系を用いた球面収差補正装置を開発、特許を取得し、日本電子株式会社により製品化された [1]。鏡面对称の関係を満たさない光学系は、すなわち、縮小系あるいは拡大系として働く。このことにより、寄生収差、色収差を物面に向かって縮小することが可能となり、本研究による球面収差補正装置を搭載した 300kV 電子顕微鏡により、 $0.45 \text{ \AA}$ の世界最高分解能が報告されている [2]。このように、本研究の目的である球面収差補正技術の確立とその検証は、最先端の装置開発に応用できる水準で達成された。

8.3 色収差補正装置の開発

6章の研究より以下の結論が得られた。

6極子系の球面収差補正装置はコンビネーションアベレーションの応用により開発されたものである。本研究の3章の成果として得られた、コンビネーションアベレーションの生起の一般化を用いて、光軸方向に厚みを持つ電磁場重畳4極子による色収差補正装置を考案、作製した [3],[4]。厚みのある4極場を利用した色収差補正装置は、コンビネーションアベレーションとして現れる凹レンズ効果を利用しており、この現象は本研究により初めて明らかにされた。この手法による色収差補正の利点は、**x** 軌道および **y** 軌道の色収差が同時に補正される色収差補正面を定義できることにある。この色収差補正面を **transfer doublet** で対物レンズの収差導入面と一致させることにより、収差補正に伴って発生する余計な収差の混入を防ぐことができる。本色収差補正装置は、実験により色収差の補正が確認できており、補正原理の正しさが確認された。しかし、ながら、微細加工が必要な高電位電極の微小放電によるノイズ、あるいは、光軸に使用する材料のサーマルノイズ等の原因で [5]、製品化には至っていない。微小放電によるノイズの低減に関しては、本色収差補正装置においては 10^{-7} 以下のノイズ成分の除去が必要とし、高度な技術的改良が必要と考えている。本研究により明らかとなった4極場の凹レンズ作用を用いた色収差補正の原理は、原理自体は実験で正しいことが確認できた。これは、本研究で導き出したコンビネーションアベレーションの一般規則が正しく働くことを強く示唆しており、これを利用した今後の電子光学研究への応用が期待される。

8.4 収差補正像シミュレーション

7章の研究より以下の結論が得られた。

電子光源の大きさが有限であるため、電子顕微鏡の結像においては、部分干渉性による像の情報損失が起こる。電子光源の大きさに起因する部分干渉性は、逆空間に配置された有限な大きさの光源を点光源の集合と考えて、各点光源による象強度を、収差を考慮して光源全体に積分することで評価できる。部分干渉性の像強度に対する効果は、1973 年 Frank により、弱位相物体近似下において逆空間での **envelope** 関数として定式化された。それは収差補正が確立する以前であり、収差に関しては球面収差と焦点ずれのみが考慮されている。本研究においては、収差補正電子顕微鏡で考慮すべき収差をすべて含んだ部分干渉性の計算方法を確立した[6]。これにより、収差補正電子顕微鏡の部分干渉性が正しく評価できるようになった。収差補正に対応した部分干渉性の計算負荷を低減するために、GPU による並列計算を行うシミュレーションソフトウェアを開発した。これにより、実験と並行したリアルタイムの理論計算が可能となった[7]。

8.5 研究総括

本研究全体として以下の結論が得られた。

収差補正技術を確立することにより、独自の収差補正装置を開発することが本研究の目的であった。研究の初期において、波面収差を収差の本質と考えて、ポテンシャルの多重極展開によりまず一般的な収差の取りうる性質を分類し、生起する原因を明らかにした。これらにより、単純な 2 次元ラプラス方程式に従うプライマリーな収差が与えられこれらは、多極子にて補正されることが明確となった。一方、2 次元ではなく 3 次元ラプラス方程式に従うフリンジ収差を補正するためには、電子が経路で感じる素子の強度を変化させる必要があることも明示できた。また、6 極子が負の球面収差を生むことの説明に際して、Beck と Crewe により用いられた **combination aberration** の考え方を一般化[8]することで、先に言及した、球面収差補正装置および色収差補正装置の成功における理論的土台となった。以上により、当初の研究目的は一応の達成を得られた。ただし、収差には際限いうものではなく、多重極展開におけるフーリエ級数の高次項は無限に存在する。技術的な進歩により、今以上の装置安定度が達成されれば、さらなる高次の収差が、現在の考慮対象にない側面に影響を持って現れてくることも考えられる。そうすれば、視点のことなる理論的考察が必要となる。

参考文献

- [1] H. Sawada et al., Super High Resolution Imaging with Atomic Resolution Electron Microscope of JEM-ARM300F, JEOL News 49, 51-58 (2014).
- [2] H. Sawada, N. Shimura, F. Hosokawa, N. Shibata and Y. Ikuhara, Resolving 45-pm-separated Si-Si atomic columns with an aberration-corrected STEM, Microscopy 64, 213-217 (2015).
- [3] 細川史生、沢田英敬、JP 5623719 B2 (2014.11.12).
- [4] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, EP2172960 B1 (2013.01.13).
- [5] S. Uhlemann, H. Muller, P. Hartel, J. Zach and M. Haider, Thermal Magnetic Field Noise Limits Resolution in Transmission Electron Microscopy, Physical Review Letters 111, (4) 046101 (2013).
- [6] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Shinkawa, T. Sannomiya, Image transfer with partial coherence for aberration corrected transmission electron microscopes, Ultramicroscopy 167, 11-20 (2016).
- [7] F. Hosokawa, T. Shinkawa, Y. Arai and T. Sannomiya, Benchmark test of accelerated multi-slice simulation by GPGPU, Ultramicroscopy 158, 56-64 (2015).
- [8] Hidetaka Sawada and Fumio Hosokawa, US 7598496 B2 (2009.10.06)

謝辞

本論文を纏めるにあたり、指導教官として細部にわたりご指導いただきました論文審査の主査である、三宮工講師に深く感謝申し上げます。また、副指導教官としてご指導いただきました論文審査の副主査である、北本仁孝教授に深く感謝申し上げます。また、お忙しい中、本論文を審査いただきました、東京工業大学の、吉本護教授、舟窪浩教授、中村吉男教授、北陸先端科学技術大学院大学の、大島義文准教授に、深く感謝申し上げます。

本論文の3章および4章に関する研究は、日本電子株式会社 開発本部において成されました。5章および6章に関する研究は、同社 電子光学機器技術本部にて成されました。7章に関する研究および、すべての研究の総括的なまとめは、東京工業大学 大学院総合理工学研究科 物質科学創造研究室にて成されました。電子顕微鏡の操作と原理をご教授いただきました、元日本電子株式会社の吉岡忠則氏に深く感謝申し上げます。電子顕微鏡の光学系の物理と開発についてご教授いただきました、日本電子株式会社の近藤行人氏に深く感謝申し上げます。電子顕微鏡のレンズ設計に必要な物理をご教授いただきました、元日本電子株式会社の新井善博氏に深く感謝申し上げます。球面収差補正の理論構築において真摯な議論を通じて多大なるご協力をいただきました、日本電子株式会社の澤田英敬博士に深く感謝申し上げます。色収差補正装置の実証において独創的な立案を通じて多大なるご協力をいただきました、日本電子株式会社の佐々木健夫博士に深く感謝申し上げます。本研究の端緒となった非対称球面補正装置に関して、その有効性を初めて認めていただき、その初号装置をご自身のプロジェクトに採用いただきました、東京工業大学の高柳邦夫名誉教授に深く感謝申し上げます。

本研究の完成のために、東京工業大学大学院博士後期課程への進学を御支援いただきました、株式会社バイオネット研究所の、新川隆朗博士に深く感謝申し上げます。

最後に、ここに名前をあげることはできなかった、お世話になった多数の方々に、心よりの感謝を申し上げます。

2017年8月21日

東京都 立川市

細川史生

業績

本研究の原著論文

- [1] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Shinkawa, T. Sannomiya
Image transfer with partial coherence for aberration corrected transmission electron microscopes
Ultramicroscopy 167, 11-20 (2016).
- [2] F. Hosokawa, T. Shinkawa, Y. Arai and T. Sannomiya
Benchmark test of accelerated multi-slice simulation by GPGPU
Ultramicroscopy 158, 56-64 (2015).
- [3] H. Sawada, N. Shimura, F. Hosokawa, N. Shibata, Y. Ikuhara
Resolving 45-pm-separated Si-Si atomic columns with an aberration-corrected STEM
Microscopy 64, 213-217 (2015).
- [4] T. Sasaki, H. Sawada, F. Hosokawa, Y. Sato, K. Suenaga
Aberration-corrected STEM/TEM imaging at 15kV
Ultramicroscopy 145, (2014) 50-55.
- [5] F. Hosokawa, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi, K. Suenaga
Development of Cs and Cc correctors for transmission electron microscopy
Microscopy 62, 23-41 (2013).
- [6] T. Sannomiya, H. Sawada, T. Nakamichi, F. Hosokawa, Y. Nakamura, Y. Tanishiro, K. Takayanagi
Determination of aberration center of Ronchigram for automated aberration correctors in scanning transmission electron microscopy
Ultramicroscopy 135, 71-79 (2013).
- [7] T. Sasaki, H. Sawada, E. Okunishi, F. Hosokawa, T. Kaneyama, Y. Kondo, K. Suenaga
Evaluation of probe size in STEM imaging at 30 and 60kV
Micron 43 (4), 551-556 (2012).
- [8] K. Takayanagi, S. Kim, S. Lee, Y. Oshima, T. Tanaka, Y. Tanishiro, H. Sawada, F. Hosokawa, T. Tomita, T. Kaneyama, Y. Kondo
Electron microscopy at a sub-50 pm resolution.
Journal of electron microscopy 60 (suppl 1), S239-S244 (2011).
- [9] Y. Oshima, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, S. Niitaka, H. Takagi, Y. Tanishiro, K. Takayanagi
Direct imaging of lithium atoms in LiV₂O₄ by spherical aberration-corrected electron microscopy
Journal of Electron Microscopy 59 (6), 457-461 (2010).
- [10] H. Sawada, Y. Tanishiro, N. Ohashi, T. Tomita, F. Hosokawa, T. Kaneyama, K. Takayanagi
STEM imaging of 47-pm-separated atomic columns by a spherical aberration-corrected electron microscope with a 300-kV cold field emission gun
Journal of electron microscopy 58, 357-361 (2009).
- [11] H. Sawada, T. Sannomiya, F. Hosokawa, T. Nakamichi, T. Kaneyama, T. Tomita,

- Y. Kondo, T. Tanaka, Y. Oshima, Y. Tanishiro, K. Takayanagi
Measurement method of aberration from Ronchigram by autocorrelation function
Ultramicroscopy 108, 1467-1475 (2008).
- [12] H. Sawada, F. Hosokawa, T. Kaneyama, T. Ishizawa, M. Terao, M. Kawazoe, T. Sannomiya, T. Tomita, Y. Kondo, T. Tanaka, Y. Oshima, Y. Tanishiro, N. Yamamoto, K. Takayanagi
Achieving 63pm Resolution in Scanning Transmission Electron Microscope with Spherical Aberration Corrector
Japanese Journal of Applied Physics 46 (23), L568-L570 (2007).
- [13] K. Mitsuishi, M. Takeguchi, Y. Kondo, F. Hosokawa, K. Okamoto, T. Sannomiya, M. Hori, T. Iwama, M. Kawazoe, K. Furuya
Ultrahigh-Vacuum Third-Order Spherical Aberration (Cs) Corrector for a Scanning Transmission Electron Microscope
Microscopy and Microanalysis 12 (6), 456-460 (2006).

関連論文

- [1] H. Minoda, T. Tamai, H. Iijima, F. Hosokawa, Y. Kondo
Phase-contrast scanning transmission electron microscopy
Microscopy 64 (3), 181-187 (2015).
- [2] H. Sawada, T. Sasaki, F. Hosokawa, K. Suenaga
Resolution enhancement at a large convergence angle by a delta corrector with a CFEG in a low-accelerating-voltage STEM
Micron 63, 35-39 (2014).
- [3] T. Sannomiya, J. Junesch F. Hosokawa, K. Nagayama, Y. Arai, Y. Kayama
Multi-pore carbon phase plate for phase-contrast transmission electron microscopy
Ultramicroscopy 146, (2014) 91-96.
- [4] Y. Sato, T. Sasaki, H. Sawada, F. Hosokawa, T. Tomita, T. Kaneyama, K. Suenaga
Innovative electron microscope for light-element atom visualization
Synthesiology English edition 4(3), 172-182 (2012).
- [5] S. Lee, Y. Tanishiro, K. Takayanagi, Y. Oshima, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, S. Niitaka, H. Takagi
Counting lithium ions in the diffusion channel of an LiV₂O₄ crystal
Journal of Applied Physics 109(11), 113530 (2011).
- [6] R. Ishikawa, E. Okunishi, H. Sawada, Y. Kondo, F. Hosokawa, E. Abe
Direct imaging of hydrogen-atom columns in a crystal by annular bright-field electron microscopy
Nature Materials 10(4), 278-281 (2011).
- [7] T. Sasaki, H. Sawada, F. Hosokawa, Y. Kohno, T. Tomita, T. Kaneyama, K. Suenaga
Performance of low-voltage STEM/TEM with delta corrector and cold field emission gun
Journal of electron microscopy 59(S1), S7-S13 (2010).

- [8] T. Tanaka, K. Sano, M. Ando, A. Sumiya, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, Y. Kondo, K. Takayanagi
Oxygen-rich Ti_{1-x}O₂ pillar growth at a gold nanoparticle–TiO₂ contact by O₂ exposure
Surface Science 604, L75–L78 (2010).
- [9] H. Sawada, T. Sasaki, F. Hosokawa, S. Yuasa, M. Terao, M. Kawazoe, K. Suenaga
Higher-order aberration corrector for an image-forming system in a transmission electron microscope
Ultramicroscopy 110, 958-961 (2010).
- [10] H. Sawada, T. Sasaki, F. Hosokawa, S. Yuasa, M. Terao, M. Kawazoe, K. Suenaga
Correction of higher order geometrical aberration by triple 3-fold astigmatism field
Journal of Electron Microscopy 58, 341-347 (2009).
- [11] F. Hosokawa, R. Danev, Y. Arai, K. Nagayama
Transfer doublet and an elaborated phase plate holder for 120 kV electron-phase microscope
Journal of Electron Microscopy 54, 317-324 (2005).
- [12] F. Hosokawa, T. Tomita, M. Naruse, T. Honda, P. Hartel, M. Haider
A spherical aberration-corrected 200 kV TEM
Journal of Electron Microscopy 52, 3-10 (2003).
- [13] F. Hosokawa, M. Suzuki, K. Ibe
Determination of the effective source from its image in the backfocal plane of the objective lens
Ultramicroscopy 36, 367-373 (1991).

国内著書・解説

- [1] 細川史生
1.2.2 収差補正：色収差補正
マイクロビームアナリシスハンドブック、オーム社、, 81-83 (2014).
- [2] 奥西 栄治, 石川 勇, 沢田 英敬, 細川 史生, 堀 まどか, 近藤 行人
収差補正走査透過電子顕微鏡を用いた環状明視野法による軽元素位置の直接観察
J. Vac. Soc. Jpn. 54 (4), 248-252 (2011).
- [3] 沢田 英敬, 三宮 工, 細川 史生
球面収差補正 TEM および STEM
Ceramics Japan 40 (11), 908-913 (2005).
- [4] 細川史生、本田敏和
6 極子による TEM の球面収差補正
電子顕微鏡 38, 64-67 (2003).
- [5] 細川史生
ディフラクトグラムによる TEM オートチューニング
電子顕微鏡 36,(2001) 115-117.

国際学会発表

- [1] F. Hosokawa, H. Sawada, T. Sannomiya, T. Kaneyama, Y. Kondo, M. Hori, S. Yuasa, M. Kawazoe, T. Nakamichi, Y. Tanishiro, N. Yamamoto and K. Takayanagi
Design and development of Cs corrector for a 300 kV TEM and STEM.
IMC-16, Sapporo. 2, 582, 2006.

関連特許（日本）

- [1] 細川史生, 特許第 5934517 号、色収差補正装置及び色収差補正装置の制御方法、公開日（2013.9.5）
- [2] 細川史生、沢田英隆, 特許第 5623719 号、荷電粒子線装置の色収差補正装置およびその補正方法、公開日（2010.5.20）
- [3] 細川史生, 特許第 5307582 号、電子顕微鏡、公開日(2010.9.16)
- [4] 細川史生、沢田英隆, 特許第 5069066 号、収差補正装置及び収差補正方法、公開日（2006.10.20）
- [5] 細川史生、沢田英隆, 特許第 4922883 号、荷電粒子装置、公開日（2008.5.29）
- [6] 細川史生, 特許第 4851268 号、収差補正方法及び電子線装置、公開日(2008.3.13)
- [7] 細川史生, 特許第 4851148 号、電子顕微鏡、公開日（2007.4.12）
- [8] 細川史生、近藤行人, 特許第 4365720 号、球面収差補正装置、公開日（2005.10.27）
- [9] 細川史生, 特許第 4328192 号、荷電粒子光学系における多極場発生装置及び収差補正装置、公開日(2005.6.30)
- [10] 細川史生、近藤行人, 特許第 4275568 号、球面収差補正装置、公開日(2005.10.27)
- [11] 細川史生、松谷幸, 特許第 4204902 号、収差補正装置を備えた荷電粒子ビーム装置、公開日（2004.3.18）
- [12] 細川史生, 特許第 415493911 号、透過電子顕微鏡および焦点合わせ方法、公開日（2004.2.19）
- [13] 細川史生, 特許第 3950581 号、画像間の位置ずれ検出方法、公開日(2000.12.15)
- [14] 細川史生、ダネフ ラドスチン、永山國昭, 特許第 3942363 号、透過電子顕微鏡の相版用レンズシステム、公開日(2002.8.23)
- [15] 細川史生, 特許第 3896150 号、電子顕微鏡の球面収差補正装置、公開日(2006.11.24)
- [16] 細川史生, 特許第 3896043 号、電子顕微鏡の球面収差補正装置、公開日(2003.3.28)

(米国)

- [1] Fumio Hosokawa, US8952339B2, Feb. 10, 2015
- [2] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, US8785880B2, Jul. 22, 2014
- [3] Fumio Hosokawa, US8664599B2, Mar. 4, 2014.
- [4] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, US8178850B2, May 15, 2012.
- [5] Fumio Hosokawa, US7763862B2, Jul. 27, 2010.
- [6] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, US7598496B2, Oct. 6, 2009.
- [7] Fumio Hosokawa, US7420179B2, Sep. 2, 2008.
- [8] Fumio Hosokawa, US7060985B2, Jun. 13, 2006.

- [9] Fumio Hosokawa, US6924488B2, Aug. 2, 2005.
- [10] Fumio Hosokawa, US6836373B2, Dec. 28, 2004.
- [11] Fumio Hosokawa, Kuniaki Nagayama, Radostin S. Danev, US6744048B2, Jun. 1, 2004.
- [12] Fumio Hosokawa, US6548816B2, Apr. 15, 2003.
- [13] Fumio Hosokawa, US6555818B1, Apr. 29, 2003.
- [14] Fumio Hosokawa, US6448555B1, Sep. 10, 2002.

(欧州)

- [1] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, EP1914785B1, 14.09.2016
- [2] Fumio Hosokawa, EP2226831B1, 28.12.201
- [3] Fumio Hosokawa, Hidetaka Sawada, EP2172960B1, 06.10.2009

(ドイツ)

- [1] Fumio Hosokawa, DE10231426B4, 2015-08-06

受賞

- [1] 平成 19 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 科学技術賞（研究部門）
永山國昭、ラドスチン ダネフ、細川史生、新井善博
電子顕微鏡像改善に資する位相差法の発明と生物応用研究
- [2] 第 22 回（2007 年度）顕微鏡学会論文賞
F. Hosokawa, R. Danev, Y. Arai, K. Nagayama,
Transfer doublet and an elaborated phase plate holder for 120 kV electron-phase
microscope, Journal of Electron Microscopy 54, 317-324 (2005)