研 究 速 報
UDC 548.74：548.4-19：669.14.018.8

弱ビームαフリンジ像に及ぼす系統反射の影響について

Theoretical Analysis of the Many-Beam Effect on the Weak-Beam α-Fringes

宮 沢 薫 一*・石 田 洋 一**・須 賀 唯 知*
Kun'ichi MIYAZAWA, Yoichi ISIDA and Tadatomo SUGA

1．は じ め に

弱ビーム条件で積層欠陥を透過電子顕微鏡観察するとき，2波の動力学的回折理論[1]によって解析すると，ある膜厚において回折波の強度が一定になる線（等強度線）が現れる[2]．この等強度線は，隣接する等厚縞から，その間隔のΔnなる割合だけ，膜厚の小さくなる側または大きくなる側に向かって移動する．移動する方向はブラッグ回折条件からのズレ(s)の方向により決まるから，Δnの値は，次の式から求められる．

$$\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R}=\Delta n\, sgn(s) \qquad (1)$$

$\boldsymbol{R}$は，積層欠陥部での結晶粒間の変位ベクトル，$sgn(s)$は，偏差パラメータs[1]の符号である．(1)式は，非整合双晶境界のような規則粒界の構造解析に用いられ，すでに，オーステナイトステンレス鋼の{112}非整合双晶境界への適用が試みられている[2)3)]．

(1)式を用いる弱ビームαフリンジ法では，高加速電子線での観察が適している．ここに，αフリンジとは，積層欠陥の像を意味する．この場合，多数の反射が励起されるので，小さな変位を測定するときの他の回折波からの影響が無視できなくなると考えられる．

本報では，除くことが難しい系統反射の影響がある場合についての，弱ビームαフリンジ像について考察する．

2．2波近似における弱ビームαフリンジの解

厚さtの薄膜試料表面から深さt_1の場所に積層欠陥があり，欠陥の下部の結晶（厚さt_2）が上部の結晶に対して$\boldsymbol{R}$だけ変位しているものとする．積層欠陥部における試料下表面での波の振幅は，次の式で計算できる[1)4)]．

$$\Psi(t)=\mathrm{F}^{-1}\mathrm{S}(t_2)\mathrm{F}\mathrm{S}(t_1)\Psi(0) \qquad (2)$$

$\Psi(t)$は，各回折波の振幅$\phi_{mg}(t)$を成分に持つ列ベクトルである．$\mathrm{S}(t_k)$ $(k=1.2)$は散乱行列と呼ばれ，j番目の対角成分が$\exp(2\pi i\gamma^{(j)}t_k)$であるような行列{$\exp(2\pi i\gamma^{(j)}t_k)$}およびブロッホ波の係数からなる行列Cを用いて定義される．

$$\mathrm{S}(t_k)=\mathrm{C}\{\exp(2\pi i\gamma^{(j)}t_k)\}\mathrm{C}^{-1} \qquad (3)$$

ただし，$-p\leq j\leq p$，$k=1,2$

$\gamma^{(j)}$は，結晶の平均ポテンシァルを用いて補正された電子の波動ベクトル$\mathbf{K}$のz成分と，ブロッホ波の波動ベクトルのz成分との差である．ここに，zは，電子線の進行方向にとった座標を意味する．行列Fは，積層欠陥部を通過するときに生じるブロッホ波の位相変化を表すための対角行列で，その対角成分は，$\exp(im\alpha)$ $(\alpha=2\pi\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R},\ -p\leq m\leq p)$で与えられる（以上における記号の詳しい意味については，文献1)，4)を参照)．

透過波$\phi_0(t)$と1個の回折波$\phi_g(t)$の2波のみが存在している場合は，各行列の要素が解析的に求められる[1]．

その結果，回折ベクトル$\boldsymbol{g}$の波の振幅は，

$$\begin{aligned}\phi_g(t)&=i\sin\beta\sin(\pi\Delta kt)+\frac{1}{2}\sin\beta(1-\exp(-i\alpha))\\&\quad\times\{\cos\beta\cos(\pi\Delta kt)-i\sin(\pi\Delta kt)\}\\&\quad-\frac{1}{2}\sin\beta(1-\exp(-i\alpha))\\&\quad\times\{\cos\beta\cos(2\pi\Delta kt')-i\sin(2\pi\Delta kt')\}\end{aligned} \qquad (4)$$

となる．

$$\text{ここに，}\ \Delta k=\gamma^{(2)}-\gamma^{(1)}=\xi_g^{-2}(1+w^2)^{1/2} \qquad (5)$$

$$t'\equiv t_1-\frac{1}{2}t$$

$$\sin\beta\equiv(1+w^2)^{-1/2},\ \cos\beta\equiv w(1+w^2)^{-1/2},\ w\equiv s\xi_g \qquad (6)$$

である[1]．ξ_gは，回折電子線の消衰距離である．

$w\gg1$では，$\cos(\beta/2)\simeq1$，$\sin(\beta/2)\simeq1/2w$　(7)

$w\ll-1$では，$\cos(\beta/2)\simeq-1/2w$, $\sin(\beta/2)\simeq1$　(8)

となる．したがって，$|w|\gg1$（弱ビーム条件）のもとで，(4)式を変形すると，

$$\phi_g(t)=(2w)^{-1}\{\exp(i(\mu_2-\alpha))-\exp(i\mu_2)+\exp(i\mu)-\exp(-i\alpha)\} \qquad (9)$$

となる．ここに，

$$\left.\begin{aligned}\mu_k&\equiv2\pi st_k\ (k=1,2)\\ \mu&\equiv2\pi st\end{aligned}\right\} \qquad (10)$$

*東京大学工学部
**東京大学生産技術研究所　第4部

研究速報

である．(9)式では，w^{-2}以下のオーダーの項$o(w^{-2})$を無視した．また，変形の際，強度に関係のない定数位相因子$\exp(i\pi st)$を乗じた．

回折波の強度は，$\Delta\mu\equiv\mu_1-\mu_2$を定義すると，以下のようになる．

$$|\phi_g(t)|^2 = w^{-2}\{1-2\cos(\Delta\mu/2)\sin((\alpha+\mu)/2)\sin(\alpha/2) -\cos(\alpha+\mu/2)\cos(\mu/2)\} \tag{11}$$

Whelanらも，弱ビーム領域での考察を行い，(11)式と同様の式を導いた[5]．しかし，この式が現実的な意味を持つようになったのは，高い透過能をもつ超高圧電子顕微鏡が使われるようになってからである．超高圧電子顕微鏡はしかし，Ewald球の半径が大きいため，2次3次の系統反射を同時に励起するから，この式では十分でなく次項に述べる多波回折の解を必要とする．

$$\mu=\mu_c=2n\pi-\alpha,\quad n=0,\pm1,\pm2,\cdots\cdots, \tag{12}$$

の場所では，回折波の強度が積層欠陥の深さに依存しない．有効消衰距離は，$|w|\gg 1$のとき，

$$\xi_g{}^w=\xi_g(1+w^2)^{-1/2}\simeq(1/s)\,sgn(s) \tag{13}$$

となる．μ_cに対応する膜厚，すなわち，等強度線の存在する場所は，$\mu=2\pi st$であることから，

$$t_c=\xi_g{}^w(n-\alpha/2\pi)\,sgn(s) \tag{14}$$

である．膜厚t_cにおける回折波の強度は，

$$|\phi_g(t_c)|^2=(2w^2)^{-1}(1-\cos\alpha) \tag{15}$$

また，母相部における膜厚t_cにおける回折波の強度は，(11)式で$\alpha=0$とおいて，(12)を代入することにより，

$$|\phi_g(t_c)_{\mathrm{M}}|^2=(2w^2)^{-1}(1-\cos\alpha) \tag{16}$$

となる．したがって，膜厚t_cにおいては，αフリンジの等強度線部の強度と母相の回折波強度が等しくなる．

図1は，このようすを実例で示したものである．(a)は，オーステナイトステンレス鋼の積層欠陥の弱ビームαフリンジ像の111反射による暗視野像、(b)は，(4)式によっての計算像である．計算像は，表面の荒れに由来するノイズを無視すれば，(a)の電顕像と良く似ており，2波の動力学的回折理論の正しさを証明している．αフリンジの等強度線が，母相と等しいコントラストの点で接続しているようすもわかる．

等強度線が，隣接する等厚縞からずれる大きさを，等厚縞の間隔に対する割合Δnで表すと，(14)式より，

$$\Delta n=(\alpha/2\pi)\,sgn(s)=\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R}\,sgn(s)$$

ゆえに，$\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R}=\Delta n\,sgn(s)$　　(1)

が導かれる．

3．系統反射が存在するときの弱ビーム条件下における回折波の表現

非吸収性の完全結晶における電子線の振幅ϕ_gは，次のようなブロッホ波の重ねあわせで表すことができる[1)4)]．

$$\phi_g=\sum_j\psi^{(j)}C_g{}^{(j)}\exp(2\pi i(\boldsymbol{k}_0{}^{(j)}+\boldsymbol{g})\cdot\boldsymbol{r}) \tag{17}$$

添字jは，分散面の分枝の番号，$C_g{}^{(j)}$はブロッホ波の係数，$\psi^{(j)}$はブロッホ波の振幅，$\boldsymbol{k}_0{}^{(j)}$は透過波の波動ベクトル，$\boldsymbol{g}$は回折ベクトルである．

(17)式は，定数位相因子を省略して次のように書ける．

$$\phi_g=\sum_j\psi^{(j)}C_g^{(j)}\exp(2\pi i\gamma^{(j)}z) \tag{18}$$

高加速電子線については，$\gamma^{(j)}$とs_g（逆格子点$\boldsymbol{g}$についての偏差パラメータ）が，$\mathrm{K}(=|\mathbf{K}|)$に比べて十分に小さいので，対称の中心を持つ結晶について，

$$\mathrm{AC}^{(j)}-\gamma^{(j)}\mathrm{C}^{(j)}=0 \tag{19}$$

$$\mathrm{A}_{00}=0,\quad \mathrm{A}_{gg}=s_g,\quad \mathrm{A}_{gh}=\mathrm{A}_{hg}=1/(2\xi_{g-h})$$

と書ける[1)]．$\mathbf{C}^{(j)}$は，j番目の分散面分枝に対応するブロッホ波の係数からなる列ベクトルである．

行列Aの成分A_{mgng}をA_{mn}で表し，

$$\mathrm{A}_{mn}=ms\delta_{mn}+(1-\delta_{mn})/(2\xi_{(n-m)g}) \tag{20}$$

$$\delta_{mn}=1 \text{ for } m=n,\quad \delta_{mn}=0 \quad \text{for } m\neq n$$

のように記す．(20)式の第1項は，反射球が大きくて，sが$\boldsymbol{g}$の大きさに比例することで近似した．

ベクトル$\mathbf{C}^{(n)}$を(21)式のようにおくと，これが，w^{-2}以下のオーダーの項$o(w^{-2})$を除いて，行列Aの固有ベクトルになっていることが示せる．以下においては，考察する試料の対称性により，$w>0$を仮定する．

$$\mathrm{C}_{mn}=\delta_{mn}+(1-\delta_{mn})/\{2w|n-m|(n-m)\} \tag{21}$$

(21)式の第2項は，$m=n$のとき消えることを意味する．C_{mn}は$\mathbf{C}^{(n)}$のmg番目の成分である．mとnの範囲は，$-\mathrm{p}\leq\mathrm{m}\leq\mathrm{p}$で定義する．

ベクトル$\mathrm{AC}^{(n)}$のmg番目の成分を$[\mathrm{AC}^{(n)}]_m$と書く．

$[AC^{(n)}]_m=\sum_{k=-p}^{p}\mathrm{A}_{mk}\mathrm{C}_{kn}$の各成分に，(20)，(21)を代入し

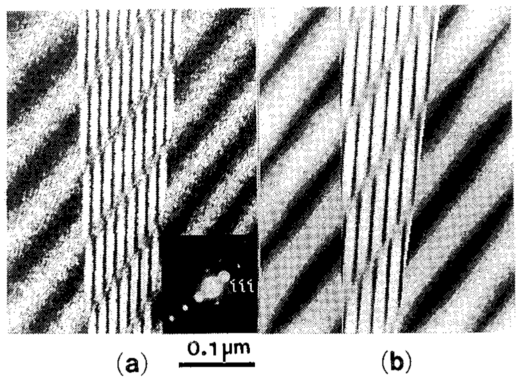

図1　(a)陰極電解水素チャージ法によって導入されたオーステナイトステンレス鋼中の積層欠陥の弱ビーム暗視野像（弱ビームαフリンジ像）．東大工学部総合試験所のJEM1250を用いて，加速電圧1000kVで撮影した
(b)(a)の弱ビームαフリンジ像についての2波近似による計算像

て整理すると，

$$[\mathrm{AC}^{(n)}]_m = ns\delta_{mn} + ms(1-\delta_{mn})/\{2w\,|\,n-m\,| \times (n-m)\} + (1-\delta_{mn})/\{2\xi_{(n-m)g}\} + s[o(w^{-2})] \quad (22)$$

$w \gg 1$ の条件で，(22)の第4項は他の項に対して無視できる．また，主要な項の第1項に比べて，第2項と第3項は，wの増加とともにますます小さくなるので，第3項を次式で近似する．$\xi_{(k-m)g} \simeq |\,k-m\,|\,\xi_g$　(23)

その結果，(22)式は，$o(w^{-2})$の項を無視することにより，次の形になる．

$$[\mathrm{AC}^{(n)}]_m = ns[\delta_{mn} + (1-\delta_{mn})/\{2w|\,n-m\,| \times (n-m)\}] = ns\mathrm{C}_{mn} \quad (24)$$

したがって，$w \gg 1$ のもとで，Aの固有値がnsであり，その固有ベクトルが$\mathbf{C}^{(n)}$であることがわかる．

列ベクトル$\mathbf{C}^{(n)}$を並べて作った正方行列をCで表す．

$$\mathrm{C} = [\mathbf{C}^{(-p)}, \mathbf{C}^{(-p+1)}, \cdots\cdots, \mathbf{C}^{(p)}] \quad (25)$$

${}^t\mathrm{CC}$のmn成分は（^{t}は配置行列の意味），

$$[{}^t\mathrm{CC}]_{mn} = \sum_{k=-p}^{p} \mathrm{C}_{km}\mathrm{C}_{kn} = \delta_{mn} + o(w^{-2}) \quad (26)$$

となる．したがって，$w \gg 1$ のもとで，${}^t\mathrm{CC}$は，単位行列に収束する．同様に，$\mathrm{C}{}^t\mathrm{C}$も，単位行列に収束するので，行列Cは，弱ビーム条件下で，ユニタリー行列になることがわかる．

4．系統反射を考慮した弱ビーム積層欠陥像の解

透過波$\phi_0(t)$のほかに，$-p\boldsymbol{g}\sim p\boldsymbol{g}$の回折ベクトルをもつ系統反射が励起されているものとする．(2)式の$\Psi(t)$を，

$$\Psi(t) = {}^t(\phi_{-pg}(t), \phi_{-(p-1)g}(t), \cdots\cdots, \phi_{pg}(t)) \quad (27)$$

と置く．試料上表面で，

$$\phi_0(0) = 1,\ \phi_{mg}(0) = 0\quad (m \fallingdotseq 0) \quad (28)$$

の境界条件を置く．今，前節で与えた行列Cを用いて，$w \gg 1$ のもとに，(2)式の計算を実行すると，$m\boldsymbol{g}$の波の振幅は，$o(w^{-2})$以下の項を省略して，

$$\phi_{mg}(t) = (2m^2w)^{-1}\{\exp[im(\mu_2-\alpha)] - \exp(im\mu_2) + \exp(im\mu) - \exp(-im\alpha)\} \quad (29)$$

であることが導かれる．(29)式で，$m=1$とすると2波近似の式(9)が求められる．(29)式は，(9)式と等しい形を持っているので，$w \gg 1$のもとでは，多数の系統反射が励起されていても，2波の弱ビーム近似に収束することがわかる．

$m\boldsymbol{g}$の波の強度は，(29)式から，

$$|\,\phi_{mg}(t)\,|^2 = (w^2m^4)^{-1}\{1 - 2\cos(m\Delta\mu/2) \times \sin(m(\alpha+\mu)/2)\sin(m\alpha/2) - \cos(m(\alpha+\mu/2)) \times \cos(m\mu/2)\} \quad (30)$$

となる．回折波の強度は，m^{-4}に比例しており，回折ベクトルの次数が高くなると急激に弱まることがわかる．

回折波の強度が積層欠陥の深さに依存しない膜厚t_cは，(30)式の第2項が0になる場合である．

したがって，$\mu = \mu_c = 2n\pi/m - \alpha$,　(31)

$n = 0, \pm 1, \pm 2, \cdots$

$$t_c = (\xi_g{}^w/m)(n - m\alpha/2\pi)\,sgn(s) \quad (32)$$

となる．(32)式の第2項を，

$$\Delta n_m = (m\alpha/2\pi)\,sgn(s) \quad (33)$$

と置くと，Δn_mは，隣接する等厚縞から，その間隔に対して，回折波の強度が等しい軌跡（等強度線）が移動する割合を表している．$\alpha = 2\pi\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R}$であるので，

$$m\boldsymbol{g}\cdot\boldsymbol{R} = \Delta n_m sgn(s) \quad (34)$$

となる．(34)式は，各回折波の場合について，2波の場合と同様の測定ができることを示している．

膜厚t_cにおける回折波の強度は，

$$|\,\phi_{mg}(t_c)\,|^2 = (2w^2m^4)^{-1}(1-\cos m\alpha) \quad (35)$$

である．また，そのときの，母相部での回折波の強度は，(35)式で，$\alpha=0$とおいたものに(31)式を代入することにより，

$$|\,\phi_{mg}(t_c)_{\mathrm{M}}\,|^2 = (2w^2m^4)^{-1}(1-\cos m\alpha)$$

となる．したがって，αフリンジの等強度線は，多数の系統反射が励起されている場合においても，母相の回折波の強度と等しい強度の場所に生じることがわかる．

5．ま　と　め

多数の系統反射が関与している場合の弱ビームαフリンジ像の解を求めたところ，十分な弱ビーム条件のもとでは，異なる回折波の間の干渉作用は小さくなって，2波の回折条件に収束してしまうことが明らかになった．したがって，小さな変位を測定する場合にも，ブラッグ反射位置から試料を大きく傾斜させることにより，多波の影響による測定誤差を無視できる程度に小さくできることがわかった．

6．謝　　　辞

透過電顕観察用の試料作成に協力していただいた東京大学生産技術研究所石田研究室の斉藤秀雄氏に感謝致します．

（1987年6月29日受理）

参　考　文　献

1) P.B. Hirsch, A. Howie, R.B. Nicholson, D.W. Pashley and M.J. Whelan：Electron Microscopy of Thin Crystals, Butterworths, London, (1965)
2) K. Miyazawa and Y. Ishida：Journal of Microscopy **142**(1986) 163
3) K. Miyazawa and Y. Ishida：Ultramicroscopy **22**(1987) 231
4) L. Reimer：Transmission Electron Microscopy, Springer-Verlag, (1984)
5) M.J. Whelan and P.B. Hirsch：Phil. Mag.2(1957) 1121