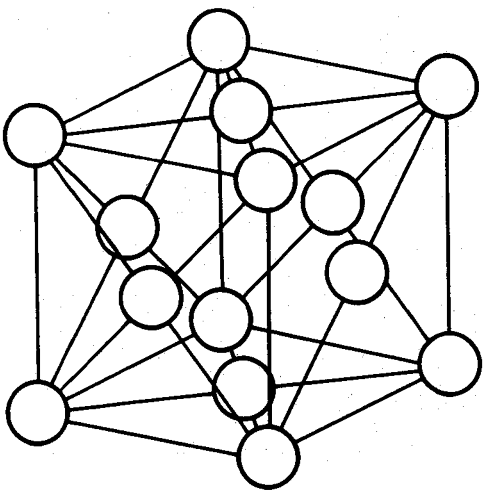
結晶格子の高分解能電子顕微鏡像の画像処理に関する基礎的研究



丹 司 敬 義

目　　次

第2章　高分解能電子顕微鏡とコヒーレント光学系を併用した極微制限視野回折法

第3章　ノイズ・フィルター・グレーティングを用いた結晶格子像の処理

第4章　白色雑音とグレーティングにより作られる疑似格子像

第5章　金格子像の最適撮像条件

緒　　　論

1938年ベルリン工科大学のグループ（Borries and Ruska 1932、Knoll and Ruska 1932、Ruska 1934）とSiemens社との協力によつて作られた30Åの分解能を持つ磁界レンズ型電子顕微鏡および Mahl（1939）により作られた150Åの分解能を持つ静電レンズ型電子顕微鏡はともにAbbe（1873）によつて指摘された光学顕微鏡の分解能の限界（～0.3μ）をはるかに越えた画期的なものであつた。これは光に比べて極めて波長の短い電子波を結像に用いてなされたものであつた。その後電子顕微鏡は、世界各国で研究が進められ、分解能も最近では点間隔で、2～3Å（Dupouy, Marais and Verdier 1972）結晶格子縞で0,51Å（Hashimoto et al. 1976 a）という高い値が得られている。このように高い分解能を持つ電子顕微鏡の開発により、従来はX線や電子線を用いた回折法でしか調べられ得なかつた原子レベルでの物質の内部構造の直接観察による研究の可能性が出て来た。

格子像から結晶の微細な構造を調べる研究はMenter（1956、1958）によりはじめて3～10Åの格子縞が撮影された頃より始まり、最近ではX線回折法では得られなかつた結晶構造に対する新しい知見を得るまでになつた（Iijima and Allpress 1974）。

しかしながら、通常得られている結晶格子の像は直ちに結晶内の原子配置またはポテンシャル分布に対応しない場合が多い。結晶内に入つた電子は、物質との相互作用が強いため多重に散乱される。そのため、光学顕微鏡でのように試料のある厚さの所にのみ焦点を合わせ、内部の構造を観察するということができず、試料下面で生じた電子波の振巾分布をレンズで投影することになる。結晶の下面に生ずる振巾分布は、原子配列やポテンシャルに必らずしも比例しない。したがつて、例え無収差の完全レンズを用いて結像しても試料内で原子の存在する位置を投影した点に強度の極大や極小値が現われるとは限らない（Hashimoto, Mannami and Naiki 1961）。実際には、更にこれが収差のあるレンズで像面に投影されるので、結晶構造とすぐに対応するような像を得ることは一般に非常にむつかしい。

ただし、散乱能の低い元素から成る試料で、しかも極く薄い場合（弱い位相物体という）には、レンズを適当に調整すると、ポテンシャル分布の比較的大きな構造によく似た像が現われることが知られている（Cowley 1959, Cowley and Iijima 1972）。このような特別の場合を除いては、像コントラストは必らず解釈して読まれねばならない。

本論文では高分解能電子顕微鏡で得られた結晶格子像の解析方法に関する研究、特に光学の分野で用いられている情報処理技術の応用について述べる。全体は6章から成り立つており、各章の内容は以下の通りである。

まず第１章では、本研究る進める上の基礎的なことがらとして、透過型電子顕微鏡の構造と結像方法を概説し、既に知られている結像格子像のコントラストを求めるための理論を結晶中の電子の振舞いに関する部分と、電子光学系による結像に関する部分とに分けて述べる。そして極微制限視野回折法に関する研究並びに電子顕微鏡像の光学的画像修正に関する研究の現状を述べる。

第２章では、極微制限視野回折法として、電子回折の方式に代わる高分解電子顕微鏡像と光回折法を併用した方式について新たに求めた回折強度式の導出と、この方式の有効性の検討を中心に述べ、１～２の応用例を示す。

第３章では、ノイズ・フイルター・グレーテイングを用いた結晶格子像の処理について述べる。即ち、高倍率、高分解能格子像の観察に障害となっているランダム雑音を像の周期成分だけを通す空間フイルターにより除去する際の処理機構を数式的に明らかにし、最適なフイルターの形を求める。そして、新しく試作した試料ホルダー、フイルターホルダーを組み込んだ処理光学系について触れ、モデル格子像を用いた実験の結果を示す。更に金の格子像への応用と色収差補正の試みについても述べる。

第４章では、第３章の実験の過程で新たに観察された疑似格子像をスペックル雑音の一種とみなし、その特性をパワースペクトルの計算及び実験から調べる。そして実際の格子像中に含まれるランダム雑音により作られた疑似格子像を正しく処理して得られた真の格子像と比較する。

第５章では、従来の最適結像条件（Ｓｃｈｅｒｚｅｒ フォーカス）　では撮影できない分解能以下の構造を持つ小さな単位胞の結晶の格子像を電子レンズの収差の影響を小さく抑えて撮影するのに有効なアベレーション・フリー・フォーカス（a. *f.* *f.* ）条件について述べ、その解析的計算方法を示す。

そして第６章において、本論文によつて与えられた結果を総括し、同時に今後の課題について示す。

なお、近年走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）の発達も著しく、走査型透過電子顕微鏡（ＳＴＥＭ）によっても結晶格子像が得られている（Ｃｏｗｌｅｙ　１９７７）が、本論文を通して特にことわることなく用いられた場合、電子顕微鏡とは通常の透過型電子顕微鏡（ＣＴＥＭ）を示すものとする。

第１章　結晶格子像に関する理論と実験の現状

1－1　緒　　　言

Menter（1956）により白金フタロシアニン及び銅フタロシアニンの格子縞が撮影されて以来、数多くの結晶格子像が得られて来た。当初は透過波とBragg反射波による一次元の干渉縞に過ぎなかつた像も、近年電子顕微鏡の分解能の向上と適当な試料の選択により、数十～百数十もの回折波を用いて結像されるようになり、この像の持つ意味が次第に明らかになるにつれ、電子顕微鏡法が物性研究に一層有力な手段となつてきた（Allpress, Sanders and Wadsley 1969、Uyeda et al. 1970、Iijima 1973、1974、Iijima, Kimura and Goto 1973、Iijima and Allpress 1974、Yada 1971、Hashimoto et al. 1976 b）。このような格子像を解析するための像コントラストの理論は、結晶中に入つた電子の振舞いを記述する理論と、電子光学系内での振舞いを記述する理論より構成されている。結晶中に入つた電子の振舞いの記述に関しては、1940年代後半からいくつかの方法が提案され、1960年代初めにはほぼ確立された（Boersch 1946、1947、Niehrs 1954、1956、Hashimoto, Mannami and Naiki 1961、Cowley and Moodie 1957 a、b、c、d、e、1960、Cowley 1959）。電子光学系による結像に関する理論は、球面収差と焦点の外れのみを考慮した議論が中心になつて来たが（Boersch 1947、Scherzer 1949、Heidenreich and Hamming 1965、Eisenhandler and Siegel 1966、Hashimoto et al. 1973、橋本 1973）、最近は更に色収差や非点収差及び照射電子線のコヒーレンス度も考慮した理論が出されている（Cowley and Moodie 1957 c、Hanßen and Trepte 1971、Frank 1973、1975、1976、Dowell and Goodman 1973、Anstis and O'Keefe 1976）。

記録された電子顕微鏡像からレンズの収差による影響を取り除いて元の結晶下面での波の振巾分布なり強度分布を求めることは、照射電子波が高干渉性であり、しかも一般には波の位相の情報がほとんど失なわれているため非常に困難であるが、試料の回折波が透過波に比べて極く弱いときには、像の伝達関数についての修復がある程度可能である（Stroke and Halioua 1973 a、b）。実際そのような場合が高分解能電子顕微鏡観察においては、しばしばあり得る。

高倍率、高分解能下における観察では、収差の影響以外にフイルムの粒状性、電子線の量子的ゆらぎ、試料の非晶質部分の作るコントラスト等による雑音も無視できず、これらの雑音を含む像の

ＳＮ比の改善も重要な問題である。本論文では格子像のＳＮ比の改善に関する研究を実施したので本章でその現状を紹介する。

また、Ｂｏｅｒｓｃｈ（１９３６）やＬｅｐｏｏｌｅ（１９４７）の研究以来、電子顕微鏡像と共に試料構造の研究に用いられてきた手段に制限視野電子回折法がある。この方法は一般の電子回折法に比べて、試料の局所部分の回折像を撮ることができ、大層好都合ではあるが、電子レンズの収差のために制限領域を無限に狭くすることはできず、通常、直径数千オングストロームの領域が限度である（Ａｇａｒ　１９６０、Ｒｉｅｋｅ　１９６１）。しかし、近年加速電圧の高圧化やマイクロビーム技術の応用、収差の小さなレンズの開発等により、かなり小さな領域（３０～２００Å）からの回折像を得ることもできるようになつた（Ｕｙｅｄａ　ｅｔ　ａｌ．１９６３、Ｋｏｒｅｅｄａ　ｅｔ　ａｌ．１９７１、Ｇｅｉｓｓ　１９７５）が、しかし、なおいくつかの問題となる点がある。本論文では、記録された高分解能電子顕微鏡像を用いた新しい制限視野回折の方法を提案、実施している。

この章では、まず電子顕微鏡の構造といくつかの結像方式を述べ、結晶格子像のコントラスト理論を概説する。また、微小制限視野回折法と画像修正に関する研究の現状を述べるとともに、この論文の目的を併記していく。

1－2　透過型電子顕微鏡の構造と原理

電子顕微鏡は鏡筒、電気系、真空系、操作パネルの四つの部分から成つている。中でも特に鏡筒部の電子レンズが顕微鏡の性能を決定する。ここでは、鏡筒部について概説した後、電子レンズの機構と性能について述べ、併せて結晶格子像　その他を得るための結像方法を記す。なお、電源の安定性が性能に及ぼす影響も極めて大であるが、ここでは電気回路に関する説明は省略する。

1－2－1　鏡筒部の構造

鏡筒部は更に上から照射系、試料室、結像系、そして観察・記録系に分けられる。Fig. 1-1 に市販の電子顕微鏡の一例（ＪＥＭ１００Ｃ）の断面図を示す。

A　照射系

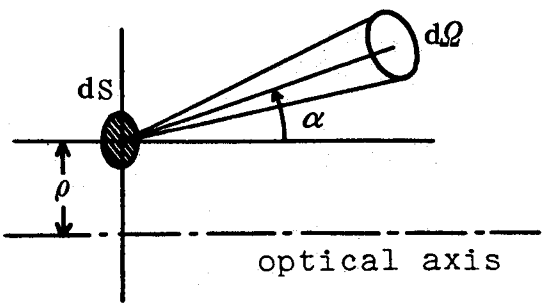


Fig. 1-2 座標系

照射系は像の観察に必要な条件（加速電圧　電子光学的輝度、干渉性等）を満たす電子線を試料に照射する。Fig. 1-1 に示すように、微小面積 dS を通つてその法線方向と角度 α をなす方向を囲む微小立体角 $d\Omega$ の中へ流れ込む電子流を dI として、dS の場所 ρ における α 方向の電子光学的輝度は

$$R(\rho,\alpha)=\frac{dI(\rho,\alpha)}{d\Omega\, dS}\cos\alpha \qquad (1-1)$$

で定義される。また回転対称な電磁界を用いた光学系で重要な値として、光軸上の点における光軸方向の輝度

$$R_{axial}=R(0,0)=\frac{dI(0,0)}{d\Omega\, dS} \qquad (1-2)$$

があり、これを軸上輝度と呼ぶ（下山　1975）。電子線をレンズ系でどのように拡大、縮小しても、その拡大、縮小率の二乗に反比例して電流密度が変化するため、この軸上輝度は一定電圧の下では常に一定である（輝度不変の法則　上田　1974、下山　1975）。

1 : 陽極室

2 : カソード部

3 : 陽極室エアロック弁

4 : 第1偏向コイル

5 : 第2偏向コイル

6 : 集束レンズ・ポールピース

7 : 第1集束レンズ・コイル

8 : 第2集束レンズ・コイル

9 : 集束レンズ非点補正コイル

10 : イメージ・ウォブラ・コイル

11 : 第1偏位補正コイル

12 : 第2偏位補正コイル

13 : 第3偏向コイル

14 : 試料筒

15 : 第4偏向コイル

16 : 対物レンズ・ポールピース

17 : 対物レンズ非点補正コイル

18 : 対物レンズ・コイル

19 : 第1中間レンズ・コイル

20 : 中間レンズ・ポールピース

21 : 第2中間レンズ・コイル

22 : 投影レンズ・コイル

23 : 投影レンズ・ポールピース

24 : 観察室

25 : カメラ室

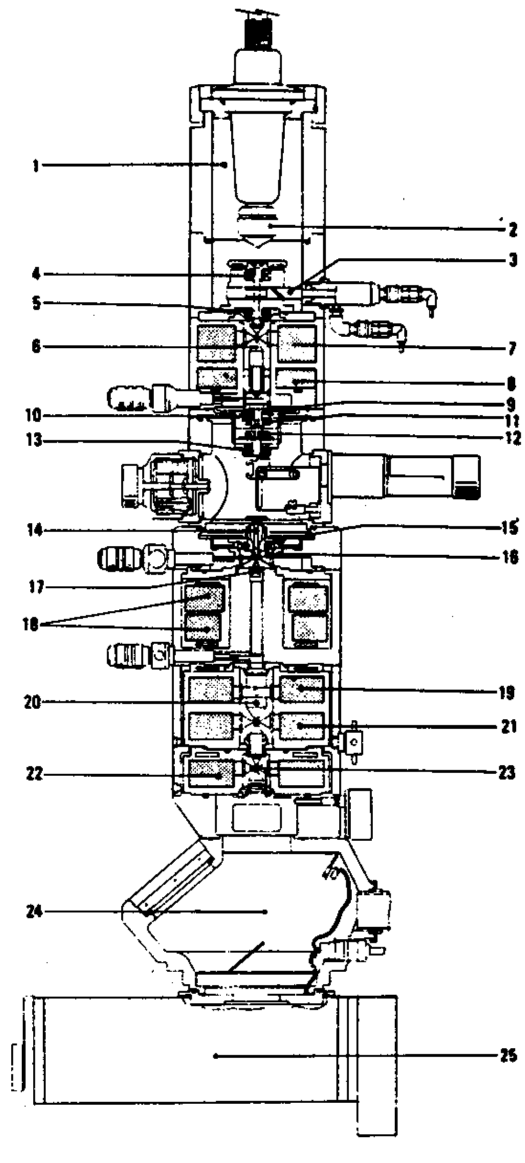


Fig. 1 - 1　鏡筒の断面図（ＪＥＭ１００Ｃ）

実際に測定されるのは平均輝度であるため、上の輝度不変の法則は正しく適用されないが、軸上輝度を越えることはない。従つて、一定電圧の電子線の輝度はほとんど電子源の輝度で決まつてしまう。螢光板上で像を観察するのに必要な電流密度を10^{-11}A/㎠とすると、100万倍で像を見るためには10A/㎠の電流密度が試料上で要求される。また、干渉性のよい電子線にするためには開き角が少なくとも10^{-3}rad以下の平行度のよい電子線を照射せねばならないから、少なくとも、3.2×10^{6}A/cm^{2} str. の輝度をもつ電子銃が必要となる。実際には明視野像や暗視野像のように対物レンズ絞りやコンデンサーレンズ絞りにより電子線の一部を除いて結像することが多く、そのためには更に1〜2桁程度の高い輝度が要求される。

a 電子銃

電子銃は電子顕微鏡の光源であり、フイラメント、ウエーネルト円筒および陽極より構成されている（Fig. 1-3)。エネルギーのそろつた電子を高い輝度と干渉性をもつ電子ビームとして放出するのが役目である。グリッドにはフイラメントに対して負のバイアス電圧が印加されており、ビーム電流を制御し、同時にクロスオーバーを形成する。クロスオーバーとは、フイラメント、ウエーネルト円筒、陽極から成るレンズにより、電子ビームが絞られた最小断面で、普通50〜100 μの大きさをもつている。フイラメントには直径0.1mmのタングステン線をヘアピン状にしたものが用いられ、2700〜2900°K程度に加熱される。また、高輝度を得るためヘアピンフイラメントの先端に、末端を鋭くとがらせたタングステンチツプを取り付けた、いわゆるポイントカソード（Hibi, Yada and Takahashi 1962、Hibi and Yada 1964、Hibi 1974、日比 and 矢田 1975）や、電界放出型電子銃（Crewe 1975、Troyon 1976）、あるいは六硼化ランタン（LaB_6）を用いた電子銃（中川 1977）等を装備した電子顕微鏡も開発されている。また陰極から放出された電子エネルギー分布は結像の際、色収差を与えることになる。**Figs. 1-4**、1-5に下山(1975）によつて計算されたタングステン陰極から放出された電子のエネルギ-分布

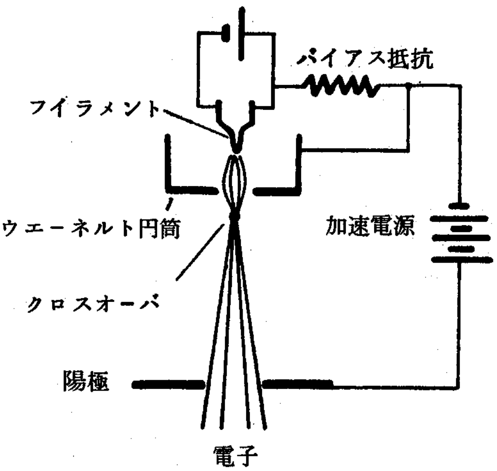


Fig. 1—3 電子銃

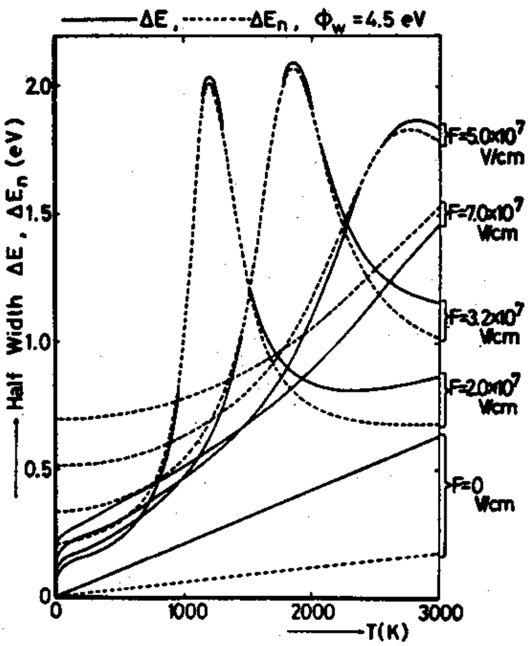
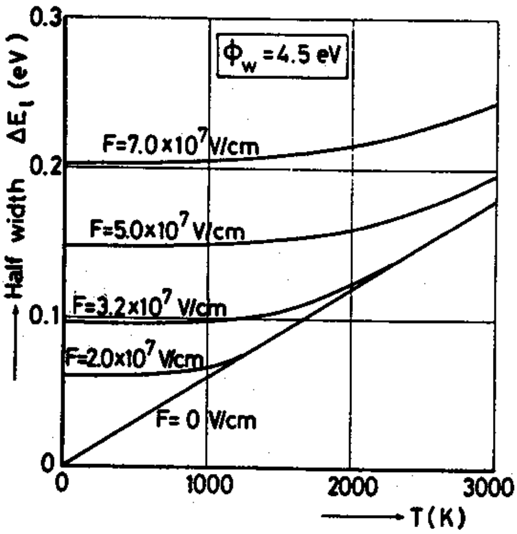


Fig. 1—4
いくつかの電界強度に対して計算された放出電子の全エネルギー分布と陰極表面に垂直な方向のエネルギー分布の半値巾△E、△E n

（from 下山 1975）



の半値巾を示す。ここで、△E、△E n、△E tはそれぞれ放出電子の全エネルギー、陰極表面の法線方向のエネルギー、陰極表面の接線方向のエネルギーの分布の半値巾を表わす。一様電界からなる平面陰極レンズの色収差は△E nに依存する（Uchikawa and Maruse 1969）が、微小球状陰極チップを有する電界放出型電子銃の色収差はむしろ主として△E tに依存する（Wiesner and Everhart 1973）ことが明らかにされており、通常の場合はその双方によつて定められる。

Fig. 1—5
いくつかの電界強度に対して計算された陰極表面の接線方向のエネルギー分布の半値巾△E t（from 下山 1975）

b 集束レンズ

電子銃で作られたクロスオーバーの像を、試料付近あるいは遠方に投影することによつて試料面上での電子流密度すなわち明るさを変え、同時に照射ビームの開き角を変えるものである。現在の電子顕微鏡では、ほとんど二段集束レンズが採用されている。これは焦点距離の短い第一集束レンズでクロスオーバーを縮小し、それを第二集束レンズで試料面上に投影しようというもので、最小直径1～2μの照射スポットが得られる。第一集束レンズにより照射スポットの大きさを変化させ第二集束レンズにより明るさ、開き角、照射面積を調節する。第二集束レンズには3～4個の孔径の異なる可動絞りが挿入されており、照射面積、開き角を規定する。二段集束レンズには照射ビームを細くして最大の電子流密度を得るために非点収差の補正装置（ステイグメーター）が付属されている。

照射系下部には軸合わせや暗視野像を得るための機構が置かれている。これには、現在ではほとんど電磁式の二段偏向コイルが用いられている。

B 試料室

試料室には試料移動台および駆動機構、試料汚染防止装置、試料交換機構等の常備装置の他、ゴニオメーター、試料加熱・冷却装置、引張装置、ガス雰囲気装置（エンビロンメンタルセル）あるいは、これらのいくつを組み合わせた試料処理装置（Hashimoto et al. 1968、井村，藤田 1975、深見 1974）が取り付けられることもある。試料移動台および駆動機構はオングストロームオーダーの試料移動を可能にし、試料のドリフト、振動をおさえるよう特に注意が払われている。

C 結像系

結像系は対物レンズ、一段あるいは二段の中間レンズ、投影レンズから構成されている。

a 対物レンズ（Objective lens）

これは電子顕微鏡のレンズのうち最も重要な、性能に直接影響を及ぼすレンズであり、最初の拡大像を形成するが、主として焦点合わせに用いられる。通常、焦点距離は球面収差や色収差を小さくするため強励磁にして、0,5～数mmと小さくしてある。焦点合わせは対物レンズ電流を調節することによつて行なうが、レンズ電流は連続的に変化せず、段階的に変化するようになつているものが多い。連続変化式のものでは安定性、再現性の点で問題があつたのに対して、正確で容易な

焦点合わせが可能である。高分解能のものでは、１ステップの変化量は最小で数十Åとなつている。

b　中間レンズ（Intermediate lens）、投影レンズ（Projector lens）

対物レンズの像を拡大するのが中間レンズ及び投影レンズである。もう一つの役割は、対物レンズの後焦点面（back focal plane）にできる回折パターンを拡大投影するものである。これを制限視野回折（Selected area diffraction）と呼び、中間レンズのすぐ前に位置する視野制限絞り（Field limiting aperture）によつて、希望する視野を選択する。

D　観察　記録系

通常は、観察室にある螢光板上に電子を照射して発せられた光を鏡筒外部から観察し、観察室の下にあるカメラ室中で直接露出されたフイルムに記録する。フイルムとしては一般にシートフイルムが用いられるが、ロールフイルムの使用が可能なものもある。

特に高倍率の像を観察しようとすると、フイルム上での電子線の密度が極めて低くなり、長時間の露出を要する。従つて振動や試料のドリフトおよび汚染等のため解像度の高い像が得難い。また高速で起こる現象の記録には、通常の方法では追跡できないことがある。そこで、フイルムを用いずテレビの撮像管で電子顕微鏡像を電気信号に変え、ブラウン管上に表示し、カメラあるいはＶＴＲに記録する方法が用いられ始めている（井村　1970、井村，藤田　1975）。この装置は大きく直接方式と間接方式に分けられる。直接方式では試料を通つてきた電子を電顕内部に設置したテレビ撮像管上のターゲット上に結像させ、その電子線衝撃による内部導電効果を利用して映像信号を得る（Fig. 1-6）。一方間接方式では、普通カメラ室底部に置かれた螢光板上の像とイメージオルシコンとをファイバープレートで結んだ形式（Fig. 1-7(a)）が用いられるが、Fig. 1-7(b) のようにレンズを用いる方式でも螢光板の前にチャンネルプレートを設置することにより、前者と同程度以上の効果を上げることができる。どちらにしても解像度においては、

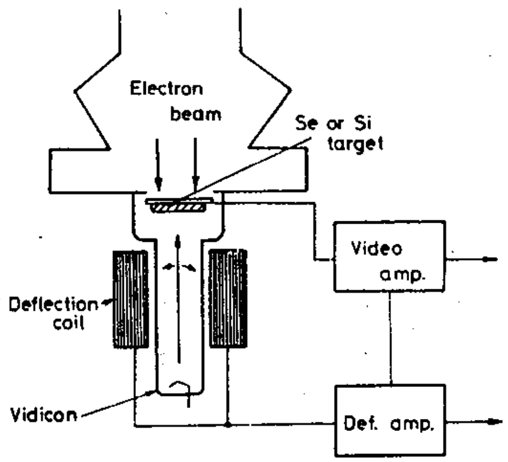


Fig. 1-6　直接方式のＴＶ装置

（from 井村 1970）

直接方式の方が優れ、輝度の増巾率においては間接方式が優り、残像の影響も小さい。

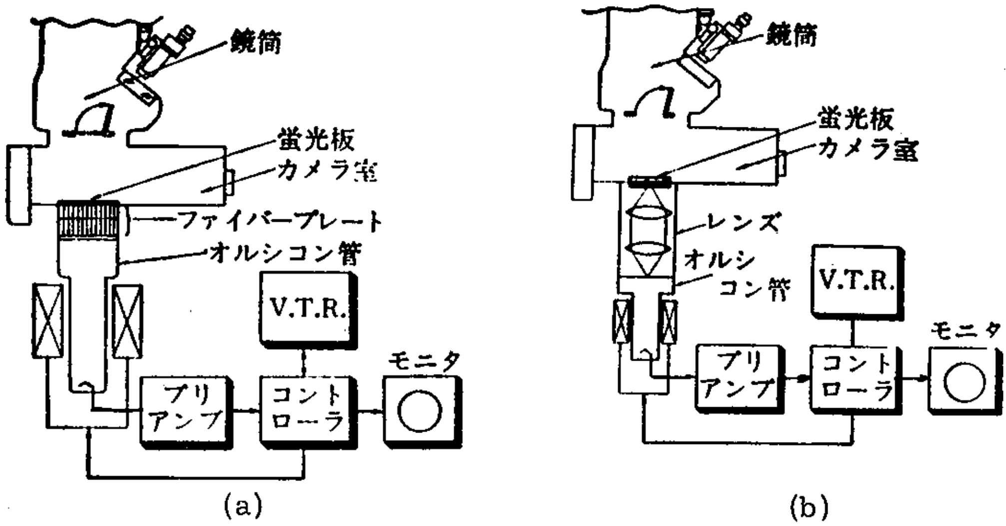


Fig. 1 - 7 間接方式のＴＶ装置

(from 安達 等 1975)

1 — 2 — 2 電子レンズ

電子レンズには静電型と磁界型のものとあるが、ここでは磁界型電子レンズの構造について述べる。

軸対称な磁界がレンズ作用をなすことはよく知られている（菅田 1956、上田 1974)。磁界レンズのもっとも単純なものは円形コイルであるが、磁界が広い範囲に分布するため、焦点距離を短くして倍率を高めることができない。実際に電子顕微鏡に用いられているものは、Fig. 1 - 8 に示すように、コイル、ヨーク、ポールピースから構成されている。すなわちコイルで発生した磁束は鉄製のヨークの中を流れ、ポールピースの上極と下極とのすきまから空間に漏れ出る。このように、磁場の作用範囲を狭くし、かつ強さを増し、磁場勾配を急にして焦点距離を短くしている。焦点距離を変えるのは励磁電流により磁場の強さを変化させて行う。磁界の作用する範囲が焦点距離よりも十分大きければ薄肉レンズとみなせ、焦点距離 f は磁場の強さ H(z)から、

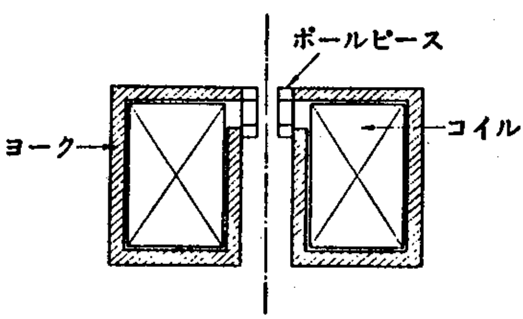


Fig. 1-8 磁界型電子レンズ

$$\frac{1}{f} = \frac{e}{8mV} \int_{-\infty}^{\infty} H(z)\,dz \qquad (1-3)$$

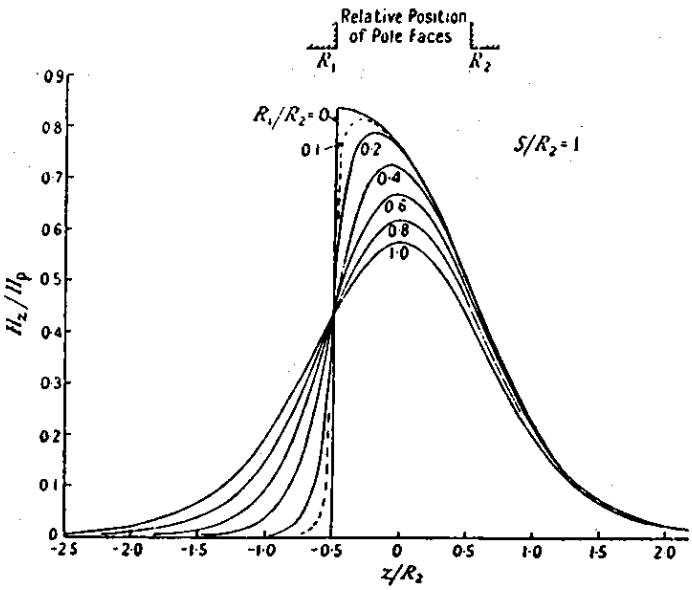
で与えられる（安達 等 1975）。ただしここで、m，e，Vはそれぞれ電子の質量、電荷、加速電圧を示す。またzは光軸方向の座標でH(z)の最大の点を原点とする。対物レンズのように強励磁して用いられるレンズの場合は、磁界はＧｌａｓｅｒ（１９４１）などにより用いられたベル型分布

$$H(z) = \frac{H_0}{1 + \left(\frac{z}{a}\right)^2} \qquad (1-4)$$

に近くなることが知られている。ここで $H_0 = H(0)$、aは $H_0/2$ となる軸上の半値巾である。また漏れ磁束が少なく、磁極の飽和が起こらない場合には

$$\frac{H_0}{\left\{1 + \left(\frac{z}{a}\right)^2\right\}^{\frac{3}{2}}} \qquad (1-5)$$

の $^3/_2$ 乗磁界分布がよく合うことも知られている（金谷 1975）。このような場合には焦点距離は、前後対称な穴径を持つポールピースに対し 解析的に求めることができるが、特に収差を少なくする目的で対物レンズなどで用いられる前後の穴径が非対称な磁極の場合には、正確な数値計算により磁界分布H(z)を求められねばならない（Ｆｉｇ．１－９、Ｌｉｅｂｍａｎｎ １９５５ ａ）。また、Ｌｉｅｂｍａｎｎ（１９５５ｂ）により前後の穴の半径が R_1、R_2、極片のギャップがＳであるポールピースをもつレンズをＮＩなるアンペアターンで励磁した時、Ｖｒで加速された電子に対して、このレンズの焦点距離 f、無限遠に像を作るための試料位置 Z_0 球面収差係数Ｃｓはともに $(S+R_1+R_2)$ Ｖｒ／(ＮＩ) にＶｒ／(ＮＩ) の広い範囲にわたつて比例していることが示されており（Ｆｉｇ。１－１０）、球面収差の小さなレンズを作るにはポールピースの穴径を小さくし、強励磁にすればよいことがわかる（Ｙａｄａ ａｎｄ Ｋａｗａｋａｔｓｕ １９７６）。



Ｆｉｇ．１－９ 非対称ポールピースを用いた時の磁界分布（ｆｒｏｍ Ｌｉｅｂｍａｎｎ １９５５ ａ）

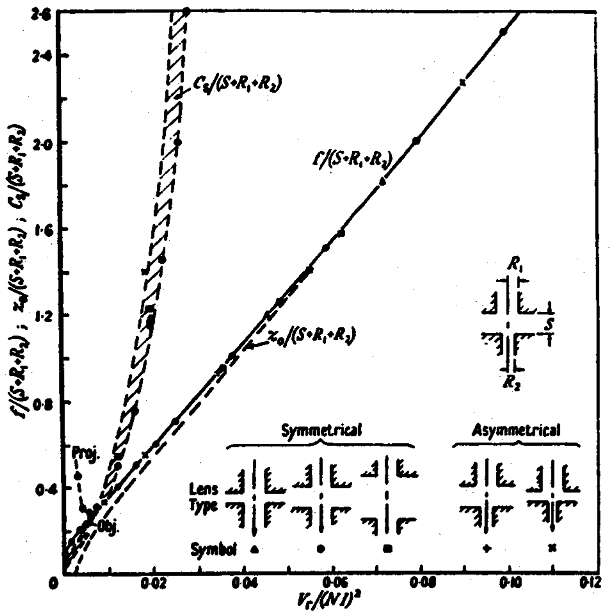


Fig. 1 - 10
磁界型レンズの焦点距離 f、無限遠へ像を作るための試料位置Z o、球面収差係数C s と起磁力との関係
(from Liebmann 1955 b)

1 − 2 − 3　電子レンズの収差

磁界レンズによる結像は、次の近軸軌道方程式（Fert and Durandeau 1967）

$$\frac{d^2 \mathbf{u}}{dz^2} + \frac{eH^2}{8m_0 V^*}\mathbf{u} = 0 \qquad (1-6)$$

でほぼ表わされている。ここで$\mathbf{u}$は位置ベクトル、V^*は相対論補正をした加速電圧、そして、e、m_0はそれぞれ電子の電荷と静止質量を示す。この方程式は線型であり、Gauss像面上で幾何光学的完全結像が行われることを示している。ただし、（1 - 6）式は次の三つの仮定の下で導かれたものである。即ち．

i）　電磁界が回転対称である。

ii）　電子の初速分布を無視する。

iii）　$\mathbf{u}$，$|\mathbf{u}'|$ の三次以上を無視する。

従つて上記の仮定からのずれによる完全結像からのずれが即ち収差でありｉ）からのずれが軸非対称収差、ii）からのずれが色収差、iii）からのそれが幾何収差といわれるものになる。幾何収差は光学レンズでいうザイデルの五収差（Born and Wolf 1959）に相当し、物面、絞り面、像面の座標をそれぞれ$u_0 = x_0 + iy_0$、$u_a = \xi + i\eta$、$u_i = x_i + iy_i$と複素数表示をすれば物面からレンズまでの距離を r_aとして、三次の幾何収差$\Delta u_i^{(3)}$は

$$\triangle u_i^{(3)} = Cs(\bar{u}_a/r_a)(u_a/r_a)^2 + Au_0^2\bar{u}_0 + Bu_0^2(\bar{u}_a/r_a)$$
$$+ Ru_0\bar{u}_0(u_a/r_a) + \{D\bar{u}_0(u_a/r_a)^2 + 2\bar{D}u_0(u_a/r_a)(\bar{u}_a/r_a)\} \qquad (1-7)$$

と表わされる（Hawkes 1967、 金谷 1976）。ただしA，B，Dは複素数、Cs、Rは実数を表わす。また、$\bar{u}_0$，$\bar{u}_a$ はそれぞれ u_0，u_a の複素共役である。この式の第一項が（狭義の）球面収差（Spherical aberration）、第二項以下がそれぞれ歪像収差（Distortion）非点収差（Astigmatism）、湾曲収差（Field Curvature）、コマ収差（Coma）に対応する。

u_0＝0即ち物面の軸上から出た軌道に対しては（1－7）式の第一項のみが残る。従つて高倍率の観察のためには幾何収差としてはこの球面収差のみを考慮すればよい。Fig. 1－11で表わされる様に、同一点から出たビームでも1, 2, 3,のようにレンズへの入射角が異なるとGauss像面では別の点に至り、全体としては錯乱円を作る。その半径は、絞りの開き角をαとすると（1－7）式より$Cs\,\alpha^3$で表わされることがわかる。

Csもfと同様、（S＋R_1＋R_2）Vr／(NI)にほぼ比例することはFig. 1-10に示した通りである。

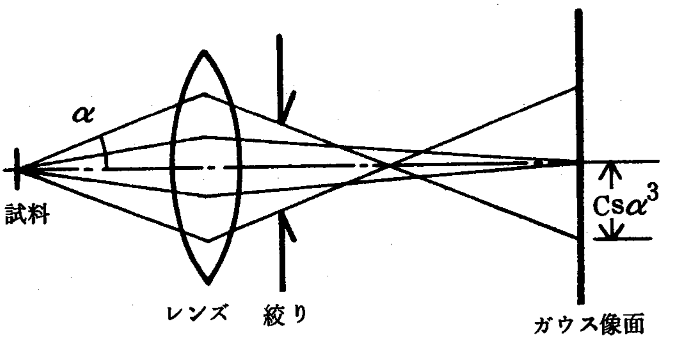


Fig. 1-11 球面収差

色収差は、電子放射の初速度の不均一、加速電圧や励磁電流が変動したり、試料透過の際、速度が変わつたりすることによつて生ずる波長の不均一に基づく収差である。電磁レンズの場合には、軸上色収差、倍率色収差、回転色収差の三種類があるが、後二つの軸外収差は分解能に直接影響しないので（金谷 1976)、以後軸上色収差のみを考える。この軸上色収差は、ほとんどが焦点距離の変化という形で表われ、

$$\delta_{ch} \approx \alpha\,\delta f = Cch\left[2\frac{\delta J}{J} - \left(\frac{\delta E}{E} + \frac{\delta E_0}{E}\right)\right]\alpha \qquad (1-8)$$

と表わされる（Hanβen and Trepte 1971、 金谷 1976）。ここで、J、δJはレンズ電流とその変動、E、δEは加速電圧とその変動、 δE_0は放出電子の平均エネルギーからのずれと試料内での非弾性散乱によるエネルギーロスを示す。

また、C_{ch} は（1－8）式で定義される色収差係数で、レンズの焦点距離と同程度の大きさである（Liebmann 1955 b）。

軸非対称収差は幾何収差における非点収差と区別することなく、一般には非点収差の名で呼ばれているが、幾何収差のそれと異なり、Fig. 1－12のように軸上でも現れ、像の解像度に大きく影響する。ただし、この収差は四極子レンズをいくつか組合わせたスティグメーターにより、実験的にも除去することができる。

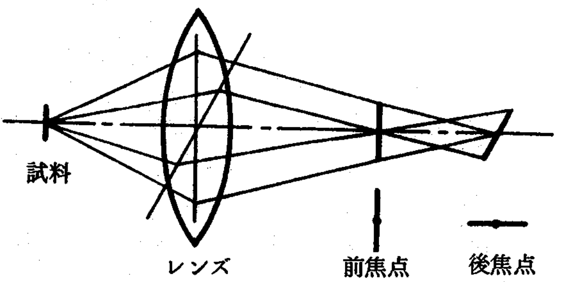


Fig. 1－12 非点収差（非対称収差）

1－2－4 分解能

Abbe（1873）の研究により、たとえレンズ系の収差を完全に取り除いたとしても、有限の開口をもつかぎり、顕微鏡の分解能は無限小とはならないことが知られる（回折収差）。軸上物点を出た周縁光線が光軸となす角（絞りの開き角）を α とするとコヒーレント照明下における分解限界は物体上で

$$\delta_D \approx 0.8\frac{\lambda}{\sin\alpha} \qquad (1-9)$$

となる（Born and Wolf 1959）。ここで λ は光の波長である。前の系数は照明光のコヒーレント度により0,5～0,8まで変化し、完全にインコヒーレントならば0,6となる（久保田 1959）。これより完全レンズの場合には α を大きくすれば分解能が上がることになる。電子顕微鏡でも同様のことが言えるが、それ以外に前述の各収差の影響が入つてくる。特に狭義の球面収差は原理的に除き得ず、分解能は前の回折収差と球面収差の両方より定められる。球面収差 δs は開き角 α とともに増加し、回折収差は α の減少とともに増加する。この両者を組合わせた δ を極小にする α_{opt} を最高分解能 δ_{min} を与える最適の開き角と考えることができるが、その組合わせ方は研究者によつても異なり、例えばGlaser（1933）は

$$\alpha_{opt} = 1{,}13\left(\frac{\lambda}{Cs}\right)^{\frac{1}{4}}$$

$$\delta_{min} = 0{,}56\ \lambda^{\frac{3}{4}}\,Cs^{\frac{1}{4}} \qquad (1-10)$$

という値を、またRebsch（1938）は

$$\alpha opt = 0.84 \left(\frac{\lambda}{Cs}\right)^{\frac{1}{4}}$$

$$\delta min = 0.95 \lambda^{\frac{3}{4}} Cs^{\frac{1}{4}} \qquad (1-11)$$

という値をインコヒーレントの場合について求めている。　（1－11）式に従えば100kV電子顕微鏡で球面収差係数が$Cs=0.7$ mmであれば$\alpha opt=0.85\times10^{-2}$rad の絞りを用いて、$\delta min\approx4.1$ Åが最高分解能となる。電子顕微鏡ではインコヒーレント照明法が用いられることもある（Nagata et al. 1976）が、一般にはコヒーレント照明に近く、δminは更に大きくなると考えられる。

1－2－5　結晶格子像

電子顕微鏡の結像方式は顕微鏡像モードと回折像モードに大別される。この二つが中間レンズの焦点距離を切換えることによつて行われる様子を光線図としてFig. 1-13に示す。

顕微鏡像はまた、Fig. 1-13(a)のように透過波を結像に取り入れるか否かによつて明視野像と暗視野像に分けられる。数万倍程度の低倍率での観察では散乱波が対物絞りにより除かれることによるコントラストを利用することが多く、収差の影響を小さくするためにも透過波のみを通

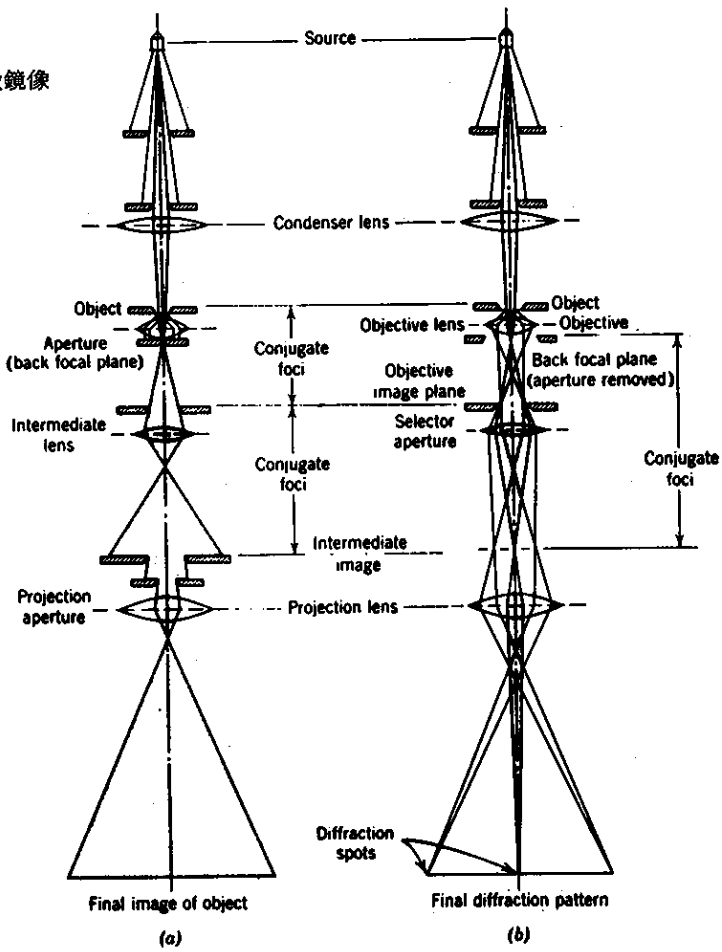


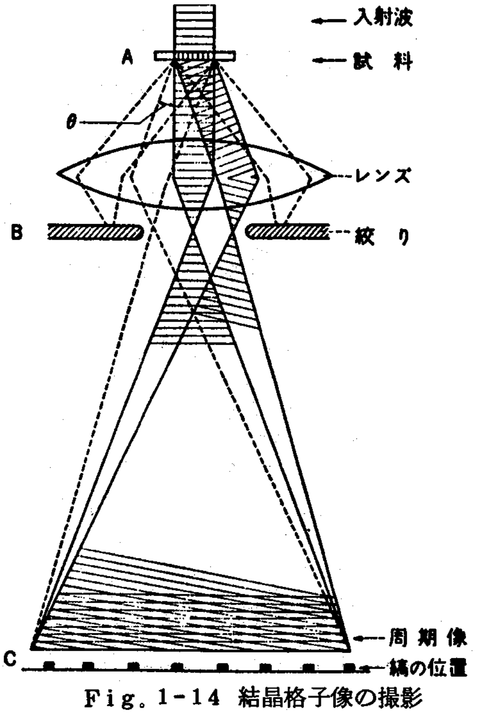
Fig. 1－13　顕微鏡像(a)と制限視野回折像(b)を得る場合の光線図
（from Heidenreich 1964）

すような10^{-3}rad以下の小さな対物絞りを用いられることが多い。超高電圧電子顕微鏡でのように回折角が小さいので収差の影響が比較的弱く、しかも厚い試料が用いられることが多い場合には透過波だけでなく2～3の回折波も用いて像を明るくすることもある（Hashimoto 1971）。

暗視野像は対物絞りを光軸からずらせるか、電子線を試料に斜め照射して透過波を光軸上の絞りから外すことによつて得られ、試料のどの部分から電子がその絞り位置へ回折されてきたかを知ったり、格子欠陥の研究（Hirsch et al. 1965、Cockayne et al. 1969）などに用いられていたが、透過波を除いているためコントラストが高く、単原子の観察にも有効である（Hashimoto 1971、Hashimoto et al. 1971、1973、Phillips, Chalk and Hugo 1972、Ottensmeyer et al. 1972）。

結晶格子像を得るためには、Fig。1-14のように二つ以上の波を対物絞り内に取り込んで結像すればよい。試料Aを通り抜けた電子線は直進するもの、これに対して$\theta=\frac{\lambda}{d}$の角度に進むもの、さらに強度は弱いがその2倍、3倍といつた角度に進むものがあり、それらがもし絞りでとられなければ、レンズの後焦点面で点像B(これが回折斑点であるが、実はこの一つ一つが電子線源の像である）となり、それが発散して結像面Cでは互いに干渉し合つて縞模様を作る。一般には、透過波（非散乱波及び前方散乱波）といくつかの回折波を用いるが、回折波のみで結像させることもある（Cowley 1973）。

二波、または四波を用いる場合には、傾斜照明法により、回折波がBragg条件を満たすようにして撮影されることが多い（Fukuhara, Komoda and Tadano 1966/1967）が、多数の回折波を用いて結像するときには、軸上照射により電子線を各格子面に対称になるように入射させて撮影されることが多い。その時、次節で述べるような適当な試料と適当な結像条件を用いれば、試料のポテンシャル分布と非常によく似た像（構造像、structure image）を得ることができ、結晶構造や欠陥の研究に用いられている（Allpress, Sanders and Wadsley 1969, Allpress and Sanders 1973, Iijima, Kimura and Goto 1973,



Fig。1-14 結晶格子像の撮影

Iijima and Allpress 1974、Yada 1971、Hashimoto et al. 1976 b)。

1－3　像コントラストに関する理論の概説

結晶格子像のコントラストの計算は、大きく二つの部分に分けられる。一つは試料中での電子の振舞いに関する部分、もう一つは試料を通過後の電子のレンズ系による結像に関する部分である。前者は更に試料の厚さの効果に関し、運動学的回折理論と動力学的回折理論に大別される。そのそれぞれについて、また何人かの人々によりいくつかの近似理論が提唱されているが、この節では、初めに収差を持つたレンズ系での結像について述べ、次にそれぞれ運動学的、動力学的電子回折理論に相当する位相格子近似とBetheにより提唱されたマトリックス法について概説する。

1－3－1　収差を持つたレンズ系の伝達関数

電子顕微鏡の結像で最も重要なのは対物レンズで、このレンズの収差が像の質をほとんど決定してしまう。というのは、他の中間、投射レンズの場合には、入射電子線の開き角が小さく、また極く近軸のみを利用するので収差の影響はほとんど無視し得るほどに小さくなつてしまうからである。そこで以後対物レンズのみを考慮した結像機構を考える。

今、結晶を出た時の電子の波動関数を $q(\mathbf{r}_0)$ とする。完全レンズの場合には、その後焦点面上にFraunhofer 回折像 $Q(\mathbf{s})$ ができる。$\mathbf{s}=(u, v)$ は逆格子空間の座標で、後焦点面上の実座標 (ξ, η) とは $u=\xi/\lambda f$、$v=\eta/\lambda f$ の関係で結びつけられる。ただし、λ, f はそれぞれ電子線の波長、レンズの焦点距離である。この時 $Q(\mathbf{s})$ は $q(\mathbf{r}_0)$ のFourier変換

$$Q(\mathbf{s})=F\{q(\mathbf{r}_0)\}=\int q(\mathbf{r}_0)\exp(-2\pi i\mathbf{s}\cdot\mathbf{r}_0)\,d\mathbf{r}_0 \qquad (1-12)$$

で表わされる。更に像面に現われる波の振巾 $\varphi(\mathbf{r})$ は $Q(\mathbf{s})$ のFourier変換

$$\begin{aligned}\varphi(\mathbf{r})&=F\{Q(\mathbf{s})\}=\int\int q(\mathbf{r}_0)\exp\{-2\pi i\mathbf{s}\cdot(\mathbf{r}_0+\mathbf{r})\}\,d\mathbf{r}_0\,d\mathbf{s}\\&=q(-\mathbf{r})\end{aligned} \qquad (1-13)$$

となる。ただしこの議論では簡単のため、倍率を1とし、（1－12）、（1－13）式等においてフレネル回折による位相因子を無視している。

レンズに球面収差があるとレンズに入射した波はその入射角に応じた位相のズレを受けることになる。また観察面上ではGauss像面からのズレによつても電子線に位相のズレが起きる。このズレもやはりレンズへの入射角に応じて変化している。

これらの位相のズレγは次のようにして計算できる（Scherzer 1949）。Fig.1-15(a)に

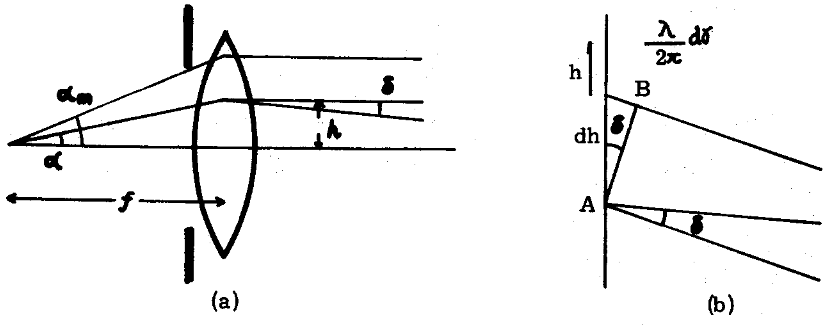


Fig. 1-15　収差による位相のおくれ（本文参照）

示すように、実際のレンズを通つたビームは収差の影響を全く受けない正焦点像を作るビームからある位相角だけ外れている。この量をδとすると、光軸に対してαで入つたビームでは

$$\delta = \frac{Cs\,\alpha^3}{f} - \frac{\triangle f\,\alpha}{f} = \frac{Csh^3}{f^4} - \frac{\triangle f\,h}{f^2} \qquad (1-14)$$

となる。ここでCsは球面収差係数、$\triangle f$は焦点の外れ量、hは入射角αのビームの入射点までのレンズ上光軸からの距離である。この外れ角δに対するビームの位相のズレをγとする。レンズの中心から入射点までの距離がdh増した時、位相がdγ増したとすると、Fig. 1-15(b)より

$$\delta = \left(\frac{\lambda}{2\pi}\right)\left(\frac{d\gamma}{dh}\right) \qquad (1-15)$$

となる。（1-14）、（1-15）式より

$$\gamma = \frac{2\pi}{\lambda}\int_0^h \delta\, dh = \frac{\pi}{2\lambda}\left(Cs\,\alpha^4 - 2\triangle f\,\alpha^2\right) \qquad (1-16)$$

あるいは、試料における空間周波数

$$s = |\mathbf{s}| = \frac{\alpha}{\lambda}$$

を用いて

$$\gamma = \frac{\pi}{2}\left(Cs\lambda^3 s^4 - 2\triangle f\lambda s^2\right) \qquad (1-17)$$

となる。実際には、有限の周波数域の波しか結像に寄与することができないから、絞り関数

$$A(\mathbf{s}) = \begin{cases} 1 & \text{when } |\mathbf{s}| < d \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \qquad (1-18)$$

を導入して、$A(\mathbf{s})\exp\{-i\gamma(\mathbf{s})\}$が系の伝達関数となる（transfer function）。この時、像面における波動関数$\varphi(\mathbf{r})$は（1-13）式ではなく

$$\varphi(\mathbf{r}) = q(\mathbf{r}) * F[A(\mathbf{s})] * F[\exp\{-i\gamma(\mathbf{s})\}] \qquad (1-19)$$

であり、電子顕微鏡像として観察される強度は

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}) &= |\varphi(\mathbf{r})|^2 \\ &= |q(-\mathbf{r}) * F[A(\mathbf{s})] * F[\exp\{-i\gamma(\mathbf{s})\}]|^2 \end{aligned} \qquad (1-20)$$

となる。ここで$*$はコンボリューション積分を表わす。色収差及び照射電子線のコヒーレンス度を考慮する場合には、少し複雑になる。Hanßen and Trepte（1971）によれば、色収差については

$$\delta\gamma \approx -\frac{s^2\lambda}{2}\delta(\triangle f) = -\frac{Cch}{2}s^2\lambda\left[2\frac{\delta J}{J} - \left(\frac{\delta E}{E} + \frac{\delta Eo}{E}\right)\right] \qquad (1-21)$$

とすることができる。ここでCchはレンズの色収差係数、J, E, δJ, δE はそれぞれレンズ電流と加速電圧及びそれらの変動を表わし、δEoは陰極から放出された熱電子のエネルギーの平均からのズレである。ここで、確率変数$\triangle = \triangle f - \triangle f_o$とその度数分布関数H(△)を導入する。$\triangle f_0$は$\triangle f$の平均値であり、H(△)は

$$\frac{dI}{d\gamma} = I(\mathbf{r}, \triangle)H(\triangle), \quad \int_{-\infty}^{\infty} H(\triangle)\, d\triangle = 1 \qquad (1-22)$$

で定義される。その時、像の強度は

$$I(\mathbf{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} |q(\mathbf{r}) * F[A(\mathbf{s})] * F[\exp\{-i\gamma(\mathbf{s})\}]|^2 H(\triangle)\, d\triangle \qquad (1-23)$$

として求められる。（1-13）式は一般には像に対し直観的なイメージを与えない。ただ特別な場合として

$$Q(0) \gg Q(\mathbf{s}), \quad \mathbf{s} \neq 0 \qquad (1-24)$$

の時には像強度はもう少し簡単な関係で表わされる。特に試料が十分大きな完全結晶であれば

$$Q(\mathbf{s}) = \Phi o\ \delta(\mathbf{s}) + \sum_{n} \Phi(\mathbf{s})\ \delta(\mathbf{s} - \mathbf{g}_n) \tag{1-25}$$

$$q(\mathbf{r}) = \Phi_0 + \sum_{n} \Phi(\mathbf{g}_n)\ \exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r}) \tag{1-26}$$

と表わせる。ここで

$$\Phi o = |\Phi o|\ \exp(i\phi o)$$

$$\Phi(\mathbf{g}_n) = |\Phi(\mathbf{g}_n)|\ \exp\{i\phi(\mathbf{g}_n)\} \tag{1-27}$$

とおく。もし $|\Phi(\mathbf{g}_n)|$、$\phi(\mathbf{g}_n)$ が偶関数で、各回折波に対し、$-\mathbf{g}_n$ の回折波をも結像に用いれば、(1-23) 式は $|\Phi(\mathbf{g}n)|$の2次の項を無視して

$$I(\mathbf{r}) = \int \Big|\, |\Phi o|\exp(i\phi_0) + \sum_{n=1}^{N} |\Phi(\mathbf{g}_n)|\exp[i\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_n)\}]$$

$$\exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r})\Big|^2 H(\triangle)\ d\triangle$$

$$= \int |\Phi_0|^2\ H(\triangle)\ d\triangle + 2\int\Big[\sum_{n=1}^{N} |\Phi_0|\,|\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_n)$$

$$\}\exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r})\Big] H(\triangle)\ d\triangle \tag{1-28}$$

となる。ただしNは結像に用いられた波の数を表わす。ここで $|\Phi o|$、$|\Phi(\mathbf{g}_n)|$、$\phi(\mathbf{g}_n)$、$\gamma(\mathbf{g}_n)$ が電子のエネルギーEの関数であるが、その極く小さな変動に対しては $\gamma(\mathbf{g}_n)$ のみが影響を受けると仮定する。その時

$$Io = \int |\Phi o|^2\ H(\triangle)\ d\triangle \tag{1-29}$$

を像の平均強度として

$$I(\mathbf{r}) = I_0 + 2\sum_{n=1}^{N} |\Phi_0|\,|\Phi(\mathbf{g}_n)|\exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r}) \int \cos$$

$$\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_n)\} \cdot H(\triangle)\ d\triangle \tag{1-30}$$

と表わせる。ここで

$$\int \cos\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_n)\}\, H(\triangle)\ d\triangle$$

$$= \int \cos\Big[\phi(\mathbf{g}) - 2\pi\Big\{\frac{Cs\,\lambda^3|\mathbf{g}|^4}{4} - \frac{(\triangle f o + \triangle)\,\lambda\,|\mathbf{g}|^2}{2}\Big\}\Big]\, H(\triangle)\ d\triangle$$

$$= \cos\{\phi(\mathbf{g}) - 2\pi(\frac{Cs\lambda^3|\mathbf{g}|^2}{4} - \frac{\Delta f_o\lambda|\mathbf{g}|^2}{2})\}\int\cos(\pi\lambda|\mathbf{g}|^2\Delta)$$

$$H(\Delta)d\Delta + \sin\{\phi(\mathbf{g}) - 2\pi(\frac{Cs\lambda^3|\mathbf{g}|^4}{4} - \frac{\Delta f_0\lambda|\mathbf{g}|^2}{2})\}$$

$$\int\sin(\pi\lambda|\mathbf{g}|^2\Delta)\,H(\Delta)\,d\Delta \qquad (1-31)$$

となるからH(△) が△＝0に対して対称な偶関数であれば、(1 - 30) 式は

$$\left.\begin{aligned} G(\mathbf{g}) &= \int\cos(\pi\lambda|\mathbf{g}|^2\Delta)\,H(\Delta)\,d\Delta \\ \gamma o &= 2\pi(\frac{Cs\lambda^3|\mathbf{g}|^4}{4} - \frac{\Delta f o\lambda|\mathbf{g}|^2}{2}) \end{aligned}\right\} \qquad (1-32)$$

とおいて

$$I(\mathbf{r}) = Io + 2\Sigma|\Phi o||\Phi(\mathbf{g}_n)|\,G(\mathbf{g}_n)\cos\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma o(\mathbf{g}_n)\}$$

$$\exp(-2\pi i\mathbf{g}_n\cdot\mathbf{r}) \qquad (1-33)$$

となる。G(g)の値はH(△) の正確な数値計算による値から求められねばならないが、Hanβen and Trepte (1971) はいくつかの H(△) の形を仮定して解析的に求めている。今、H(△)が半値巾 δ Eo のMaxwell分布をしていると仮定するならば

$$G(\mathbf{g}) = \{1 + (\frac{\pi\,\delta Eo}{2.45\,E}\,Cch\lambda|\mathbf{g}|^2)^2\}^{-1} \qquad (1-34)$$

となる。またFrank (1973、 1975) は試料に収束ビームを照射した場合について部分的コヒーレンスを考慮した結像特性を求め、Anstis and O'Keefe (1976) 、Anstis, Iijima and O'Keefe (1976)はコヒーレンスを同時に考慮して系の伝達関数を比較的簡単な式で表わしている。

1－3－2 位相格子近似と弱い位相物体

結晶が薄い時、入射電子波は結晶の持つているポテンシャルで屈折する。この時の透過電子波の位相は次のようにずれる。

入射電子線の方向に投影した結晶のポテンシャルを$\phi p(\mathbf{r}_0)$とするとこの結晶内における電子の波長は

$$\lambda = \frac{h}{[2me\{V+\phi p(\mathbf{r}_0)\}]} \approx \lambda_0\{1-\frac{\phi p(\mathbf{r}_0)}{2V}\}$$

（１－３５）

で与えられる。ただしλoは真空中の電子の波長で

$$\lambda o = \frac{h}{(2meV)^{\frac{1}{2}}} \qquad (1-36)$$

またVは加速電圧である。したがつて厚さ△Zの結晶を通過する時の電子波の位相のずれ

$$2\pi\left(\frac{1}{\lambda}-\frac{1}{\lambda o}\right)\triangle Z \qquad (1-37)$$

は（1－35）式を代入して

$$\{\pi/(\lambda_0 V)\}\phi_p(\mathbf{r}_0)\ \triangle Z \qquad (1-38)$$

となる。これより位相物体（結晶）の透過関数は

$$q(\mathbf{r}_0) = \exp\{-i\sigma\phi(\mathbf{r}_0)\} \qquad (1-39)$$

となる。ただし、　$\phi(\mathbf{r}_0)=\phi p(\mathbf{r}_0)\triangle Z$であり、　$\sigma=\pi/(\lambda o V)$である。

いま$\sigma\phi(\mathbf{r}_0)$の値が$\pi/2$より非常に小さい時は

$$q(\mathbf{r}_0) \approx 1-i\sigma\phi(\mathbf{r}_0) \qquad (1-40)$$

とおくことができる。この場合に試料を弱い位相物体と呼び、非常に軽い原子から成る試料では、50～200Åぐらいの厚さまで成り立つ（Erickson and Klug 1971、Fejes 1972）。

既に（1－19）に示したように、像面の波の振巾は絞りの効果を考えず、倍率を１とすると

$$\varphi(\mathbf{r}_i) = \{1-i\sigma\phi(\mathbf{r}_i)\} * F[\exp\{-i\gamma(\mathbf{s})\}] \qquad (1-41)$$

であるから明視野像の強度は（1－40）式同様　$\sigma\phi(\mathbf{r})$の２次の項を省略すると

$$I(\mathbf{r}_i) \approx 1 - 2\sigma\phi(-\mathbf{r}_i) * F\{\sin\gamma(\mathbf{s})\} \qquad (1-42)$$

となる。最良の位相コントラストを得るためにsin γが－1か＋1になる条件にする必要がある。その時には$\mathbf{s}=(u, v)$、$\mathbf{r}_i=(x, y)$として、sin γのFourier変換の項はGel'f and and Shilov（1964 p. 34－39）より

$$F\{\sin\gamma(\mathbf{s})\} = \lim_{u_0, v_0 \to \infty} \int_{-u_0}^{u_0}\int_{-v_0}^{v_0} \mp \exp\{-2\pi i(ux+vy)\}\, dv\, du$$

$$= \mp \lim_{u_0, v_0 \to \infty} \frac{\sin 2\pi u_0 x}{\pi x} \cdot \frac{\sin 2\pi v_0 y}{\pi y}$$

$$= \mp\, \delta(x, y)$$

$$= \mp\, \delta(\mathbf{r}_i) \qquad (1-43)$$

とDiracのδ関数で表わせるから、（1－42）式は

$$I(\mathbf{r}_i) = 1 \pm 2\sigma\phi(\mathbf{r}_i) \qquad (1-44)$$

となる。観察される像の強度は入射電子線の方向に投影された物体の静電ポテンシャルに比例する上の条件はsin γをいろいろと異なる焦点外れ量に対して計算するとよくわかる。Fig. 1-16にCs＝0.7mmで加速電圧が100 kVの場合の焦点外れ量Δfが100Å、600Å、1200Åのときのsin γの値を$\mathbf{s}$の絶対値sに対して示してある。

Scherzer（1949）により指摘されたごとく

$$\Delta f = \sqrt{(1-2n)\, C_s \lambda}\,、（n：0または負の整数） \qquad (1-45)$$

のとき、特にn＝0のオプティマムフォーカスΔf＝508Åに近い焦点外れ量ではかなり広い範囲にわたつて連続的にsin γが－1に近い値をとる。Δf＝600Åでは0. 12Å^{-1}から0.33Å^{-1}の領域で－1に近い値をとり、sが0.35Å^{-1}より大きくなると正、負の値を交互にとるので、これを絞りで取り去ると高いコントラストの像が得られる。この時、（1－44）式のコントラストで与えられる像の解像度は～3Åとなる。

結晶試料内の電子の振舞いを議論する回折理論には他に運動学的近似法（Hirsch et al. 1965）がよく知られている。これはBornの第1次近似を用いたものである。これは$F\mathbf{g}_n$を結晶構造因子として

$$Q(\mathbf{s}) = F\{q(\mathbf{r}_0)\} = \delta(\mathbf{s}) - i\sum_n F\mathbf{g}_n\delta(\mathbf{s}-\mathbf{g}_n) \qquad (1-46)$$

とすると弱い位相物体近似と等価になる。

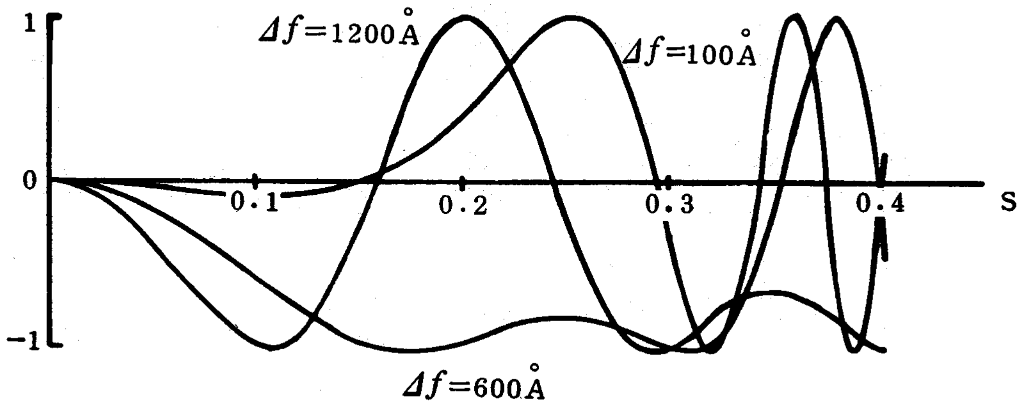


Fig. 1-16 弱い位相物体に対するコントラスト伝達関数

△ƒ＝600Å付近が～3Å以上の構造に対して最適焦点条件となる(Scherzer フォーカス)

1－3－3　動力学的電子回折理論

結晶中の電子の振舞いを動力学的に記述する理論としては、初めEwald（1917、1920)により×線回折に対して提出され、Bethe（1928）により電子回折に対して作り上げられた量子力学的取扱いや×線回折ではDarwin（1914）により用いられ、電子回折ではHowie and Whelan（1961，1962）によるコラム近似やCowley and Moodie（1957 a～e）によるマルチ・スライス法として用いられた波動光学的取扱い等が良く知られている。

この節では、Betheにより開発され、Kato（1952）、Whelan and Hirsch(1957) Hashimoto, Mannami and Naiki（1961）、Fukuhara, Komodo and Tadano（1966／1967）その他多くの人々により展開された方法について概説する。

今、試料は平行な二つの表面を持つ板状結晶で、入射波は一方の境界面に真空中から入射するものとする。結晶中における入射電子はSchrödinger方程式

$$\nabla^2\varphi + \frac{8\pi^2 me}{h^2}\{E + V(\mathbf{r})\}\varphi = 0 \qquad (1-47)$$

を満足する。ただしEは加速電圧、V（$\mathbf{r}$）は結晶中の静電ポテンシャルである。ここで

$$\frac{2me}{h^2}E = k_0^2$$

$$\frac{2me}{h^2}V(\mathbf{r}) = U(\mathbf{r}) \qquad (1-48)$$

とおくと（1－47）式は次のように書き直せる。

$$\nabla^2\varphi + 4\pi^2\{k_0^2 + U(\mathbf{r})\}\varphi = 0 \qquad (1-49)$$

U（**r**）は格子の周期を持つ周期関数だから、逆格子ベクトル **g** を用いて

$$U(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} U_{\mathbf{g}} \exp(2\pi i\mathbf{g}\cdot\mathbf{r}) \qquad (1-50)$$

とFourier級数に展開することができる。式（1-49）の解はBloch波の一次結合

$$\varphi(\mathbf{r}) = \sum_{j} A^{(j)} \sum_{\mathbf{g}} C_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}^{(j)}) \exp 2\pi i(\mathbf{k}^{(j)}+\mathbf{g})\cdot\mathbf{r} \qquad (1-51)$$

で表わされる。ここでA jは結合定数、$C_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}^{(j)})$は振巾でjは反射波**g**の数と同数になる。これが（1－49）式を満足せねばならないので代入して整理すると

$$\{\mathbf{X}_0^2 - (\mathbf{k}_0^{(j)}+\mathbf{g})^2\} C_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}^{(j)}) + \sum_{\mathbf{h}}{}' U_{\mathbf{h}} C_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^{(j)}(\mathbf{k}^{(j)}) = 0 \qquad (1-52)$$

となる。ここで$\mathbf{X}_0^2 = \mathbf{k}_0^2 + U_0$で$\mathbf{X}_0$は試料内を通過する電子の波動ベクトル、$\Sigma'$は $\mathbf{h}=\mathbf{g}$を除いた和を表わす。n個の波が励起されると（1－52）式はn個の組になり各ブランチjについて

$$\mathbf{X}_0^2 - (\mathbf{k}_0 + \mathbf{g})^2 = \mathbf{X}_0^2 - \mathbf{k}_0^2 - (-2k_x g + \mathbf{g}^2) \qquad (1-53)$$

とおけるので、（1－52）式は次のような固有値方程式になる。ただし－k_xは $\mathbf{k}_0$の**g**方向への投影であり、g＝|**g**|，h＝| **h** |である。

$$\begin{pmatrix} 2k_x g - g^2 \cdots\cdots & U_{\mathbf{g}} & \cdots\cdots U_{\mathbf{g}-\mathbf{h}} \\ U_{-\mathbf{g}} & \cdots\cdots 0 & \cdots\cdots U_{-\mathbf{h}} \\ U_{\mathbf{h}-\mathbf{g}} & \cdots\cdots U_{\mathbf{h}} & \cdots 2k_x h - h^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{\mathbf{g}} \\ \vdots \\ C_0 \\ \vdots \\ C_{\mathbf{h}} \end{pmatrix} = (\mathbf{k}_0^2 - \mathbf{X}_0^2) \begin{pmatrix} C_{\mathbf{g}} \\ \vdots \\ C_0 \\ \vdots \\ C_{\mathbf{h}} \end{pmatrix} \qquad (1-54)$$

上式で、$U_{\mathbf{g}}$、$\mathbf{g}$、k_x が与えられると、結晶の表面での境界条件を考慮して、振巾 $C_{\mathbf{g}}^{(j)}$ ($\mathbf{k}^{(j)}$) と ($\mathbf{K}_0^2$ - $\mathbf{X}_0^2$) が求まる。

これが求まると、結晶の下面を出ていく波は、結晶の厚さを $\mathbf{Z}$ で表わすと

$$\varphi(\mathbf{Z}) = \sum_{\mathbf{g}} \sum_{j} A^{(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} \exp(2\pi i \mathbf{k}_0^{(j)} \cdot \mathbf{Z}) \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \qquad (1-55)$$

入射ビームに対して α の角度で散乱されるビームはレンズを通り抜けるとき位相の変化を受けるので、(1-17) 式の $\gamma(\alpha \mathbf{g})$ を用いて像面における電子波の振巾は

$$\varphi(\mathbf{r}_i) = \sum_{\mathbf{g}} \sum_{j} A^{(j)} C_{\mathbf{g}}^{(j)} \exp(2\pi i \mathbf{k}_0^{(j)} \cdot \mathbf{Z}) \exp\{-i\gamma(\alpha \mathbf{g})\} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \qquad (1-56)$$

となり、強度は

$$I(\mathbf{r}_i) = \varphi(\mathbf{r}_i)\,\varphi^*(\mathbf{r}_i) \qquad (1-57)$$

で与えられる。

1－4　微小領域制限視野回折法の現状と限界

1－4－1　制限視野回折法における最小制限領域

3段あるいは4段の結像レンズ系を持つ電子顕微鏡では顕微鏡像の視野の一部分のみからの電子回折像を得ることができる (Boersch 1947、Lepoole 1947、Tanaka and Hashimoto 1953)。これを制限視野回折といい、物性研究の有力な手段として用いられている。対物レンズの後焦点面には試料の回折像が形成されている。従つてFig. 1-13のように、中間レンズの焦点を対物レンズの像面にあわせれば試料の拡大像が、また対物レンズの後焦点面にあわせれば試料の回折像の拡大像が得られる。即ち、中間レンズ電流の調整のみによつて電子顕微鏡像と電子回折像が得られるわけである。

試料の特定の部分からの回折像を得ようとする場合にはFig. 1-17に示すように視野制限絞りを用いる。図のように試料中に二つの結晶A，Bがあり、それらが回折点D_A, D_Bおよび像A′, B′を与えている場合、視野制限絞りを像面のA′の位置に挿入すると、A′を形成する電子線は絞りを通過するがB′を形成する電子線は遮られる。対物レンズの倍率は50～100倍であり、$50\mu^{\phi}$ の絞りを用いたとすると試料面上では$0.5\sim1\mu^{\phi}$の絞りを挿入したことに等しい。即ち、螢光板上には結晶Aからの回折パターンD_Aが現われ、Bからの回折パターンD_Bは現われない。この方法により、視野内の任意の場所を選択してその部分からの回折像を得ることが可能になつた。

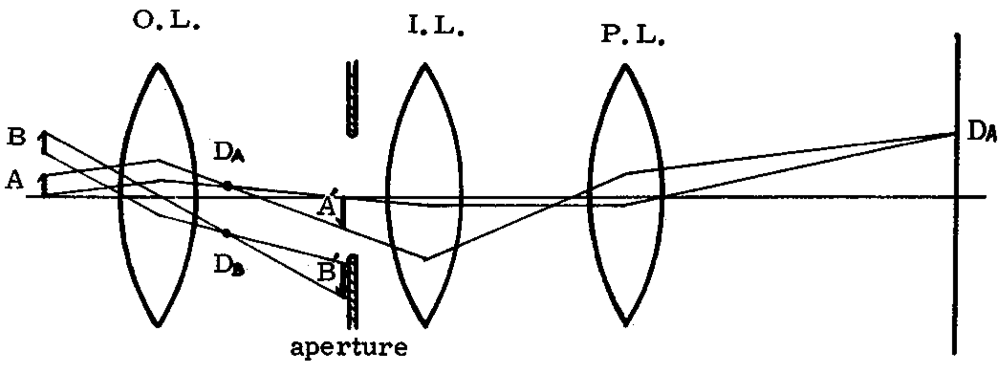


Fig. 1-17 制限視野電子回折法の原理

更に小さな絞りを用いると、もつと狭い範囲に視野を制限することもできる。しかし現実には、対物レンズの球面収差の為回折ビームの「まわり込み」による誤差が存在し、あまり制限領域を小さくすると、電子顕微鏡像と回折像が対応しなくなる。つまり、制限視野回折を行なう時は、普通まず小さな対物絞りを用いて透過波のみを結像させた明視野像で焦点を合わせ、Fig.1-18に示すように視野制限絞りを入れる。その時には試料A—Cの像がB′—D′に投影される。

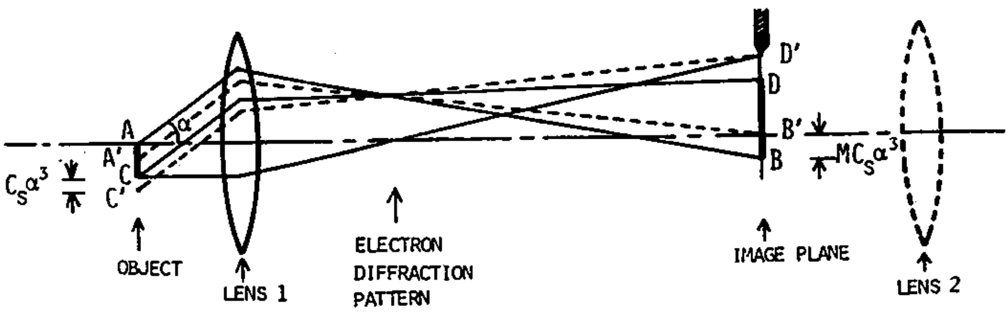


Fig. 1-18 制限視野回折における対物レンズ（LENS I）の球面収差のためのビームのまわり込みと視野の関係

しかる後に対物絞りを除いて回折像を得るわけであるが、対物レンズ（LENS 1）の球面収差のため、各回折波によるA—Cの像はB′—D′からずれてしまう。例えば試料から角度αで回折された波による像は、対物レンズの球面収差係数をC_s、倍率をMとして、$MC_s\alpha^3$だけはずれたB—Dに作られる。そして実際にB′—D′を通つて回折像として観察されている波は、試料のA—Cから、$C_s\alpha^3$だけはずれたA′—C′の部分で回折されたものになつている。よつてこの試料上でのずれ量、

$C_s\alpha^3$、即ち面間隔 d を用いると Cs (λ/d)^3 が間隔 d 以上の格子面のみを問題とする時の最小制限領域となる。この場合、回折像には $C_s\alpha^3$ 以内で隣接する試料の影響が同時に含まれていることになる。この値はレンズの球面収差係数を小さくすればそれに比例して小さくなるが、現在市販されている世界最高級の電子顕微鏡（100kVでCs=0.7mm）を用いてもなお、金の(400)格子面（d=1.02Å）に対して直径約350Åの領域が制限限度となる。実際の研究では d=0.3Å程度の回折斑点が利用されることが多く、その場合には $2\sim3\times10^3$Å位の視野の制限が最小限度となる。しかし、現実には、金属中での微結晶の析出や、多結晶中の各結晶粒に関しての研究等、より小さな領域での制限視野回折像が望まれることがしばしばあり、そのため、上の限度を克服しようと努力がなされて来た。次にそれらの研究のいくつかを述べる。

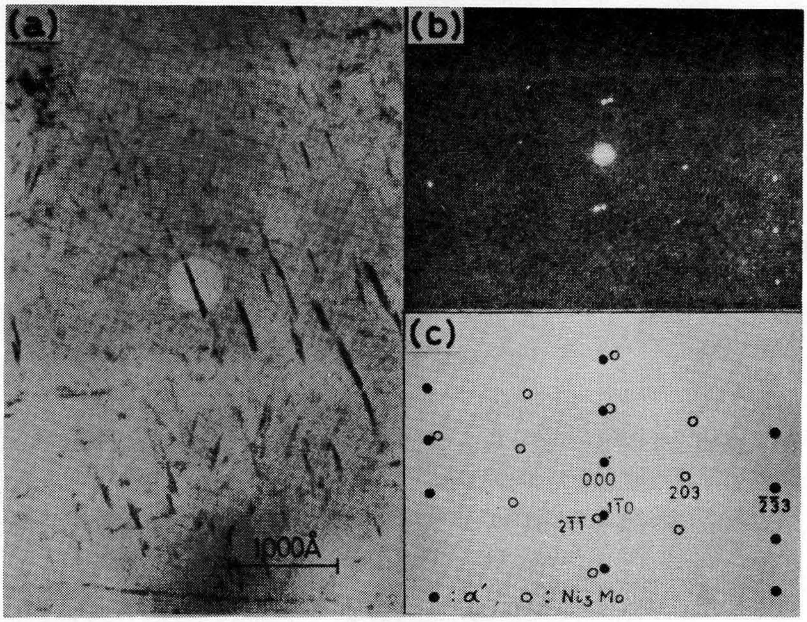
1－4－2　超高電圧電子顕微鏡による制限視野回折

上で述べたように、より小さな領域からの制限視野電子回折像を得ようとすれば、Csを小さくするか、回折角を小さくせねばならない。回折角 α は電子線の波長と比例しているから同じ格子面からの回折波でも電子の加速電圧が高くなり、その波長が短くなれば回折角 α も小さくなり、最小制限領域はその3乗に比例して小さくなる。例えば1000kVの電圧のときには、λ=0.0087Åであるから、Cs＝10mmでも金の400回折波に対するまわり込み量は約62Åになる。つまり、1000kV電子顕微鏡では視野を100Å以下に制限しても顕微鏡像と対応性のよい回折像が得られることになる。このように超高電圧電子顕微鏡が微小領域の制限視野回折に有効なことはUyeda et al.(1963) 及びDu pouy et al.(1963) によつて1000kV電子顕微鏡を使つて示された。

超高電圧電子顕微鏡では高エネルギ－粒子線に対して強い磁場を作るのが容易でなく、対物レンズの倍率は50倍程度である。したがつて試料面上で500Åに制限しようと思えば、像面に2.5μ の絞りを入れねばならない。しかし、通常製作可能な穴径はたかだか10μ位であるから、試料位置での実効制限視野を500Å以下にするためには、対物レンズは200倍以上の倍率を持たねばならない。そこで、対物レンズと視野制限絞りの間に4倍以上の倍率を持つ補助レンズを1枚挿入すれば視野制限絞り位置での倍率を200倍以上にすることができ、試料面上で500Å以下の領域を制限することが可能となる。このように補助レンズを加えた5段結像レンズ系を持つ650kV電子顕微鏡も作られた (Koreeda et al. 1971)。

Fig. 1-19は是枝等によつてなされた研究の1例で、硬くて、ねばい鉄鋼材料として注目されている マルエージング鋼の組織(a)とその中の白丸部の制限視野電子回折像(b)及びその指数(c)である。(b)では地結晶とただ1個の析出物による2組の回折像だけが現われていて、しかもそれらは同程度の

強度であるため、それぞれの斑点が接近していても分離識別が容易である。このような回折像をいろいろの方位のものについて詳しく調べることにより、この析出物が斜方晶のNi_3Moであること及びその地結晶に対する結晶方位が明確にされた。



Fig。1-19　650kV超高電圧電子顕微鏡による制限視野回折
(a) マルエージング鋼の組織、析出物（Ni_3Mo）が多く見られる。
(b) (a)の白丸部の制限視野回折像
(c) (b)の説明
（from Koreeda et al. 1971）

1－4－3　マイクロビームによる制限視野回折

前項までに述べた制限視野回折法は、対物レンズの像面に絞りを入れて視野の制限を行なう、いわば間接的制限法であり、従つて対物レンズの収差の影響を強く受けた。それに対し、電子ビームを細く絞り、試料への入射領域を小さくすることにより、直接視野を制限すれば、対物レンズの収差による回折波のまわり込みで視野の制限に誤差を生ずる事はなくなる。

焦束レンズの励磁を強くし、可動絞りに小さいものを用いると、極く細いビームが得られる。しかしこの方法では、集束レンズの収差が影響する事、及び10μ以下の小さな絞りを作るのが困難な事などから試料面上で0.1〜0.5μ程度の径のビームしか得られず、それ以下の微小領域制限視野回折は容易ではない。

そこで、試料を対物レンズの磁場の中心付近に挿入し、レンズの前方磁界を集束レンズ同様ビームを絞るために用い、後方磁界を通常の対物レンズの如く結像に用いると、いわゆるsingle-field-condenser-objective（C/O）レンズの条件となり、直径100Å程度の狭い領域からの回折像が得られる。この方法はRiecke（1969）により提案された通常の透過型電子顕微鏡（CTEM）によるものであるが、細く絞つた電子線を試料に照射する技術は、走査型電子顕微鏡の発達と共に進歩しており、走査型透過電子顕微鏡（STEM）を用いた微小領域制限視野回折も行われている。この場合原理的には、結像光学系は必要とせず、試料下方の光軸上に固定された検知器で信号を取り出す。電子線は細く絞られた後、偏向装置により試料上の一点へいろいろな角度で入射される。つまり、ある格子面に対するBragg角をθ_Bとすると、入射ビームが光軸と$2\theta_B$傾いた時、その格子面による回折波は光軸方向に回折されその強度が検知器で測定される。そして偏向装置から取り出したビームの入射角と検知器からの出力を同期させて、CRT上に試料の回折像が得られる（Rocking-beam法；van Oostrum, Leenhouts and Jore 1973）。

Geiss（1975）はFig. 1-20のように上で述べたC/Dレンズの条件とロッキングビーム法とを併用することにより、直径約30Åの領域内の金の微粒子からの回折像を得ている。

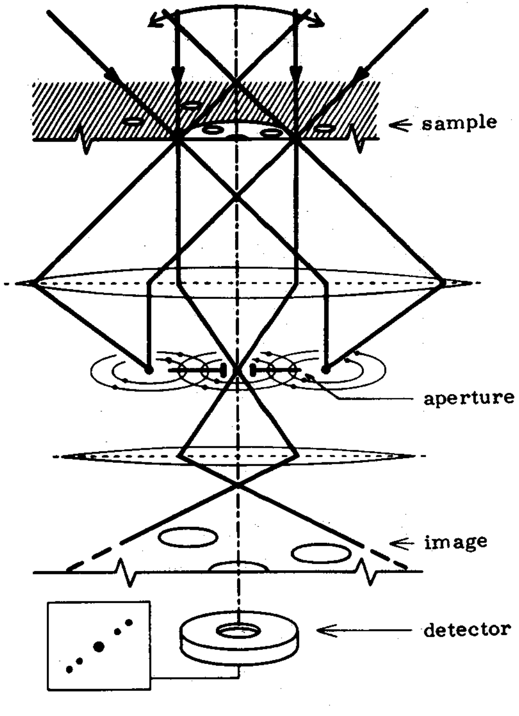


Fig. 1-20
C/Oレンズ条件とロッキングビーム法を組み合わせた走査型透過電子顕微鏡による微小制限視野回折法の光路図
(from Geiss 1975)

1－4－4　電子顕微鏡像の光回折

今まで述べてきたいくつかの微小領域制限視野回折法は、実際に試料の狭い領域から回折された電子線を記録するものであつた。そこで全ての方法に共通した欠点は、回折像を記録するために要する時間が十数秒から時には数十秒と大そう長くかかる事である。それ故、試料のドリフト、制限視野と視野絞りとの相対的移動及び強い電子線を試料に長時間照射することによる試料の汚染や損傷が正確な研究遂行の防げとなる。特に鉱物、非金属、生物等の試料の場合には視野をあまり狭くして強い電子線を照射すると損傷が著しく、微小領域での制限視野電子回折は容易ではない。

最近、多数の回折波を結像に用いた結晶格子像が得られている。この像には結晶の情報が数多く取り込まれており、これを用いた回折像の撮影が最近行われるようになつている（Hashimoto 1976、Tanji and Hashimoto 1977）。この場合、電子顕微鏡像の撮影は、従来の微小領域制限視野電子回折法に比べて、露出時間は極めて短く、1～数秒で十分である。この方法は得られた結晶格子像をFig. 1-21のような光学系で光回折像を得るものである。この方法では光を用いているので記録されたフイルムを損うこともなく、またフイルムと絞りの関係は十分な精度で正しく定められ任意の視野からの制限視野回折像が容易に得られる。

従来、光回折は雑音に埋もれた格子像の確認といつたあくまでも電子顕微鏡像の補助として用いられていたに過ぎなかつた。それは、格子縞の間隔など、わざわざ光回折を用いずとも像から直接測定すれば十分であると一般に考えられていたことにもよるのであろう。

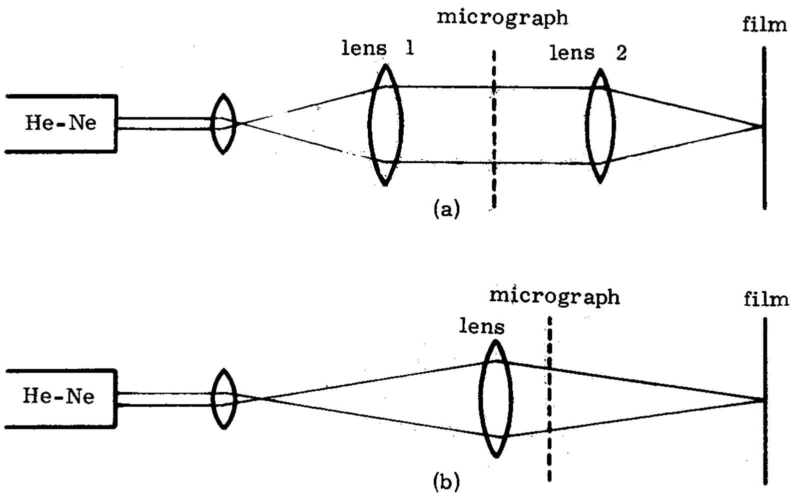


Fig. 1 - 21　光回折光学系
(a) 試料の位置に無関係にlens 2の焦点距離がカメラ長
(b) 試料からfilmまでの距離がカメラ長

試料の解析に積極的に活用されたのはまず、生物試料に対

してであつた（Klug and Berger 1964、野々村 1975）。その後、非晶質薄膜の像の光回折像による電子顕微鏡の結像特性の研究（Thon 1965、1966、Erickson and Klug 1971、Krakow, Downing and Siegel 1971、Burge and Scott 1975 b、Krivanek 1976）もあるが極微小領域制限視野回折としての光回折の応用は著者等による長石の格子像に対するもの（Hashimoto, Tanji, Ono and Kumao 1975）やCu_3Auと$Au-Ni$合金の格子像に対するもの（Sinclair, Gronsky and Thomas 1976）などが最初であり、直径10Å以下の領域からの回折像も得られている。また、Sinclair and Dutkiewicz（1977）によりMg_3Cdにおけるオーダーリングや中間構造の研究などに利用されている。この光回折像と電子回折像との対応については第2章に詳しく述べる。

1－5　電子顕微鏡像の画像修正の原理と現状

この節では、一度フイルムに記録された電子顕微鏡像の光学的な画像修正について述べる。

1－5－1　伝達関数の改善

電子顕微鏡像は、1－3－1で記したように収差や焦点外れの影響を強く受けている。しかし、用いられている電子線が、小さな線源から放出された平行度の良い（10^{-3}～10^{-4}rad）ものであるため、その可干渉度はかなり高い。従つて記録された波の位相の情報を失つてしまつた像を後で処理して元と同じ構造の像にするのは一般に困難な事である。（この事は、非干渉性ビームであれば可能である。）ただ、弱い位相物体の如く像のコントラストが低い試料、即ち散乱波が透過波に比べて非常に弱いような試料であれば、像面における波の位相の一部を記録された像から取り出す事ができる。近年、電子顕微鏡の性能向上に合わせて、このような試料の像の修復が注目されている（Stroke and Halioua 1972 a, b, 1973 a, b, Stroke, Halioua, Thon and Willasch 1974 a, b, Hahn and Baumeister 1973、Burge and Scott 1975 a, 1976、Siegel, Uyeda and Kirkland 1977）。

弱い位相物体の像は（1－42）式で表わされる。

$$I(\mathbf{r}) = 1 - 2\sigma\phi(-\mathbf{r}) * F[\sin\gamma(\mathbf{s})] \qquad (1-42)$$

この像強度に比例する振巾透過率を持つポジフイルムをFig. 1－22に示す光学系にかけると、回折像面上に空間周波数ベクトル$\mathbf{s}$の関数として

$$\Psi(\mathbf{s}) = 1 - 2\sigma F\{\phi(-\mathbf{r})\}\sin\gamma(\mathbf{s}) \qquad (1-58)$$

なる波の振巾分布が得られる。そこでこの面上に$\mathbf{s} \neq 0$で$1/\sin\gamma(\mathbf{s})$なる透過率を持つフィルターを挿入すれば、像面では

$$\begin{aligned}\varphi(\mathbf{r}) &= |1-2\sigma\phi(\mathbf{r})|^2 \\ &\approx 1-4\sigma\phi(\mathbf{r}) \qquad (1-59)\end{aligned}$$

で表わされる。収差の影響を受けていない試料の像を得ることができる。これがいわゆるインバース・フイルター（Harris 1966）の原理である。

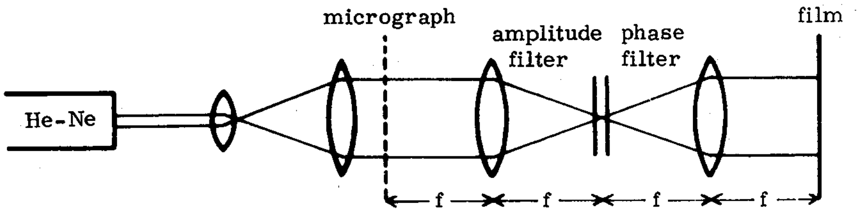


Fig. 1-22 インバース・フイルターリング光学系

$\sin\gamma$はFig. 1-16の例のように、一般に正、負両方の値をとる。そこで$1/\sin\gamma$というフイルターを実現するためには、単に振巾透過率を変化させるばかりではなく、光波の位相を部分的に反転させる必要がある。位相フイルターとしては、円環状の位相板（Hahn and Baumeister 1973）やLohman and Paris（1967、1968）により開発されたバイナリーホログラム（Stroke, Halioua, Thon and Willasch 1974 a, b, Burge and Scott 1975 a, 1976）などが用いられている。

1－5－2 周期物体の像のSN比向上のための処理

散乱波が強い場合には、像から位相の情報のみを取り出すことが出来ず、収差の補正はむつかしい。そこで、得られた像をいかに鮮明にし、詳細な情報を強調するかという事が処理の中心になつている。特に周期物体の像のSN比の向上のため、Markham, Hitchborn, Hills and Frey（1964）は像に含まれる周期で写真を次々とずらせて重ね焼きにすることにより雑音の平均化を行つた。その時雑音は重ね合わせの回数の平方根に比例して減少する。彼等はまた、回転対称性を持つ試料についても同様の平均操作を行つている（Markham, Frey and Hills 1963）。しかしこれらの方法は重ね合わせの周期や回転中心の選択の任意性が大きい欠点を持つている。

その後、Fig。1－23に示すように、顕微鏡像を記録したフイルムに含まれる周期構造により回折されたビームだけを取り出して再結像させる空間フイルター（ノイズ・フイルター・グレーティングと呼ぶことにする）を用いたコヒーレント処理技術（O'Neil 1956）が、タバコモザイクウイルス（Klug and DeRosier 1966）やバクテリオファージT_4（DeRosier and Klug 1972）等の電子顕微鏡像に応用された。

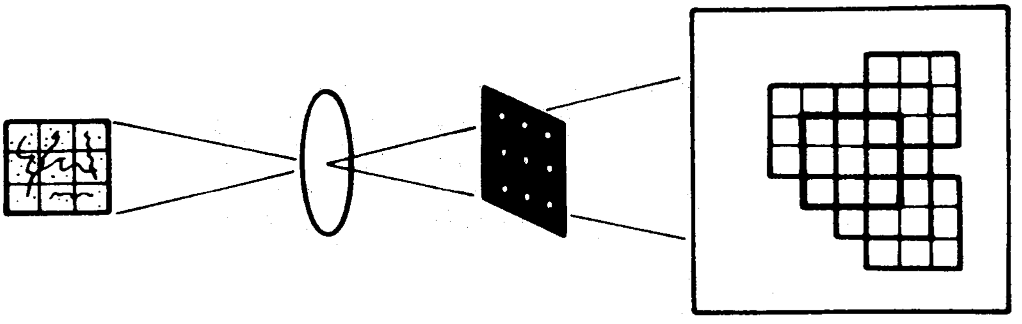


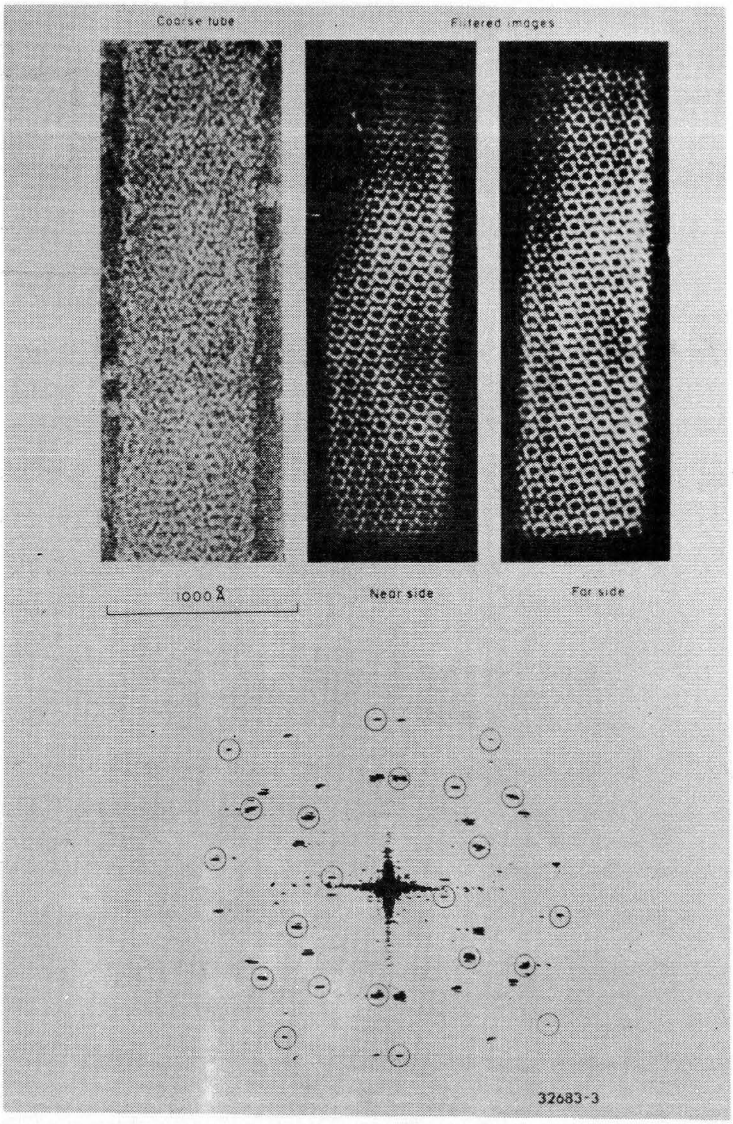
Fig. 1－23 ノイズフイルターグレーテイングによる格子像の
SN比向上処理
処理像は穴径に反比例して拡がる（第三章参照）

これらの試料は3次元的螺旋構造をもつていて、得られる電子顕微鏡像は試料の表と裏の両面が重なつたものになり大そう複雑である。また生物試料であるため、染色されていない部分からの散乱波によるコントラストが雑音として表われ、比較的低倍率であるにもかかわらず、SN比の悪い像となつている。そこでその写真をFig. 1－23の光学系にかけると、回折面上には表、裏両面からの回折像が、わずかに回転してずれて観察される。そこでノイズ・フイルター・グレーテイングにより、どちらか一方の面からの回折波のみを通して像を作ると、希望する面の像のみを得ることができる。Fig.1－24にYanagida, DeRosier and Klug（1972）によるバクテリオファージT_4に対する処理の例を示す。回折像中丸印で囲まれた斑点は表側（near side）の像を求めるために用いられたものを示している。フイルターには、高コントラスト用の写真フイルムが用いられ、処理像のコントラストを高めるため、中心穴の透過度は銅製のガーゼで$1/2$に落とされている（DeRosier and Klug 1972）。また、Steven, Aebi and Showe（1976）は薄い銅板に穴を開けたフイルターグレーテイングを用いている。その時には、中心の穴径を小さくしてコントラストが調節されている。

1－6　結　　　語

本章では、まず結晶格子像のコントラストを理解するために、電子顕微鏡の結像特性について述べ、結晶中の電子の振舞いに関して位相格子近似とＢｅｔｈｅ流の動力学的回折理論を概説した。

次に、微小領域制限視野回折法と電子顕微鏡像の光学的修正の原理と研究の現状を概観し、結晶格子像の光回折法による極微制限視野回折並びにノイズ・フィルター・グレーティングを用いた、ＳＮ比向上のための処理の高分解能電子顕微鏡学における位置づけを行つた。



Ｆｉｇ．１－２４　バクテリオファージT_4の電子顕微鏡像の処理

（ｆｒｏｍ Ｙａｎａｇｉｄａ ｅｔ ａｌ．１９７２）

第２章　高分解能電子顕微鏡とコヒーレント光学系を併用した極微制限視野回折法

２－１　緒　　　言

通常の制限視野回折法では、レンズ系の収差のため、制限領域を$C_s\alpha^3$以上狭くするとその領域内での回折ビームはまわり込んで視野から外れてしまうので、正しい制限視野回折像が得られない。そこで、微小領域の回折像を求めるために、色々な方法が開発されているが、それぞれ一長一短がある。そして長時間露出による試料の振動、汚染、破損などから免れるには、高分解能電子顕微鏡像とコヒーレント光学系による光回折法が有効であることは１－４節で記した通りである。

この章では、光回折法の有効性を理論的、実験的に検討し、二〜三の応用例を示す。

２－２　極微制限視野回折法の原理と数式的取扱い

初めに次の二つの特別な場合について光回折像と電子回折像との対応性を理論的に調べる。

ⅰ）　試料が弱い位相物体とみなせる。

ⅱ）　試料が十分大きな完全結晶で、電子線は各格子面に対称に入射している。

そして最後に格子像の最適撮影条件について論じる。

２－２－１　試料が弱い位相物体の場合

（１－４０）式で記した様に、弱い位相物体の透過関数は、

$$q(\mathbf{r}_0)=1-i\sigma\phi(\mathbf{r}_0) \qquad (2-1)$$

となるから、その電子回折強度は、周波数空間での座標$\mathbf{s}$を用いて

$$\begin{aligned} P_{elec}(\mathbf{s}) &= \left|F\{q(\mathbf{r})\}\right|^2 \\ &= \delta(\mathbf{s})+\sigma^2\Phi^2(\mathbf{s}) \end{aligned} \qquad (2-2)$$

ただし、$\Phi(\mathbf{s})=F\{\phi(\mathbf{r})\}$である。一方（１－４２）式より電子顕微鏡像の強度は、像面での座標を$\mathbf{r}_i$とすると

$$I(\mathbf{r}_i)=1-2\sigma\phi(\mathbf{r}_i)*F\{\sin\gamma(\mathbf{s})\} \qquad (2-3)$$

であるから、この$I(\mathbf{r}_i)$に比例する様な透過率をもつポジティブ透明画の光回折波の振巾は、

対物レンズの後焦点面上で

$$\Psi(\mathbf{s}) = F\{I(\mathbf{r}_i)A(\mathbf{r}_i)\}$$
$$= \{\delta(\mathbf{s}) - 2\sigma\Phi(\mathbf{s})\sin\gamma(\mathbf{s})\} * F\{A(\mathbf{r}_i)\} \qquad (2-4)$$

従って強度は、

$$Popt(\mathbf{s}) = |\Psi(\mathbf{s})|^2 \qquad (2-5)$$

となる。ただし、ここで

$$A(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{when} |\mathbf{r}| < d \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases}$$

は、試料フィルム上に重ねた半径dの円形制限視野絞りである。(2－5)式は、1次のBessel関数$J_1(s)$を用いて

$$Popt(\mathbf{s}) = |\{\delta(\mathbf{s}) - 2\sigma\Phi(\mathbf{s})\sin\gamma(\mathbf{s})\} * \{2\pi d^2 \frac{J_1(2\pi ds)}{2\pi ds}\}|^2 \qquad (2-6)$$

となる。ただし、第1章同様$s = |\mathbf{s}|$であり$*$はコンボリューション積分を示す。

今、絞りの半径dが十分大きければ、Cを定係数として

$$Popt(\mathbf{s}) \propto C\delta(\mathbf{s}) + 4\sigma^2\Phi^2(\mathbf{s})\sin^2\gamma(\mathbf{s}) \qquad (2-7)$$

と表わされるから、(2－2)，(2－7)式を比較すれば、中心の斑点を除いて、光回折の相対強度は電子回折のそれに比べて、$2\sin^2\gamma(\mathbf{s})$倍になっている事がわかる。

そこで、この$\sin^2\gamma(\mathbf{s})$が$\mathbf{s}$の広い範囲にわたって一定であるような条件のもとでは$P_{opt}(\mathbf{s})$と$Pelec(\mathbf{s})$は定係数を除いて一致する。その様な条件とは、(1－44)式で与えられていて、その$n=0$の場合の

$$\Delta f = \sqrt{C_s\lambda} \qquad (2-8)$$

だけ焦点を外した(レンズを弱く働かせる方を正にとっている)状態で撮影すればよい。また、たとえ(2－8)の条件を満さないような撮影或いは(2－8)の条件のもとでも、$\sin\gamma(\mathbf{s})$が一定でない様な高周波領域に関しても、焦点外れの量Δfが正確に求まりさえすれば、(1－17)による$\sin^2\gamma(\mathbf{s})$の計算から光回折強度$Popt(\mathbf{s})$を電子回折強度$Pelec(\mathbf{s})$に換算する事が出来る。

2－2－2　試料が完全結晶の場合

次に十分に大きな完全結晶に電子線を対称入射させ、回折波もすべて対称に取り入れた場合を考える。今、電子顕微鏡の対物レンズの後焦点面上における電子の振巾分布は、（1－12），（1－55）式より

$$Q(\mathbf{s}) = \sum_n \sum_j A^{(j)} C^{(j)}_{\mathbf{g}_n} \exp(2\pi i \mathbf{k}_0^{(j)} \cdot \mathbf{Z})\, \delta(\mathbf{s} - \mathbf{g}_n) \qquad (2-9)$$

となるから、電子回折強度は

$$P_{elec}(\mathbf{s}) = |\Phi_0|^2 \delta(\mathbf{s}) + \sum_n |\Phi(\mathbf{g}_n)|^2 \delta(\mathbf{s} - \mathbf{g}_n) \qquad (2-10)$$

で表かすことができる。ただし、

$$\begin{aligned} \Phi(\mathbf{g}_n) &= \sum_j A^{(j)} C^{(j)}_{\mathbf{g}_n} \exp(2\pi i \mathbf{k}_0^{(j)} \cdot \mathbf{Z}) \\ &= |\Phi(\mathbf{g}_n)| \exp\{ i\phi(\mathbf{g}_n)\} \end{aligned} \qquad (2-11)$$

と置く。試料結晶のポテンシャル分布が対称中心を持っているならば、

$$C_{\mathbf{g}_n}^{(j)} = C_{-\mathbf{g}_n}^{(j)} \qquad (2-12)$$

であるから

$$|\Phi(\mathbf{g}_n)| = |\Phi(-\mathbf{g}_n)|, \ \phi(\mathbf{g}_n) = \phi(-\mathbf{g}_n) \qquad (2-13)$$

である。（2－9）式より像面での波の振巾分布は定係数を除いて

$$\Psi(\mathbf{r}) = |\Phi_0| \exp(i\phi_0) + \sum_n |\Phi(\mathbf{g}_n)| \exp[i\{\phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_n)\}] \exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r}) \qquad (2-14)$$

故に電子顕微鏡像の強度は

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}) = |\Phi_0|^2 &+ \sum_n |\Phi_0| |\Phi(\mathbf{g}_n)| \Big[\exp[i\{\phi(\mathbf{g}_n) - \phi_0 - \gamma(\mathbf{g}_n)\}] \\ &\exp(-2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r}) + \exp[-i\{\phi(\mathbf{g}_n) - \phi_0 - \gamma(\mathbf{g}_n)\}] \\ &\exp(2\pi i \mathbf{g}_n \cdot \mathbf{r}) \Big] + \sum_m \sum_n |\Phi(\mathbf{g}_m)| |\Phi(\mathbf{g}_n)| \exp[i\{\phi(\mathbf{g}_m) \\ &- \phi(\mathbf{g}_n) - \gamma(\mathbf{g}_m) + \gamma(\mathbf{g}_n)\}] \exp\{-2\pi i (\mathbf{g}_m - \mathbf{g}_n) \cdot \mathbf{r}\} \end{aligned} \qquad (2-15)$$

である。各 $\mathbf{g}_n$ に対し $-\mathbf{g}_n$ が存在するとしているから（2－15）式は（2－13）式を用いて

$$I(\mathbf{r})=|\Phi_0|^2+2\sum_n|\Phi_0||\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_n)-\phi_0-\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\exp(2\pi i\mathbf{g}_n\cdot\mathbf{r})+\sum_m\sum_n|\Phi(\mathbf{g}_m)||\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_m)$$
$$-\phi(\mathbf{g}_n)-\gamma(\mathbf{g}_m)+\gamma(\mathbf{g}_n)\}\exp\{-2\pi i(\mathbf{g}_m-\mathbf{g}_n)\cdot\mathbf{r}\}$$
(2—16)

となる。従って、この像の十分広い領域からの光回折波の振巾は、回折像面上で

$$\Psi(\mathbf{s})=F\{I(\mathbf{r})\}$$
$$=|\Phi_0|^2\delta(\mathbf{s})+2\int\sum_n|\Phi_0||\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_n)-\phi_0-\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\exp\{-2\pi i(\mathbf{s}-\mathbf{g}_n)\cdot\mathbf{r}\}dr+\int\sum_m\sum_n|\Phi(\mathbf{g}_m)||\Phi(\mathbf{g}_n)|$$
$$\cos\{\phi(\mathbf{g}_m)-\phi(\mathbf{g}_n)-\gamma(\mathbf{g}_m)+\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\exp\{-2\pi i(\mathbf{s}+\mathbf{g}_m-\mathbf{g}_n)\cdot\mathbf{r}\}dr$$

$$=|\Phi_0|^2\delta(\mathbf{s})+2\sum_n|\Phi_0||\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_n)-\phi_0-\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\delta(\mathbf{s}-\mathbf{g}_n)+\sum_m\sum_n|\Phi(\mathbf{g}_m)||\Phi(\mathbf{g}_n)|\cos\{\phi(\mathbf{g}_m)-\phi(\mathbf{g}_n)$$
$$-\gamma(\mathbf{g}_m)+\gamma(\mathbf{g}_n)\}\delta(\mathbf{s}+\mathbf{g}_m-\mathbf{g}_n)\qquad(2-17)$$

となり、その強度はCを適当な係数として

$$Popt(\mathbf{s})=C\delta(\mathbf{s})+4\sum_n|\Phi_0|^2|\Phi(\mathbf{g}_n)|^2\cos^2\{\phi(\mathbf{g}_n)-\phi_0-\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\delta(\mathbf{s}-\mathbf{g}_n)+4\sum_\ell\sum_m\sum_n|\Phi_0||\Phi(\mathbf{g}_\ell)||\Phi(\mathbf{g}_m)||\Phi(\mathbf{g}_n)|$$
$$\cos\{\phi(\mathbf{g}_\ell)-\phi_0-\gamma(\mathbf{g}_\ell)\}\cdot\cos\{\phi(\mathbf{g}_m)-\phi(\mathbf{g}_n)-\gamma(\mathbf{g}_m)$$
$$+\gamma(\mathbf{g}_n)\}\delta(\mathbf{s}-\mathbf{g}_\ell)\delta(\mathbf{s}+\mathbf{g}_m-\mathbf{g}_n)+\sum_m\sum_n|\Phi(\mathbf{g}_m)|^2$$
$$|\Phi(\mathbf{g}_n)|^2\cos^2\{\phi(\mathbf{g}_m)-\phi(\mathbf{g}_n)-\gamma(\mathbf{g}_m)+\gamma(\mathbf{g}_n)\}$$
$$\delta(\mathbf{s}+\mathbf{g}_m-\mathbf{g}_n)\qquad(2-18)$$

となる。

特に $|\Phi_0| \gg |\Phi(\mathbf{g}_n)|$ の場合には、（２－１８）式は $|\Phi(\mathbf{g}_n)|$ の３次以上の項を無視して

$$\mathrm{Popt}(\mathbf{s}) \approx C\delta(\mathbf{s}) + 4|\Phi_0|^2 \sum_n |\Phi(\mathbf{g}_n)|^2 \cos^2\{\phi(\mathbf{g}_n) - \phi_0 - \gamma(\mathbf{g}_n)\} \delta(\mathbf{s} - \mathbf{g}_n) \quad (2\text{-}19)$$

と簡単にすることができる。実際上の仮定は軽元素から成る試料や大きな単位胞を持つ酸化物結晶についてしばしば成立する。特に試料が弱い位相物体とみなせる場合には、（２－１９）式において、$F(\mathbf{g}_n)$を結晶構造因子、σ を定数として

$$|\Phi_0| = 1$$

$$|\Phi(\mathbf{g}_n)| = \sigma |F(\mathbf{g}_n)|$$

$$\phi(\mathbf{g}_n) = \frac{\pi}{2}$$

$$\phi_0 = 0$$

とすれば（２－７）式に帰する。

$|\Phi(\mathbf{g}_n)|$の３次以上の項を無視できない場合には、各 $\mathbf{g}_n$ に対する光回折波の強度は（２－１０）式の電子回折波の強度と簡単な対応関係を持たない。しかし、初めに電子顕微鏡により格子像を作るために取り入れた回折斑点 $\{\mathbf{g}_n\}$ の数が十分に多ければ、光回折斑点 $\{\mathbf{g}_\ell\}$ は近似的に

$$\{\mathbf{g}_\ell : \ell = 1, 2, \cdots\} = \{\mathbf{g}_n : n = 1, 2, \cdots\} \quad (2\text{-}20)$$

であるから、光回折像 Popt（$\mathbf{s}$）の幾何学的形状は電子回折像 Pelec（$\mathbf{s}$）のそれと一致する。取り入れた回折斑点の数が少ない場合には、

$$\{\mathbf{g}_\ell\} \supset \{\mathbf{g}_n\} \quad (2\text{-}21)$$

となるがその際、新たに現われるのは $\{\mathbf{g}_n\}$の高次の回折斑点のみであることは、明らかで、低次の斑点に関してはその位置は一致する。

以上の事は、高分解能電子顕微鏡による結晶格子像の光回折法が少なくとも、面間隔及び面間角度からの物質の同定、結晶面の決定には、電子顕微鏡の収差、焦点外れ及び試料の厚さにかかわらず有効である事、そして特に重い原子を含まず薄い試料の場合には、電子回折同様、光回折強度の測定から結晶構造の解析も可能であることを示唆している。

２－２－３　最適撮影条件

光回折を併用した極微制限視野回折法において、電子顕微鏡像を撮影する際に重要な事は、(i)制

限領域の外側からの回折波の回わり込みを出来るだけ小さくする。(ii)弱い位相物体の場合には、光回折強度を電子回折強度に近くする。の2点である。

(ii)のための条件は既に(2－8)式で示した様に、Scherzer(のオプティマム)フォーカス $\Delta f = \sqrt{C_s \lambda}$ 付近で、最も広い周波数域で $\sin\gamma$ が一定となる。

視野の制限については既に1－4－1で記した様に通常は、最も外側の回折波の回折角 α_m を対象として、$C_s \alpha^3{}_m$ を用いて論じてきた。

この値は、Gauss像面における錯乱円の半径である。α_m より内側の回折波のずれもやはり $C_s \alpha^3$ で表されるのでずれは小さい。

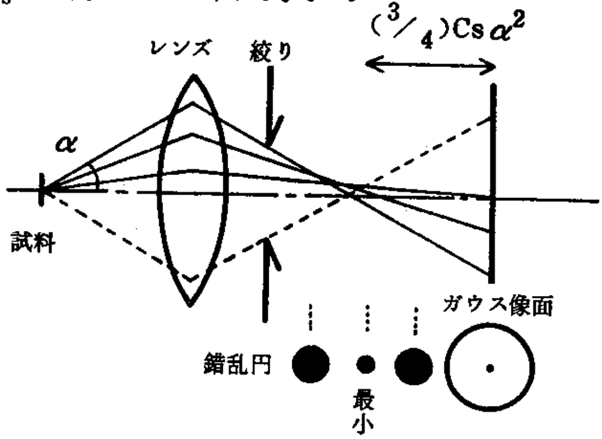


Fig. 2－1　球面収差による錯乱円は $\Delta f = (^3/_4) C_s \alpha^2$ のとき半径 $(^1/_4) C_s \alpha^3$ で最小となる。

しかしながらFig. 2－1に示した様にGauss像面の位置より少しレンズに近いところでは、錯乱円の半径は小さくなるので最小錯乱円の位置 $\Delta f = (^3/_4) C_s \alpha_m{}^2$ にて視野の制限精度を定めるのがよい。この時、最小制限視野は $C_s \alpha_m{}^3/4$ となる。この事は、従来行われていた電子顕微鏡での制限視野電子回折像撮影においても同じようにあてはまるので、正焦点位置で撮影せず、Δf だけずらした方がより高精度の回折像が得られる。従って、例えば金の結晶の場合、400反射までを対象とするならば(電子線は各格子に対称に照射する)、$C_s = 0.7$ ㎜のレンズを持つ100kVの顕微鏡では、$\alpha_m = 3.63 \times 10^{-2}$ rad であるから $\Delta f = 6908$ Å ずらして撮影すると、直径835Åの範囲まで視野を制限しても、回折像と視野の対応性がなくならない。また、$\Delta f \fallingdotseq (^3/_4) C_s \alpha_m^2$ の場合には錯乱円の半径 r は次の様になる。

i) $\Delta f < (^3/_4) C_s \alpha_m^2$ の場合 r は角度 α_m でやってくる光線の高さになる。

ii) $\Delta f > (^3/_4) C_s \alpha_m^2$ の場合 r は $0 \sim \alpha_m$ までの角度でやってくる光線の包絡面即ち火面の像面による断面の半径である。

それ故

$$r = \begin{cases} \left|(\Delta f - C_s \alpha_m^2)\alpha_m\right| & \text{when } \Delta f < (^3/_4) C_s \alpha_m^2 \\ \left(\dfrac{4}{C_s}\right)^{\frac{1}{3}} \dfrac{\Delta f}{3} & \text{when } \Delta f > (^3/_4) C_s \alpha_m^2 \end{cases} \qquad (2\text{-}22)$$

が最小制限視野領域となる。

2－3　試料の構造と作製、および光回折光学系

前節では、光回折法の有効性を理論的に論じたが、以下の節では、ラボラドライト（labradorite）長石の格子像を用いて実際に光回折による極微制限視野回折を実施した例を示す。

実験に用いたラボラドライト長石は$NaAlSi_3O_8$（albite）43.5, $CaAl_2Si_2O_8$（anorthite）53.6, $KAlSi_3O_8$（orthoclase）2.9モルパーセント　（Hashimoto et al. 1976b）から成る斜長石の一種である。このラボラドライトの原子位置については、Toman and Frueh （1973）に従い、その中のNaとCaの配分に関しては Hashimoto et al.（1976b） に拠る。格子定数は、$a = 8.17$ Å, $b = 12.86$ Å, $c = 14.22$ Å, $\alpha = 93.6^\circ$, $\beta = 116.3^\circ$, $\gamma = 89.8^\circ$, 空間群は C 1 である。

格子像の撮影は、JEM100C（C_s=0.7㎜）100kV 電子顕微鏡で直接倍率２６万倍で行われた。そのネガフィルムから２倍に引伸ばされた低コントラストのポジフィルム（フジFGフィルム使用）を光回折用試料フィルムとして用いた。

実験に用いた光学系の概略図をFig２－２に示す。

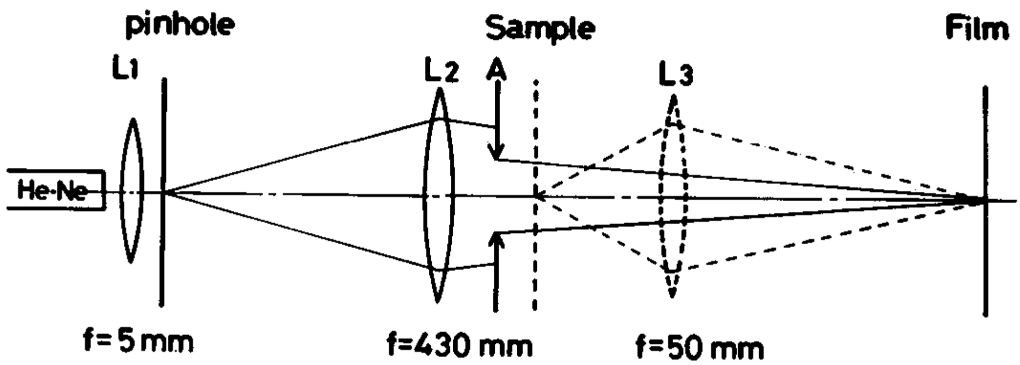


Fig. ２－２　光回折光学系

レンズL_1（f=5㎜）とピンホール（50μ^ϕ）で拡げられたHe-Neレザー光（λ=6328Å）はレンズL_2（f=430㎜）でフィルム上に集束され、ピンホールの像を結ぶ。その途中に試料とするポジフィルムを置き、視野の制限は通常レンズL_2と試料との間に置かれた虹彩絞りAにより行う。特に視野を狭く制限する時には、絞りのフレネル回折による視野のボケを防ぐために、薄い銅板に穴を開けて試料フィルムに密着させる。制限された視野の確認はレンズL_3（f=50㎜） を用いて、

試料の拡大像をフィルムもしくはカメラのピント板上に結ばせて行う。回折像を得る時には、むろんレンズL_3は光路から外しておく。このような集束照明光学系では試料とフィルムとの距離がカメラ長になり、その大きさを自由に変えられること、及び正確に測れることが、平行照明光学系に比べて有利な点である。

2－4　実験結果と考察

2－4－1　結晶方位の決定

まず、結晶の厚さと光回折像の関係をみる。

Fig. 2－3にラボラドライト長石の電子回折像と格子像の一例を示す。

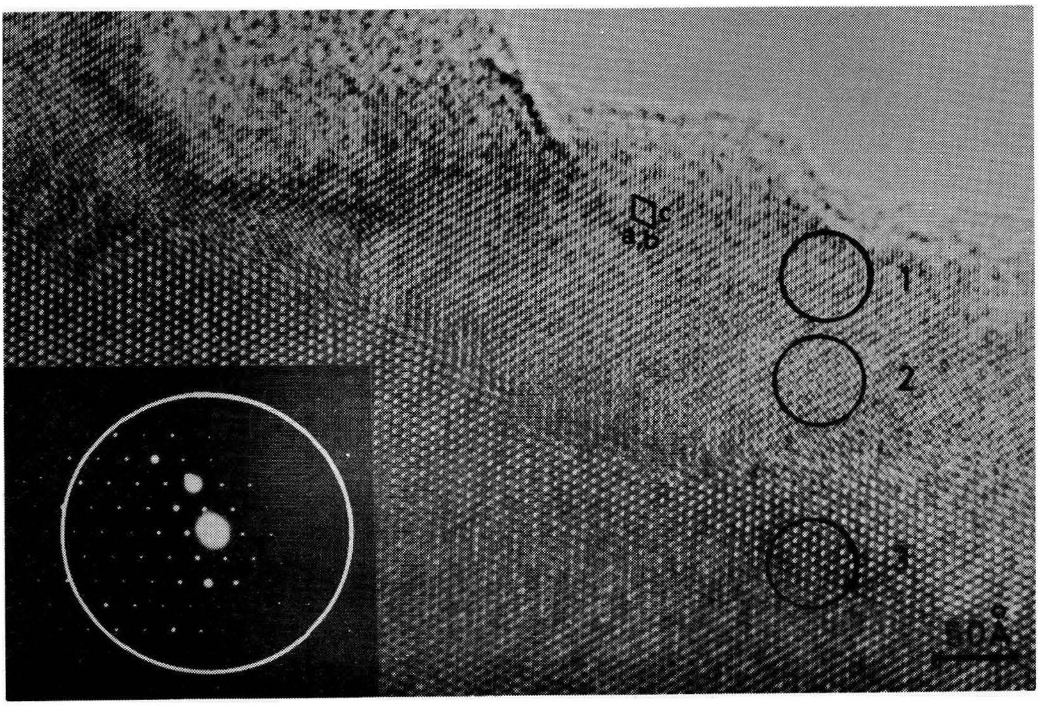
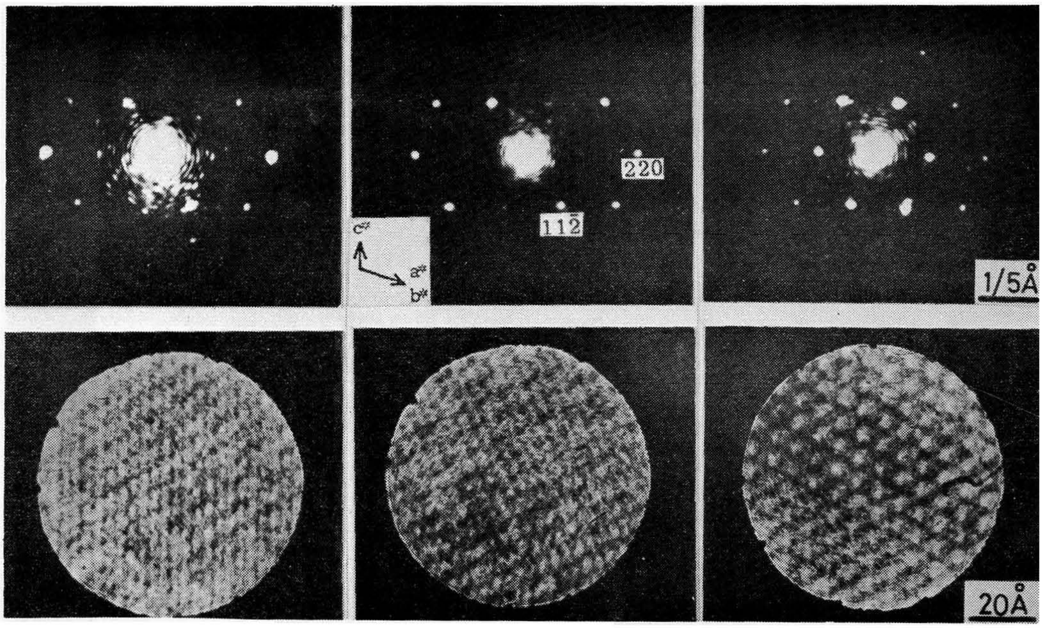


Fig. 2－3　ラボラドライト長石の格子像

格子像は$\Delta f \approx 1200$Åで撮影されたもので、結像に用いた対物絞りは回折像中に白線で記されている。回折像から電子線は＜$1\bar{1}0$＞軸に平行に照射されている事がわかる。この方向から投影された単位格子を図中に平行四辺形で示す。結晶は楔形になっており、厚くなるに従い図中1, 2, 3, で囲まれた部分にそれぞれかなり異なった模様が見られる。これらの部分の光回折像と拡大像をFig. 2－4に示す。拡大像からわかる様に視野の制限領域は実際の試料結晶上で直径約80Å に



(1) (2) (3)

Fig. 2－4　ラボラドライト長石の格子像からの微小領域制限視野回折
(1)～(3)がそれぞれFig. 2－3の円1～3内の回折像と拡大像
に相当する

当る。格子像は50以上の回折波の干渉で作られているが、光回折像に見られる斑点は結像時のレンズの収差及び電子線のコヒーレンス度等の影響もあって高々20～30程度となっている。しかしこれは結晶学的知見を得るためには十分な数である。各回折斑点の強度は結晶が厚くなるに従い大きく変化している事がわかる。220回折斑点はFig. 2－4(1)で最も強度が高く、(3)において最低である。110斑点は(2)ではほとんど見られないが、(3)において非常に強くなっている。Nos. (1)～(3)の像は同一原板から得られたものであるから、当然電子顕微鏡の伝達関数は同じであり、更に対応する各回折波はBragg条件に対し同一の条件にある。従って、光回折斑点の強度変化は、一つには結晶中での電子波の消衰効果即ち結晶中での電子の動力学的相互作用の結果であると考えられる。また一つには（2－15）式における第3項$\mathbf{g}_n$と$\mathbf{g}_n+\mathbf{g}_\ell$の波の干渉効果にも依るものと考えられる。すなわち、回折波の像面での干渉の結果、それぞれの波の強度の他に干渉項による効果が像に記録されているためこれが現れたものと考えられる。Fig. 2－3の格子像は、$C_s = 0.7$ mm，$\lambda = 0.037$Å，$\Delta f \approx 1200$Å で撮られているので、d＝2.0Åまでの回折波に関して

$(3/4)C_s\alpha_m^2 = 1796.8$Å であるから$\Delta f < (3/4)C_s\alpha_m^2$であり、(2−22)式より錯乱円の半径は$r = 22.12$Åとなる。この事はFig. 2−4の各格子像及び回折像が正しくその領域からの電子回折波を反映している事を示している。Fig. 2−5は、焦点をわずかにズラせた二枚の格子像とそれらの光回折像を示す。光回折は双方の格子像のほぼ同じ位置について行われており、各回折斑点の強度変化は伝達関数（特にこの様に試料の薄い部分では、後で確かめる様に$\sin\gamma$）に依存している。

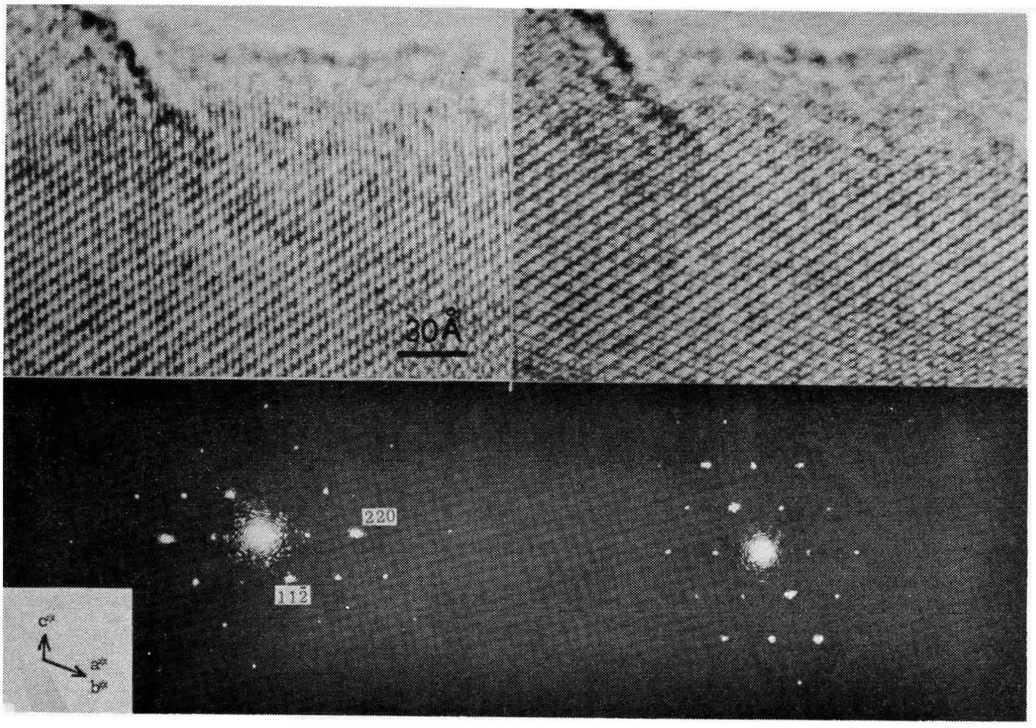
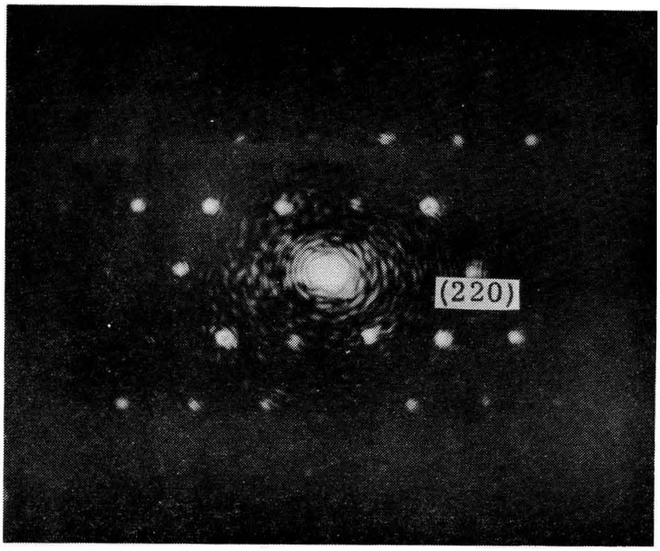


Fig. 2−5 異なる焦点外れ量で撮影された同一視野の格子像とその光回折

以上、理論的・実験的に示した様に、格子像の光回折斑点の幾何学的位置は結晶の厚さや焦点外れ量に無関係に常に一定の位置に出る事がわかった。これは、光回折像を用いて結晶面の決定が可能な事を示唆している。Fig. 2−3に示した格子像の光回折像から測定した面間隔と面間角度及びそれから決定した指数とその指数に従って計算された面間隔と面間角度がFig. 2−6に示されている。この様にして決定された面指数は電子線回折像より得られた結果と一致した。測定値の計算値からのズレは、11$\bar{2}$ 斑点を除いて高々2.8%（00$\bar{2}$及び00$\bar{4}$ 斑点の場合）である。図中○印で示された点は、実際の回折像ではほとんどコントラストが得られておらず、他の斑点からその位置を定めたものである。回折像は正確さをきすため電子顕微鏡の原ネガフィルムから直接得られ



面間角	計算値	測定値
(110)-(11$\bar{2}$)	56.73°	58.5°
(110)-(33$\bar{2}$)	19.15°	20.5°
(11$\bar{2}$)-(33$\bar{2}$)	37.57°	38.0°
(11$\bar{2}$)-(11$\bar{6}$)	38.12°	36.5°

面間隔 計算値 / 測定値

指数	計算値	測定値
(110)	6.286	6.225
(220)	3.143	3.095
($\bar{1}\bar{1}\bar{2}$)	3.759	3.742
(00$\bar{2}$)	6.359	6.186
(11$\bar{2}$)	5.842	5.634
(22$\bar{2}$)	3.440	3.371
(33$\bar{2}$)	2.292	2.275
($\bar{1}\bar{1}\bar{4}$)	2.457	2.484
(00$\bar{4}$)	3.180	3.092
(11$\bar{4}$)	3.476	3.409
(22$\bar{4}$)	2.921	2.797
(33$\bar{4}$)	2.223	2.192
($\bar{1}\bar{1}\bar{6}$)	1.796	1.763
(00$\bar{6}$)	2.120	2.080
(11$\bar{6}$)	2.321	2.296
(33$\bar{6}$)	1.947	1.902

Fig. 2－6 回折斑点の指数と面間隔・面間角の測定及び計算値との比較

たものであるが、($\bar{1}\bar{1}\bar{4}$)面を除いて全体に面間隔が小さめに出ているのは、電子顕微鏡像の倍率測定或いは光学系のカメラ長の測定における系統的誤差によると思われる。($11\bar{2}$)面の値が計算値からかなり外れているのは(約3.6%)、結晶面が測定視野の外にある格子欠陥により歪んでおり、斑点が拡がったためだと考えられる。

Fig. 2－7(a)はやはりJEM100C で得られたラボラドライトの微結晶の格子像である。

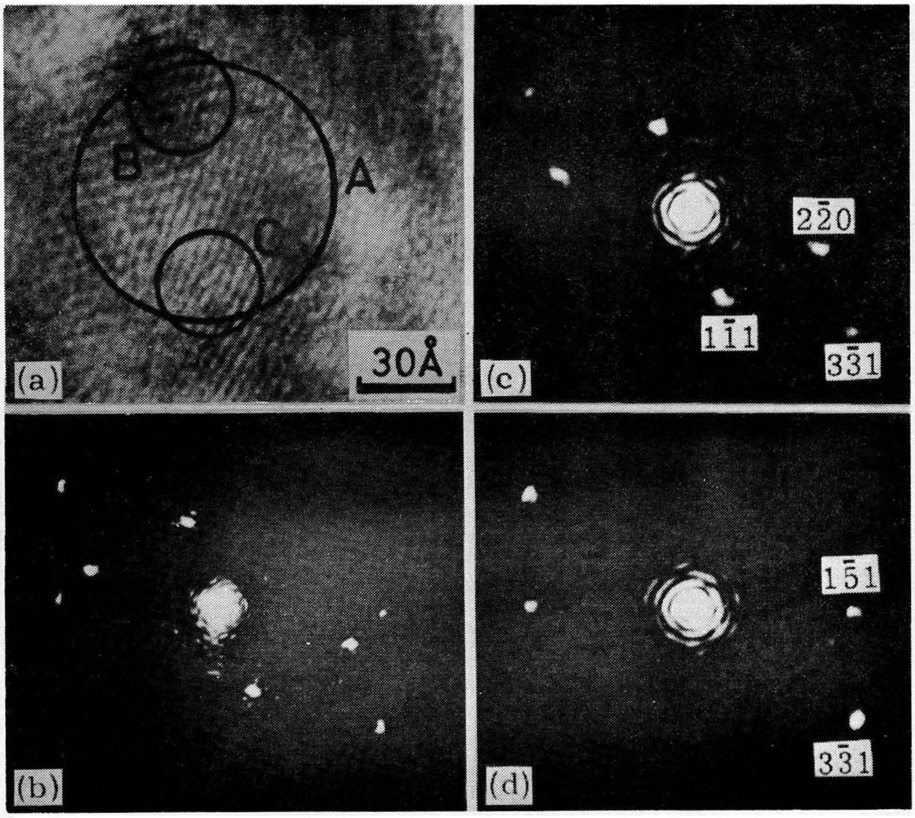


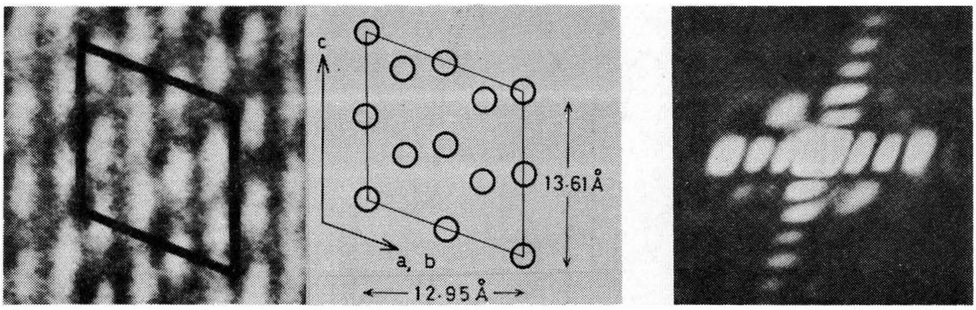
Fig. 2－7　微結晶に含まれる2つの結晶粒の光回折法による識別
(a)　顕微鏡像
(b)　領域A(～80Å$^{\phi}$)からの回折像
(c)　領域B(～30Å$^{\phi}$)からの回折像
(d)　領域C(～30Å$^{\phi}$)からの回折像

印Aをつけられた直径約100Åの微結晶中に二つの異なる方位を持つ結晶粒BとCが見られる。Fig. 2－7(b)に結晶Aを含む直径約80Åの円で囲まれた領域からの光回折像を示す。回折像も明らかに方位の異なる二つのグループから成り立っている。そこで制限視野絞り(Fig. 2－2における絞りA)を試料結晶上約30Åに相当するまでに絞り、(a)図のBとCの領域から得られた光

回折像が(c)，(d)図である。回折斑点間の間隔と角度の測定から、結晶粒Bは〈110〉軸が、またCは〈213〉軸が入線電子線と平行になっており、$(\bar{3}31)$面を共有していることがわかった。

2－4－2　ユニットセルの光回折

視野の制限領域を更に狭くして、結晶としての最小領域である一つの単位胞からの回折像を得た。単位胞の位置は、Fig. 2－3中に平行四辺形で囲んで示されている。



(a)　　(b)

Fig. 2－8　ユニットセルからの回折像
(a)　顕微鏡像と、X線のデータによるCa or Na 原子の$(1\bar{1}0)$面への投影図
(b)　ユニットセルの像 からの光回折像

Fig. 2－8(a)に$(1\bar{1}0)$面へ投影された単位胞の拡大像とX線回折で得られたCa或いはNaの位置を示し、(b)にその光回折像を示す。試料の極く薄い部分の像を用いているので拡大像中に見られる微細構造はCa／Naの位置と比較的良く一致する様に思われる。X線のデータから求めた計算結果と光回折強度との比較は次節で行う。

2－4－3　光回折強度の測定と計算

結晶の十分に薄い部分からの光回折強度と運動学的な回折理論と結像理論とを用いて計算された結果とを比較する。

通常のX線や電子線回折により求められた結晶構造因子は、各逆格子点$\mathbf{g}_n$に関する離散的な値のみしか得られない。これは結晶を用いる以上避けることはできない。しかし、格子像の光回折の場合には前節に示したように単位胞の回折像を得ることができるので、$\mathbf{s}$の連続的な値での構造因子を求めることも原理的には可能である。ただ実際には、電子レンズ系の収差や焦点の外れがある

ため、伝達関数の補正が必要となる。伝達関数を正確に求めることは容易ではなく、全く未知の試料について光回折法のみを用いて構造を決定することは現在のところ困難である。しかし適当な焦点外れで撮影された格子像を用いた場合、Fig. 2－9に、結晶のc軸に垂直な方向に関する測定結果と計算された結晶構造因子を示すように、計算とかなり良く似た回折像を得る。図の横軸は、空間周波数sを表わし、縦軸は光回折強度に関しては$-\tau(s)$を表わす。ただしτはミクロフォトメーターで測定した写真フィルムの透過光の強度である。また計算値に関しては$-1/|F(s)|^2$を表わす。ここでF(s)はSmith and Burge（1962）により与えられた原子散乱振巾と、Toman and Frueh（1973）によって求められた原子位置から計算した連続的なsの値に対する結晶構造因子である。

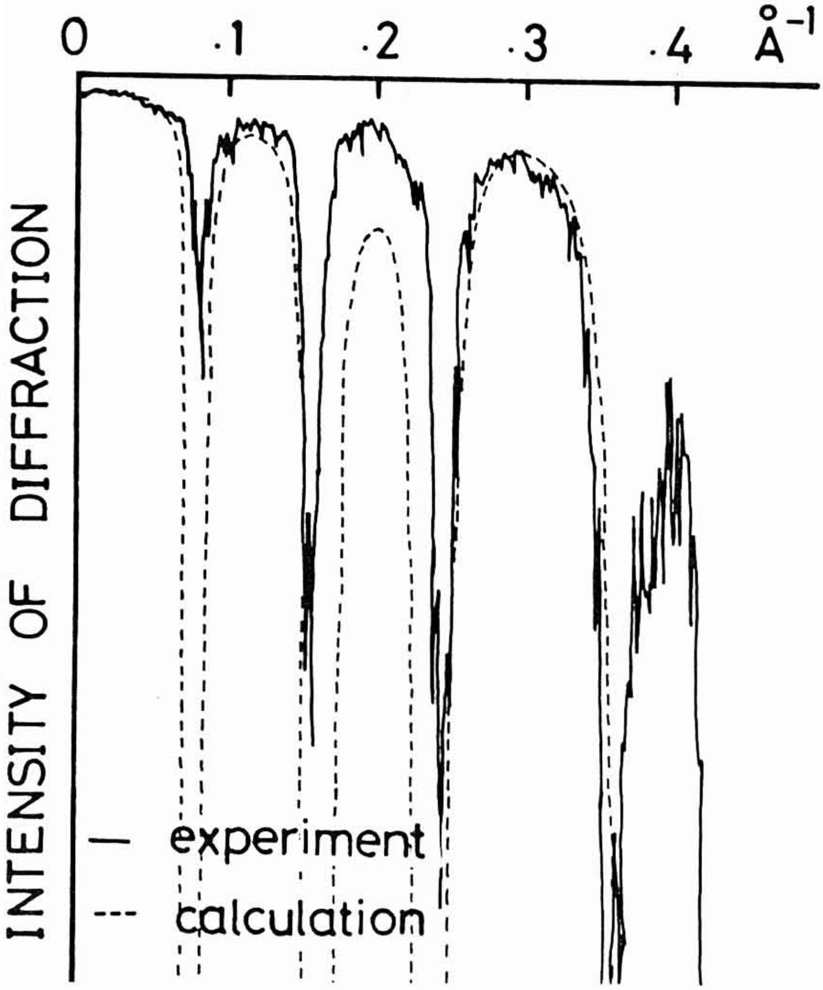
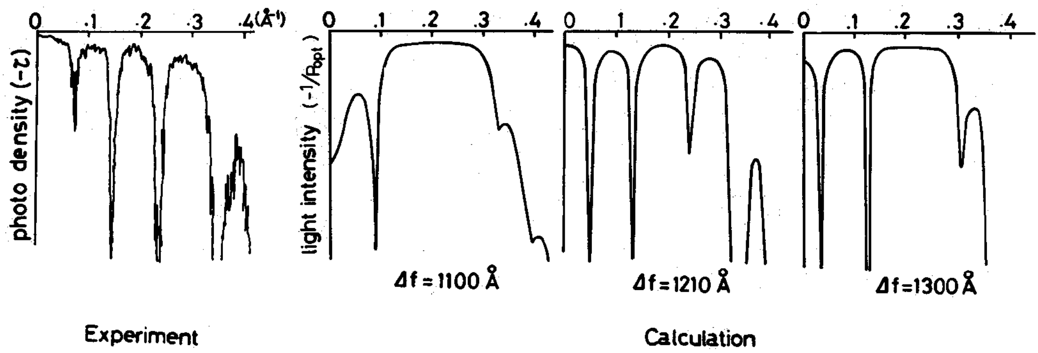


Fig. 2－9　ユニットセルの光回折強度（$-\tau$）と結晶構造因子$-|F(s)|^{-2}$との比較

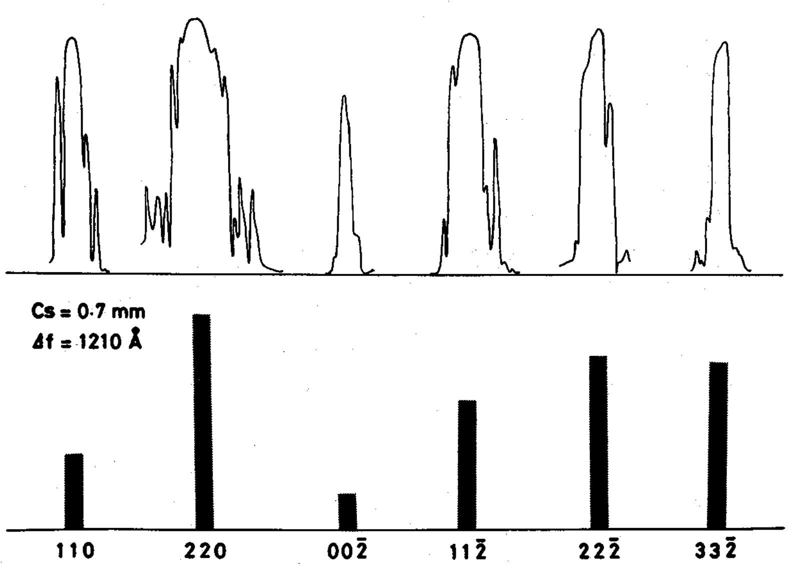
実験と計算とはかなり良い一致を示すが、0.2Å^{-1}付近のピークの高さ及び0.4Å^{-1}付近のピークの存在等に差異が見られる。そこで結晶構造因子に更に電子顕微鏡の伝達関数を考慮して、(2-7)式を用いたP_{opt}を計算したのがFig. 2－10である。図には焦点を約100Åづつ変化させた例を示してあるが、実際には10Åの焦点の変化により、ピークの相対高さ、ディップの位置等に明



Ｆｉｇ．２－１０　ユニットセルからの光回折強度実験値と計算値との比較

確な変化が見られ、結局 Δf=１２１０Å付近で測定値と最も良い一致が見られる。しかし、上の計算は球面収差係数の測定誤差その他回折強度に関するいくつもの要因をすべて焦点外れ量 Δf に置き換えているのであり、Ｆｉｇ．２－１０から直ちに実際の焦点外れ量が１２１０Åであるとすることはできない。しかし、この同じ格子像については、Δf=１２１０Åとして解析を進めるのは有効な方法である。

同様の検討をＦｉｇ．２－５(b)についても行ない決定した焦点外れ量 Δf=９２０Å を用い、Δf の異なる二つの格子像から得られた各回折斑点について測定値と計算値の比較をＦｉｇ．２－１１とＦｉｇ．２－１２に示す。



Ｆｉｇ．２－１１　ラボラドライト長石の格子像からの光回折強度実験値と計算値との比較(1)

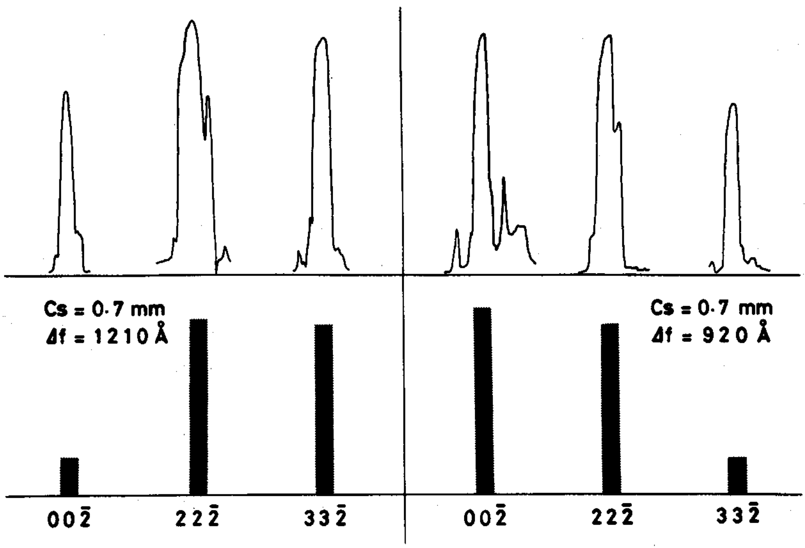


Fig. 2－12　ラボラドライト長石の格子像からの光回折強度
実験値と計算値との比較(2)

強度の変化の傾向はよく一致している。ただし、高次の波については測定値は計算値よりもかなり低い。これは一つには電子レンズの色収差による。放出電子のエネルギー分布を半値巾 $\delta E_o = 0.3\,\mathrm{eV}$ のMaxwell分布であるとした場合、(1－33)式つまり(1－24)式の使える範囲での補正(Hanβen and Trepte 1971)をTable 2－1に示す。表で、aは回折光の振巾に対する補正、従って a^2 が強度に対する補正値を示している。これに電子線のコヒーレンス度を考慮すれば更に高次の回折光の強度は減少するであろう。高次の回折強度に変化を与える他の原因は実験技術の問題である。つまり、試料に用いたポジティブフィルムの乳剤面の凹凸による位相変化の影響と、フィルムの現像段階における γ 値(対数露光強度に対するフィルムの濃度の比)のコントロールである。前者の影響を取り除くためには液浸法(liquid gate法、Goodman 1968)を用いればよい。即ち、二枚のよく研磨された平行平面ガラス板(optical parallel)の間に屈折率が乳剤に近い液体をおき、その中に入力画像を記録したフィルムを浸して用いればよい。本実験では、特に液浸法を用いることはしなかった。後者の γ 値のコントロールであるが、これを正確に行うためには高度の実験技術を要する。しかしながら、弱い位相物体近似の(2－7)式やあるいは(2－19)式の様に非常にコントラストの低い像 $\phi(\mathbf{r})$ の記録の場合には、極端に大きな γ 値にしない限り、

$$\{1+\phi(\mathbf{r})\}^{\gamma} \approx 1+\gamma\phi(\mathbf{r})$$

となるのでさほど問題はない。$1/2 \leqq |\gamma| \leqq 2$ 程度の範囲で処理することは容易である。

Table 2－1　色収差に対する補正

hkl	a	a^2
0 0 2	0.999	0.997
1 1 0	0.999	0.997
$1\,1\,\bar{2}$	0.998	0.996
$2\,2\,\bar{2}$	0.985	0.970
$0\,0\,\bar{4}$	0.979	0.958
$3\,3\,\bar{2}$	0.927	0.860

2－4－4　転位を含んだ像の光回折

極微制限視野回折法の応用の１つに格子欠陥による格子面の歪みの研究がある。Fig. 2－3の一部を拡大したのがFig. 2－13である。中央部に転位による格子列の乱れが観察される。

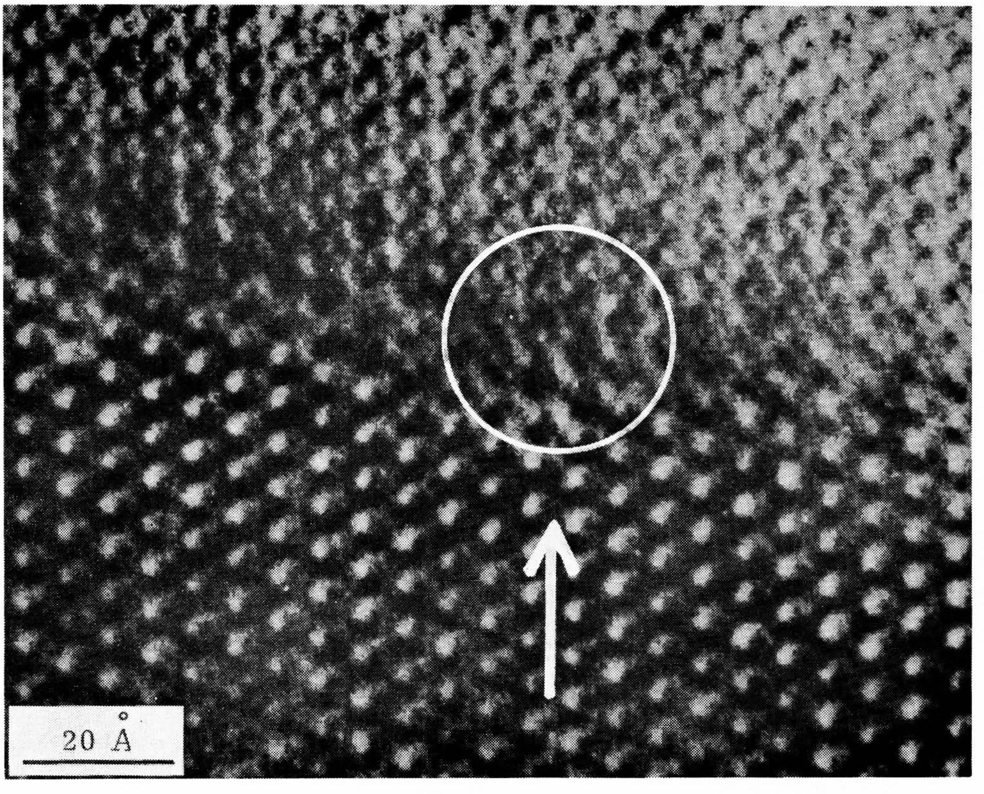


Fig. 2－13　転位を含むラボラドライト格子像
矢印の向きに丸印の大きさの視野を走査して光回折を行う。

転位が入射電子線に対して傾いて入っていたり、格子像の結像に用いられた回折波の数が少ない場合には、格子像のコントラストは正確に結晶内原子の位置を示さない危険がある(Cockayne, Parsons and Hoelke 1971)が、転位が面に垂直な時には、多波格子像を用いると、転位のまわりの格子列の歪が測定できる。この方法が格子欠陥のまわりの歪の研究に果す役割は大であろうと思われる。そこでこの付近の光回折をとると、回折像の回折斑点が変位もしくは分離する。Fig. 2－13の矢印の方向に直径約30Åで、約60Åの範囲を走査した時の一例をFig. 2－14に示す。また、主な斑点の振舞いを視野の中心の移動量とともに示したのが、Table 2－2

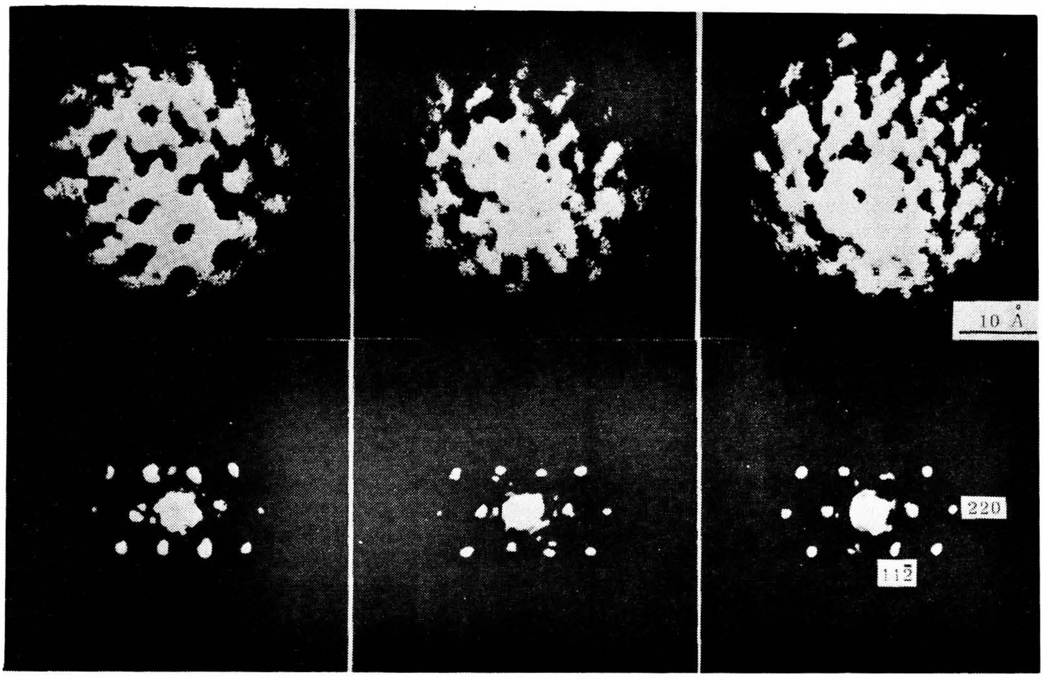


Fig. 2－14　転位の周りの歪んだ結晶格子とその光回折像
(a), (b), (c)はそれぞれTable 2−2の視野4, 6, 7に相当する。

とFig. 2－15である。これらより次のことがわかる。

i) 110と$11\bar{2}$斑点が同じ場所の近くでスプリットしていることから転位線はこの2つの面上にある。

ii) $00\bar{2}$ 斑点がほとんど変化しないのでバーガスベクトルの在る面、即ちすべり面は($00\bar{2}$)面であると考えられる。

iii) $11\bar{2}$ 斑点がスプリット前に傾きが小さくなる。このことは転位の向きがFig. 2－16の

Table 2−2　転位付近の格子像の歪み

視野	斑点 ＼計算値 距離	110		$11\bar{2}$		$00\bar{2}$	
		0deg	6.286Å	56.73deg	5.842Å	114.5deg	6.359Å
1	−29.1Å	0	6,461	59	5.667	114	6.830
2	−21.8	0	6,272	58	5.602	112	6.187
3	− 7.3	−6/5	6.272/6.649	56	5.643	112	6.617
4	± 0	−8/5	6.143/6.869	53.5	5.723	113	6.700
5	7.3	−7/6	6.215/6.636	49.5/57	5.561/5.561	109	6.678
6	21.8	0	6,187	49/59.5	6.116/5.539	113	6.617
7	29.1	0.8	6,330	58.7	5.742	121.2/118	7.229/6.330
8	40.0	0	6,510	57.5	5.685	113.6	5.796
		220		$22\bar{2}$		$\bar{1}\bar{1}\bar{2}$	
		0deg	3.143Å	29.50deg	3.440Å	147.5deg	3.759Å
1	−29.1Å	0	3,177	31	3.472	145.5	3.805
2	−21.8	0	3,162	30	3.463	145.5	3.790
3	− 7.3	0	3,217	29.5	3.472	145.5	3.841
4	± 0	0	3,214	29	3.420	144	3.891
5	7.3	0	3,232	24/31	3.501/3.441	144.5	3.878
6	21.8	0	3,175	30.3	3.437	145	3.826
7	29.1	0	3,146	31.1	3.434	146.8	3.837
8	40.0	0	3,244	31.3	3,469	146.4	3.830

注 1. 表中、同一視野に2つの値があるのは、スポットがスプリットしたとき。
2. 面間角の規準は（220）にとっている。

ようになっていることに対応する。

ⅳ）$22\bar{2}$斑点の視野5におけるスプリットは110や$11\bar{2}$スポットと同じ格子の歪によると思われる。

ⅴ）（$00\bar{2}$）面の間隔が転位芯の手前、視野1,2で標準より狭くなり、それ以後の視野では広くなっている。これはFig. 2−17のような格子湾曲（Hirsch et.al. 1975）をしているためである。なお

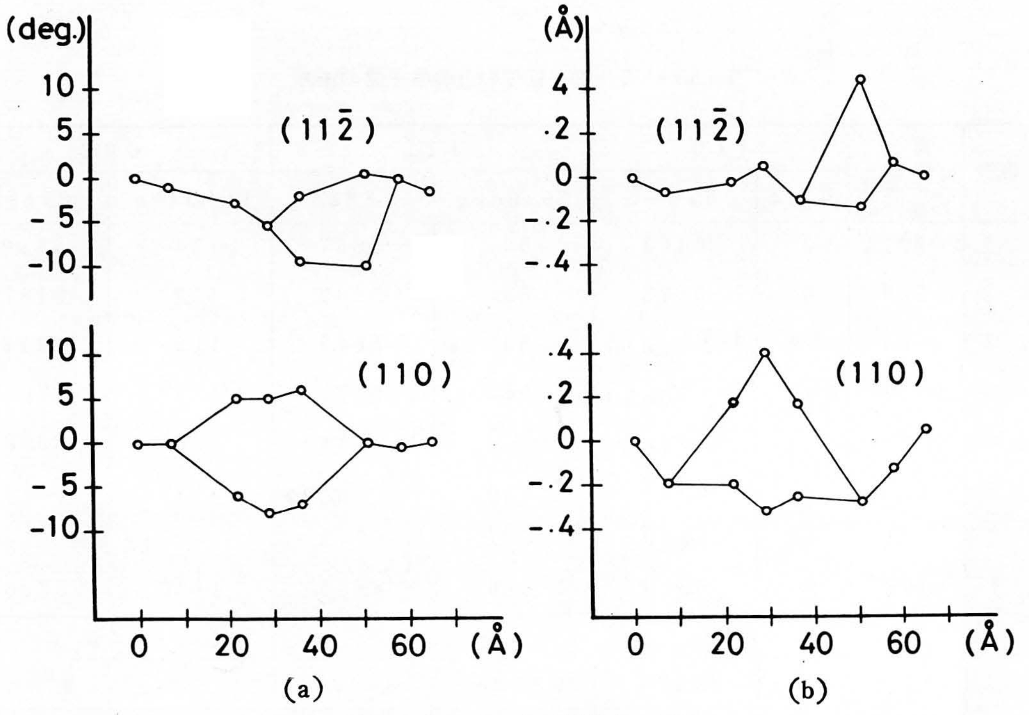


Fig. 2－15　転位付近の像からの光回折斑点の振舞い
（a）面間角の変化　　（b）面間隔の変化

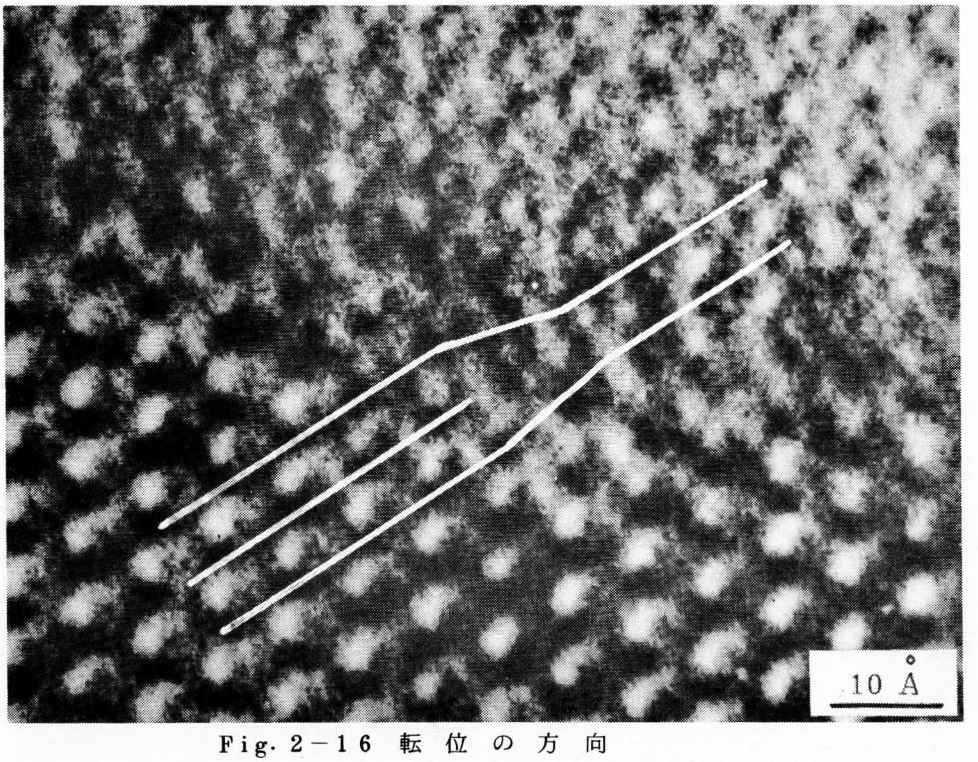


Fig. 2－16　転　位　の　方　向

ⅵ）（ 0 0 $\bar{2}$ ）面の視野７におけるスプリットは今のところ何によるものか不明である。

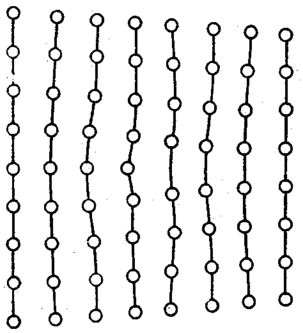


Fig. 2−17　格子湾曲

2−5　結　　　語

本章では、高分解能電子顕微鏡像と光回折の併用による極微制限視野回折法が理論的、実験的に展開され、その有用性が示された。

まず２−２節において弱い位相物体の場合と完全結晶の場合について電子レンズの球面収差と焦点外れを考慮した結像理論を用い、光回折強度と電子回折強度との比較がなされた。更に撮影条件を適当に選ぶことにより、最小制限領域を従来言われていた$C_s\alpha_m{}^3$に比べて$1/4$にできることも示された。

次に、２−４節において光回折斑点の幾何学的位置は結晶の厚さや格子像の撮影条件によらず結晶の種類と方位のみに依存することが示され、面間隔と面間角度の測定から結晶の方位が求められた。また、得られた面間隔と面間角度はX線回折から知られている値とそれぞれ2.8%以下、2°以下の精度で一致した。均一な結晶を用い、回折領域を拡げれば、測定精度は更に高められるであろう。次にこの極微制限視野回折法の応用として

ⅰ）直径約８０Å程度の微結晶を構成する３０Å程度の結晶粒の識別と方位の決定がなされた。

ⅱ）一つの単位胞の回折像を撮影し、これより結晶構造因子の値を連続的に測定できることを示され、また、構造因子が既知の結晶の時には格子像を撮影した時の有効焦点外れ量の測定が精度よく可能である事が示された。

ⅲ）転位の周りの格子面の歪が測定された。

第3章　ノイズ．フィルター．グレーティングを用いた結晶格子像の処理

3－1　緒　　　言

電子顕微鏡の分解能が高くなり、分子内・結晶内の原子位置更にはその微細構造が撮影されるようになると、像は最終倍率で10^7〜10^8倍にまで拡大されねばならない。電子顕微鏡の直接倍率を高くすると、照射ビームの電子密度が減少する。また、解像度の高い写真を得るためには、露出時間はできるだけ短くして試料のドリフトの影響を小さくせねばならない。そのため照射電子の量が減り、量子的ゆらぎ即ちショット雑音が像に大きく影響を及ぼす。一方、直接倍率を10^5倍程度に低くしてショット雑音を消すようにすると、記録した写真を引伸ばしにより拡大せねばならない。するとフィルムの乳剤中の銀粒子も同時に拡大されて直径0.1〜10㎜位になり像の観察を防げる。何れの方法を用いても結局ＳＮ比の悪い像が得られることになる。これを克服するためには、線源から放出される電子の密度を高くするのも有力であり、一方法として、LaB_6を用いた電子銃が注目されている(Hosoki, Ohtsuka and Okano 1975, Nakagawa and Yanaka 1975, 中川1977, Shimizu etal. 1975a, b, 1977)。この銃を用いるとWヘアーピンフィラメントの場合の10〜100倍の輝度を持つ電子線が得られ、直接倍率10^6倍でも比較的明るい像が得られる。

しかしそれでもなお、最終的に得られた像は鮮明とは言えず、ＳＮ比の改善が重要となる。この章では、特に周期物体のＳＮ比改善に有効なノイズ・フィルター・グレーティングを用いた光学的処理について述べる。

まず、3－2節で処理の物理的意味を数式的に明確にする。この時最も重要な意味を持つグレーティングの単位の穴の径の持つ意味を明らかにし、最適穴径を処理されるべき視野の大きさから定める。

3－3節では新しく試作し組立てた処理光学系について述べ、その光学系によるモデル実験の結果を3－4節に示す。

そして最後に3－5節でこの処理を金の格子像に応用する。

3－2　フィルターリングの原理と理論

Fig. 3－1に示すように光学系の物面、後焦点面、像面における座標をそれぞれ(x_0, y_0), (ξ, η), (x, y)とする。処理されるべき原像を記録したポジフィルムは平行なレーザー光で照明され、無収差レンズによりGauss像面上へ結像されるものと仮定する。ポジフィルムの振巾透

過関数を$\phi_0(x_0, y_0)$とすると、レンズの後焦点面上での波の振巾は

$$\Phi(\xi, \eta)=C_1 \exp\{-i\frac{\pi z_0}{\lambda f^2}(\xi^2+\eta^2)\}\iint\phi_0(x_0, y_0)\exp\{-i\frac{2\pi}{\lambda f}(\xi x_0+\eta y_0)\}dx_0dy_0 \qquad (3-1)$$

と表わされる。ただしC_1は定数でありz_0は物面と前焦点面との距離、λ, fはそれぞれ光の波長とレンズの焦点距離を表わす。今、系の倍率が十分に大きいとすれば$z_0\approx 0$とみなして良く、(3－1)式の積分の前の位相項は無視できる。この後焦点面にフィルター$f(\xi, \eta)$を挿入するとフィルターの裏面での波の振巾は

$$\Phi'(\xi, \eta)=\Phi(\xi, \eta)f(\xi, \eta) \qquad (3-2)$$

となる。$f(\xi, \eta)$が零でない値をもつ最大の$a=\sqrt{\xi^2+\eta^2}$と、後焦点面から像面までの距離Dについて$a/D \gg 1$なる関係が成立すれば像面での振巾は近似的に$\Phi'(\xi, \eta)$のFraun-hofer回折として

$$\Psi(x, y)=C_2\iint\Phi'(\xi, \eta)\exp\{-i\frac{2\pi}{\lambda D}(x\xi+y\eta)\}d\xi d\eta$$
$$=C_2\iint\Phi'(\xi, \eta)\exp\{-i\frac{2\pi}{\lambda f}(\frac{x}{M}\xi+\frac{y}{M}\eta)\}d\xi d\eta \qquad (3-3)$$

で表わされる(Born and Wolf 1959)。ここでC_2は定数、$M=D/f$は倍率を示す。実際に用いた光学系では$a/D\approx 1000$であり、(3－3)式を十分適用することができる。ここで実空間座標(ξ, η)の代わりに次式で表わされる周波数空間での座標(u, v)を用いる。

$$u=\frac{\xi}{\lambda f}, \quad v=\frac{\eta}{\lambda f} \qquad (3-4)$$

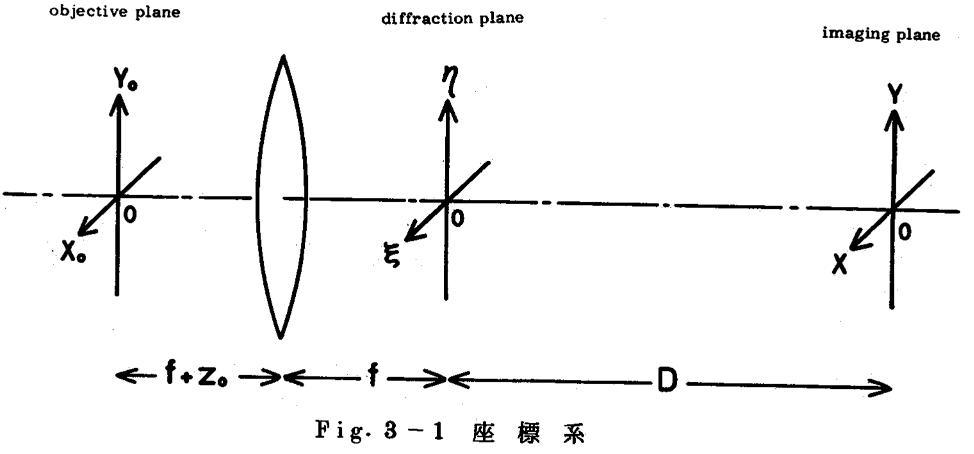


Fig. 3－1 座 標 系

その時、（３－３）式はFourier 変換を表わす記号Fを用いて

$$
\begin{aligned}
\Psi(x,\ y) &= C_2 F\{\Phi'(u,\ v)\} \\
&= C_2 F\{\Phi(u,\ v)\} * F\{f(u, v)\} \\
&= C\ \phi_0\left(-\frac{x}{M},\ -\frac{y}{M}\right) * F\{f(u, v)\}
\end{aligned}
\qquad (3-5)
$$

となる。ただし、Cは定数である。

半径Aの穴を格子状にM×N個（M，Nは奇数）持つノイズ・フィルター・グレーティングは

$$
f(u,\ v) = \sum_{m=-\frac{M-1}{2}}^{\frac{M-1}{2}} \sum_{n=-\frac{N-1}{2}}^{\frac{N-1}{2}} O(u,\ v) * \delta(u-mg,\ v-ng) \qquad (3-6)
$$

と表わすことができる。ここでO（u，v）は１つの穴の透過関数で

$$
O(u,\ v) = \begin{cases} 1 & \text{when } (u^2+v^2)^{1/2} < A \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \qquad (3-7)
$$

である。そしてδ（u，v）は２次元のDiracのδ関数を、gは穴の周期を表わしている。ここであらためて像面上の座標を

$$
-\frac{x}{M} \rightarrow x,\quad -\frac{y}{M} \rightarrow y
$$

と変換し、（３－６），（３－７）式を（３－５）式に代入すると

$$
\Psi(x,\ y) = C\phi_0(x,\ y) * \left\{\frac{2J_1(2\pi Ar)}{2\pi Ar} \cdot \frac{\sin(M\pi gx)}{\sin(\pi gx)} \cdot \frac{\sin(N\pi gy)}{\sin(\pi gy)}\right\} \qquad (3-8)
$$

となる。ここで $r=(x^2+y^2)^{1/2}$ であり、$J_1(r)$ は１次のBessel 関数である。

$$
\frac{\sin(M\pi gx)}{\sin(\pi gx)} \approx \sum_h \delta\left(x-\frac{h}{g}\right) * \frac{\sin(M\pi gx)}{\pi x} \qquad (3-9)
$$

と置き換えると、δ関数の定義

$$
\lim_{M\to\infty} \frac{\sin(M\pi gx)}{\pi x} \equiv \delta(x) \qquad (3-10)
$$

と、公式より

$$\delta\left(x-\frac{h}{g}\right)*\delta(x)=\delta\left(x-\frac{h}{g}\right) \tag{3-11}$$

であることを用いて、十分大きなM，Nに対し（3－6）式は比例係数を無視して

$$\Psi(x,y)\approx\Psi_0(x,y)*\left\{\frac{2J_1(2\pi Ar)}{2\pi Ar}\sum_{m=-\infty}^{\infty}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\delta\left(x-\frac{m}{g},\ y-\frac{n}{g}\right)\right\} \tag{3-12}$$

となり、更に $g={}^{1}\!/\!_{a}$ と $C=(m^2+n^2)^{1/2}$ を代入すると

$$\Psi(x,y)=\sum_{m=-\infty}^{\infty}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\left\{\Psi_0(x-ma,\ y-na)\frac{2J_1(2\pi acA)}{2\pi acA}\right\} \tag{3-13}$$

となる。この式は処理像の振巾が、原像 $\Psi_0(x_0, y_0)$ を周期aでx，y方向に、穴の半径の関数である $2J_1(2\pi acA)/(2\pi acA)$ という重みをかけながらx，y方向にそれぞれm，n回づつずらして重ね合わされたものであることを示している。

$2J_1(x)/x$ はFig. 3－2に示すような関数である。（3－6）～（3－11）式より、フィルターの穴数が増すと、回折像が現れている範囲内において重ね合わせの精度が増す。このことは高次の波を取り入れることにより分解能が高まることと対応している。

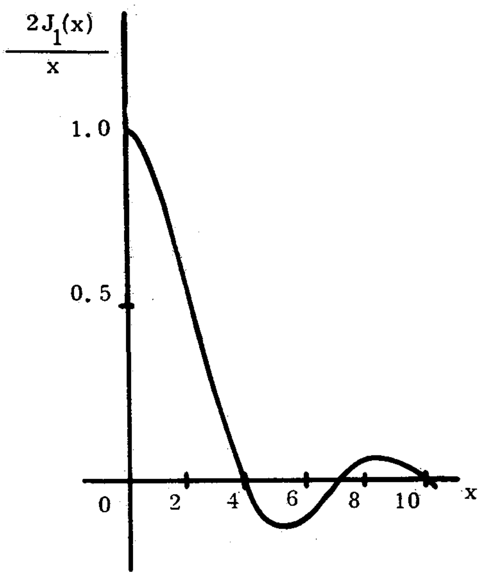


Fig. 3－2　平均化の重み関数 $\frac{2J_1(2\pi acA)}{2\pi acA}$ の一般的形状

実際に処理を行う時には次の事が問題になる。即ち、結晶格子像といえども全域で完全に一様な周期物体とは言えないことである。試料は例え完全結晶であるといっても、極く薄い膜（100～1000Åであり、入射電子線に対して完全に垂直に保持する事は出来ず、わずか（$\sim 10^{-2}$ rad以下）のうねりがある。従って試料各部における

電子線の入射条件が変化しており、得られる格子像のコントラストも微細に変化している。この様な格子像を視野全域で均一に平均化しても良い処理像を望めない。そのため、従来は、比較的大きな穴を有するフィルターが用いられる事が多かった（Steven, Aebi and Showe 1976）。しかし、処理の本質が平均化である以上像コントラストの一様な部分はできるだけ均一な重みで平均化する方がSN比の高い像が得られることになる。そこで、実際の処理にあたっては、均一なコントラストを呈していると思われる部分に視野を細分して、その小視野内で均一な平均化が行われるようにする。

フィルターの穴径を小さくすればするほど重ね合わせは均一に数多く行われるが、必要以上に小さくしても処理像が暗くなるばかりである。取り出した元の小視野内でほぼ均一な模様が得られれば十分なのであるから、M×N個の格子が並んでいる視野の場合には $c=\sqrt{M^2+N^2}$ として穴の半径Aが

$$\frac{2J_1(2\pi acA)}{2\pi acA} \geqq 0.5 \qquad (3-14)$$

即ち，

$$A \lessapprox \frac{0.35}{c}g \qquad (3-15)$$

の関係を満せば良いことにしよう。すると、例えば対角線上に間隔a（$=1/g$）で約10個の格子が並んだ視野の場合には、c＝10として2A≈0.07gの穴径を持つフィルターを用いれば良いことになる。

3－3　処理装置

ノイズ・フィルター・グレーティングによる処理のため組立てた光学系と新たに試作した試料ホルダー及びフィルターホルダーを示す。また用いたフィルター・グレーティングについても述べる。

3－3－1　光学系

処理に用いた光学系の概観をFig. 3－3に、そしてその光路図をFig. 3－4に示す。

He−Ne レーザー光（λ=6328Å, 3mW ; NEC GLG 2032）はレンズL_1（$f=5$㎜）とピンホール（$\phi=50\mu$m, 25μm）で濾過され、また拡げられる。そしてレンズL_2（$f=280$㎜）でコリメートされた平行光は、虹彩絞りAにより直径2～20㎜に制限されて試料であるポジフィルムを照射する。試料フィルムを通り抜けた光はレンズL_3（$f=300$㎜）によりその後焦点面に入れられたフィルターを通りGauss像面に置かれたスクリーン、またはフィルム上に結像され

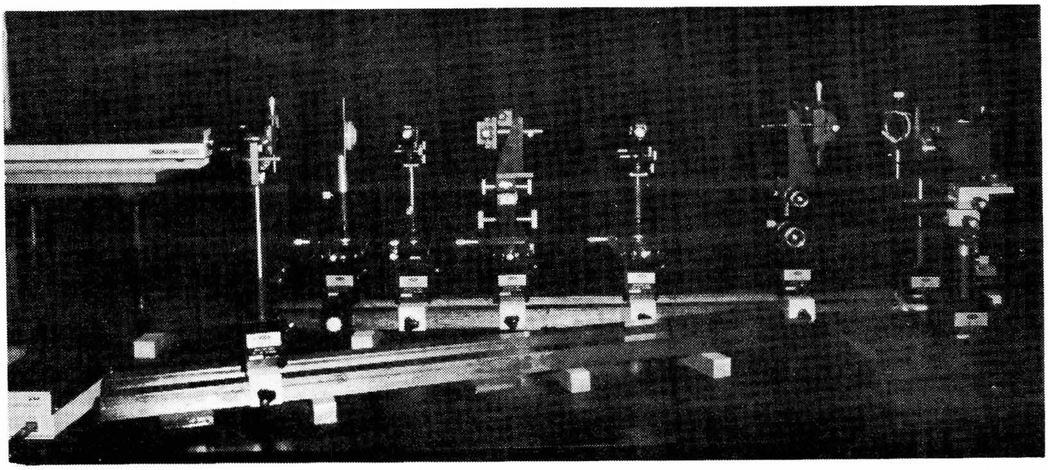


Fig. 3－3　処理光学系概観

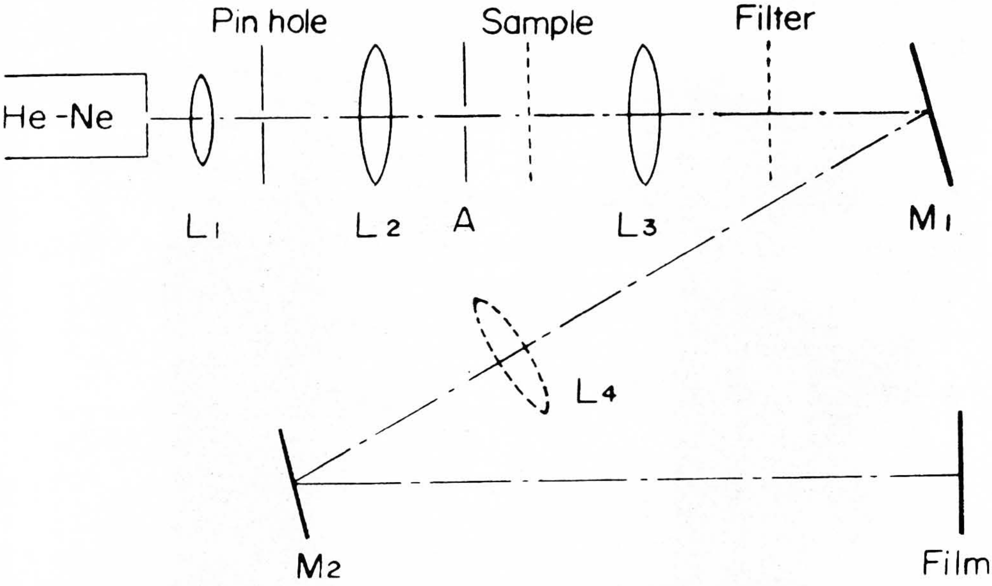


Fig. 3－4　処理光学系の光路図

る。フィルターの微調は処理像を見ながら、もしくはレンズL_4（f＝450㎜）によりスクリーン上に約7倍に拡大投影されたフィルターの像を見ながら行われる。L_4は処理像を得る時には光軸上から外されている。

3－3－2　試料ホルダーおよびフィルターホルダーの試作

3－2節で述べたように、格子像は一般に部分部分で像の生成条件が異なっている場合が多いので、全視野を一度に処理する事は処理像がそれらの異なる像の平均になり、好結果が得られない。そこで試料条件の異なる視野全領域にわたり処理する場合にはその視野を更に小さな領域即ちほぼ均一な像コントラストを呈していると思われるブロックに細分してそのそれぞれについて処理を行わねばならない。しかし、この方法では像処理により得られる視野は各ブロック毎に非連続的な変化を示すものとなる。

連続的に平均処理された像を得るために、光軸に垂直な面内で微動可能な試料ホルダーを試作した。Fig. 3－5に示されたこのホルダーは、基底部がX－Z方向（光軸に垂直な面内）へのラック・ピニオンによる粗動（移動量：X方向55mm，Z方向30mm）と、X－Y方向への微動（移動量：各14mm，最小読取り：マイクロメータ式0.01mm）が可能である。また試料支持部は光軸の周りに360°回転（最小読取り：0.1°）可能であり、その回転ステージに一方向用微動ステージ（移動量：9mm，最小読取り：マイクロメータ式0.01mm，鉄製）が取付けられている。このステ

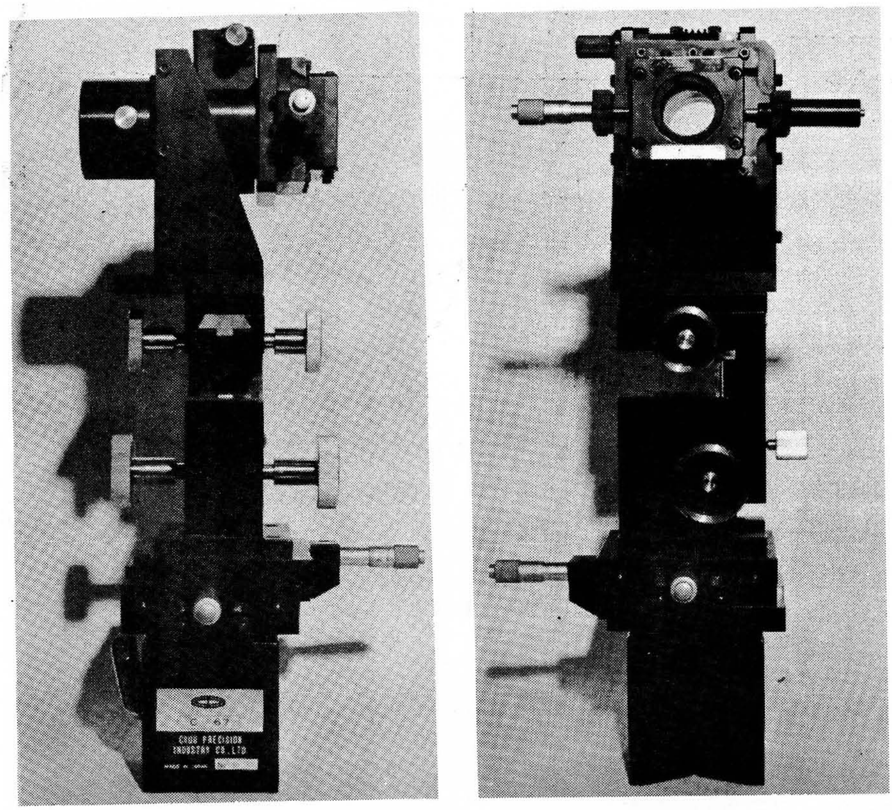


Fig. 3－5　試料ホルダー

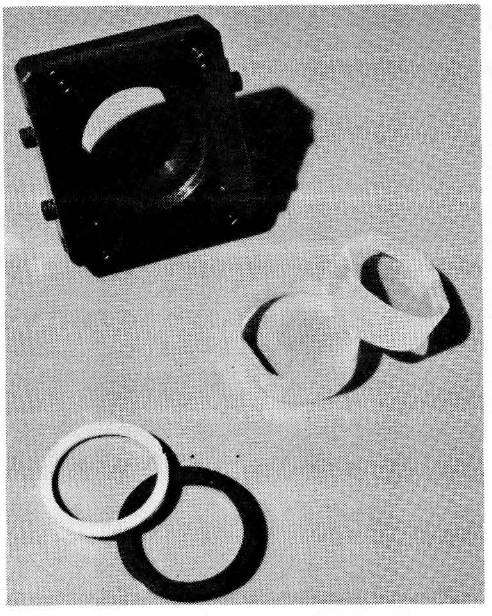


Fig. 3－5　フィルム支持部

ージへの試料フィルムの固定は、ⅰ）簡単な方法としては板バネまたは磁石を用いて微動ステージ表面に固定する。ⅱ）試料フィルムの乳剤面の凹凸による位相の変化を補正したい場合には写真中に示したオプティカルパラレル（日本光学製30㎜$^{\phi}$，～12㎜^{t}，平面度＜0.1 μ，平行度＜0.2 μ）による液浸も可能である。その場合、試料フィルムは直径30㎜以下に切り出されねばならない。屈折率補正液としてはTable 3－1のようなものが知られているが、本実験ではキシレンを用いた。厳密にはフィルム乳剤の屈折率を測定し、それに合わせて調合されねばならない。また、フィルターホルダー

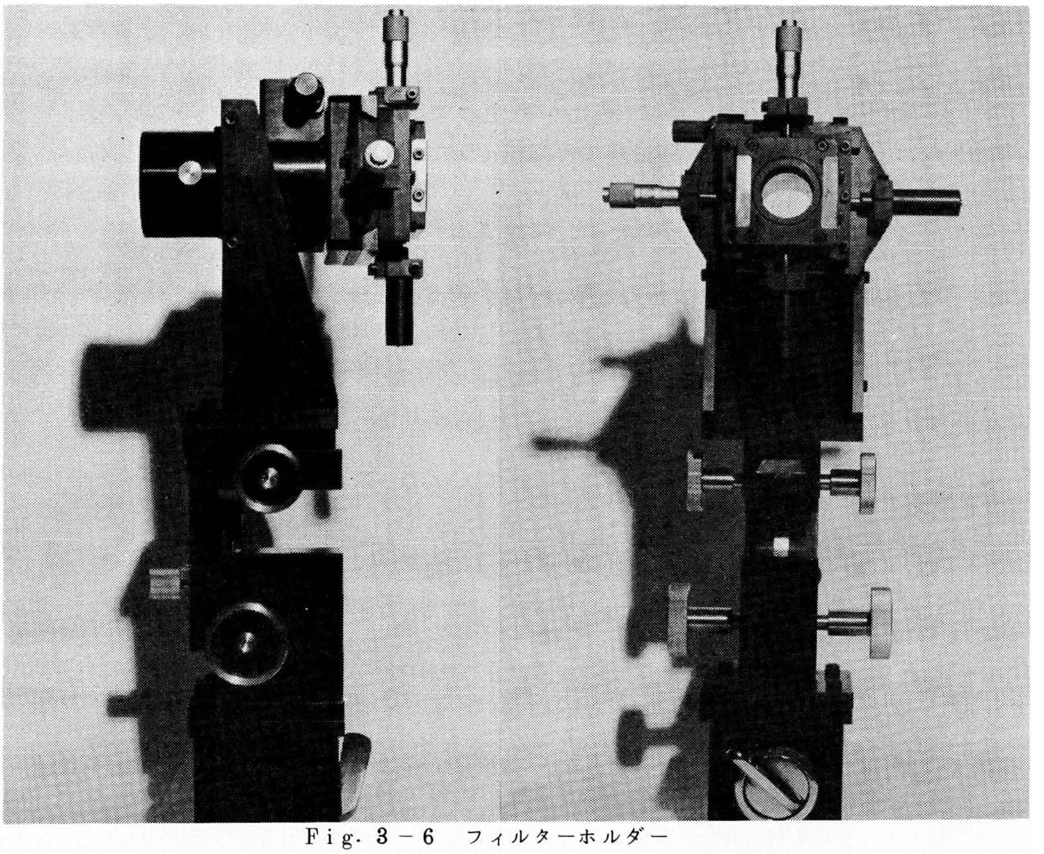


Fig. 3－6　フィルターホルダー

としては初めは一軸粗動とセンタリングの可能な光学顕微鏡用回転ステージを用いていたが、操作性と調節精度を高めるためにFig. 3 − 6に示すホルダーを試作した。基底部はY − Z方向の粗動（移動量：Y方向5 0㎜，Z方向3 0㎜）をラックピニオンで行う。支持部は、試料ホルダーと同じ回転機構に、やはり鉄製の直交二軸微動ステージ（移動量：各8㎜，最小読取り：マイクロメータ式0.0 1㎜）が取付けられている。フィルターの保持は試料ホルダーの場合と同様に、板バネや磁石で行うか、あるいはまたオプティカルパラレルではさむ。それ以外に、テフロンのスペーサーと押えリングの間に直径3 0㎜± 3㎜の円板状フィルターをはさむことも可能である。

Table 3−1　屈折率補正液　(Ooue1969)

液　　体	屈折率（20℃, D− line）
ジ・ブチルフタレート	1.4900
トルエン	1.4955
キシレン	1.499
クロロベンゼン	1.525
セダー油	1.515
1,2,3,4,テトラハイドロナフタレン	1.540
ゼラチン	1.52

3 − 3 − 3　ノイズ．フィルター．グレーティング

Fig.3−7に示すような薄い金属板に穴を開けたものがしばしば用いられている（Steven, Aebi and Showe 1976）。この種のフィルターは、その透過度がほぼ完全に1または0となり、しかも透過光の位相に影響を与えないという利点を有する反面、穴径や穴の周期を色々と変えて作るのが容易でない。そしてフィルターに合わせて被修正像の拡大率を決めたり、微調のためフィルターをレンズの後焦点面上から光軸に沿って移動させたりせねばならず、フィルタ ーリングの精度に問題がある。

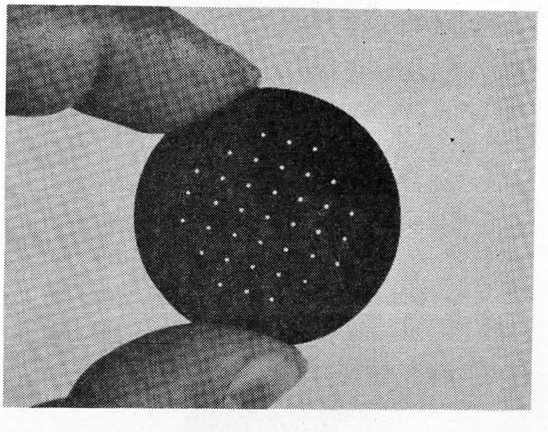


Fig. 3 − 7　銅製フィルターグレーティング

本研究では主として写真法により作製されたシートフィルム（Fuji FG 電子顕微鏡用フィルム）によるフィルター・グレーティングが用いられた。Fig. 3 − 8(a)にそのようなフィルターの一例（$\phi = 0.1g$）を示す。穴の直径は、穴の周期gに対して0.8g, 0.7g, 0.6g, 0.5g, 0.4g, 0.25g, 0.2g, 0.15g, 0.1g, 0.075g と10

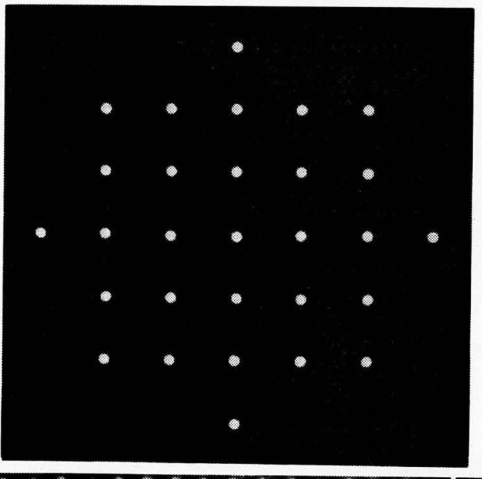


Fig. 3－8 (a)

シートフィルム製フィルターグレーティング

穴径は0.2 g $^{\phi}$

(1)

(2)

(3)

(4)

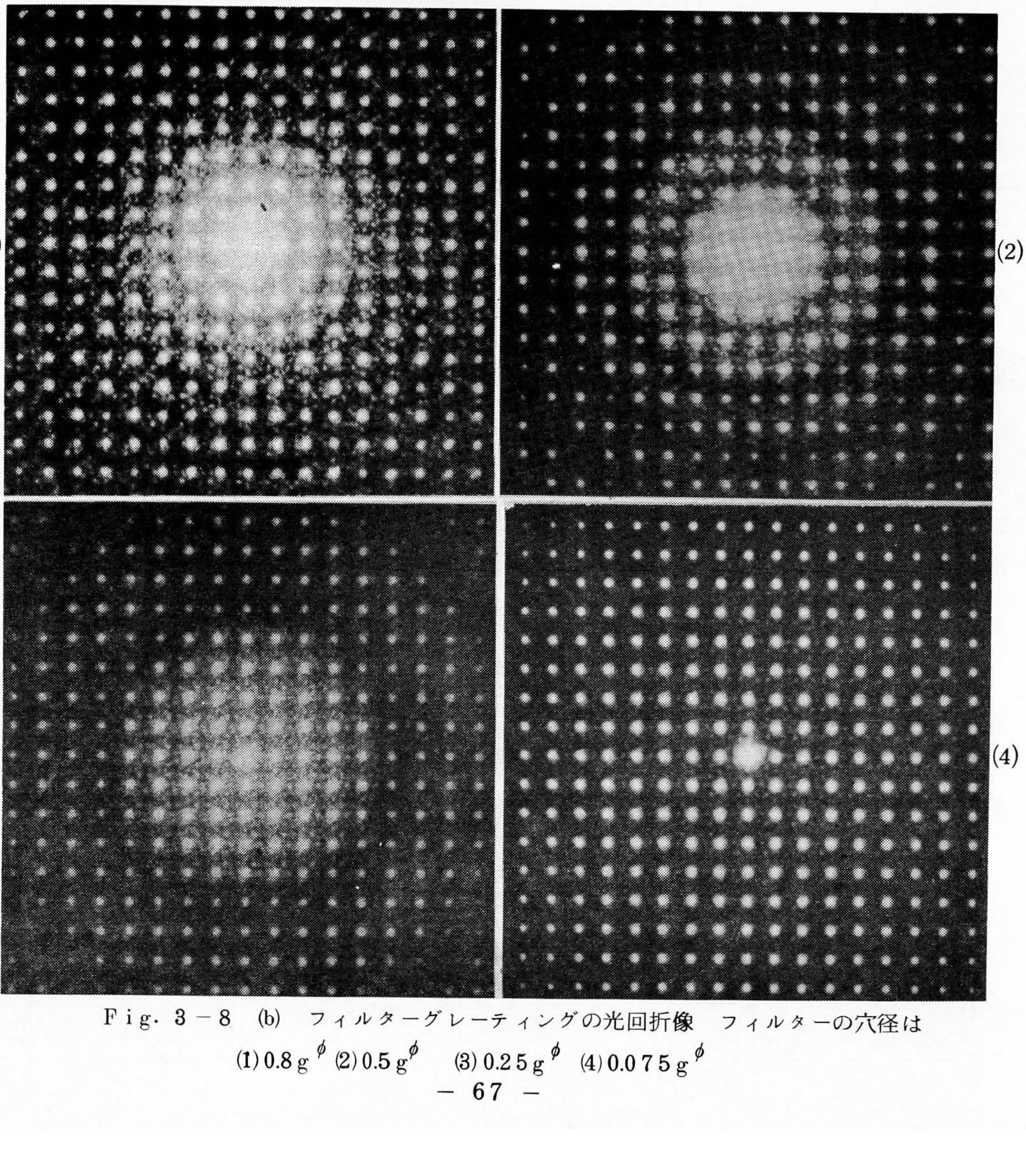


Fig. 3－8 (b) フィルターグレーティングの光回折像 フィルターの穴径は

(1) 0.8 g $^{\phi}$ (2) 0.5 g $^{\phi}$ (3) 0.25 g $^{\phi}$ (4) 0.075 g $^{\phi}$

種類が用意されたが、以下の各節ではその変化が特に著しく現われた0.8g，0.5g，0.25g，0.075gの場合の結果のみが示されている。

穴の数、つまり何次の回折波までを通すかは次のようにして判断された。3－5節で用いられる格子像の電子顕微鏡での撮影には、4次の回折波まで57波が取り入れられた。しかし、格子像の光回折像からは、電子線が各格子面に対称に入射している部分で高々3次の回折斑点までしか観測されない（Fig. 3－13参照）。次章に述べられるごとく、ランダム雑音のみからでもグレーティングにより格子状の模様が処理像として得られる可能性があり、観測される以上の回折波を取り入れる事は必ずしも正確な処理を行ったことにはならない。しかしまた、雑音成分からの回折波の強い領域では、周期成分からの回折波が埋もれていることも考えられる。以上の点を考慮して金の格子像の処理には3次まで29の穴を持つフィルターが用いられた。Fig. 3－8(b)に1～4に各穴径のフィルターの光回折像を示す。回折斑点の強度は$2J_1(2\pi Ar)/2\pi Ar$に比例して変化している。ただし、Aは穴の半径、rは中心からの距離である。

写真フィルムによるフィルターを用いる場合には、フィルム通過時に受ける位相のズレにより像コントラストに変化が起こらぬように十分な注意が払われねばならない。フィルターのすべての穴の透過率を1とする場合には、透過各波の位相間のズレはフィルムベースの不均一性に基づく。電子顕微鏡用シートフィルムは均一度の良いベースを用いているとされているので、この場合には特に補正を行わず、同じ穴径を持つ数枚のフィルターを作製し、それぞれのフィルターにより得られた処理像間に、フィルターの微調による差異以上の変化の無いことを確認するに止めた。

穴の周期gはフィルター・ホルダーに固定されたシートフィルムに試料の回折像を記録して測定された。

3－4　モデル像の再生と処理

Fig. 3－9に結晶格子像のモデル(a)、ランダム雑音のモデル(b)、結晶格子像が雑音で乱されている場合のモデル(c)を示す。普通に得られる結晶格子の電子顕微鏡像は(c)に対応する。ランダム雑音のモデルは微弱光を露光した中間調フィルムの銀粒子を100倍以上に拡大したものである。(c)の格子像のモデルは(a)の像にFig. 3－10に示すような方法で、モデル雑音(b)を乗算的そして加算的に二度加え　作られたものである。

モデル(a)を直径0.5g，0.075gの穴を持つフィルターで処理した結果をFig. 3－11に、またモデル(b)，(c)を直径0.5g，0.25g，0.075gの穴径のフィルターで処理した結果をFig. 3－12に示す。Fig. 3－12(a)に見られるように、フイルターの穴径が小さくなるほど低周波数の雑音まで除去され、視野全域で均一な、しかもFig. 3－11(b)に近いコントラストが得

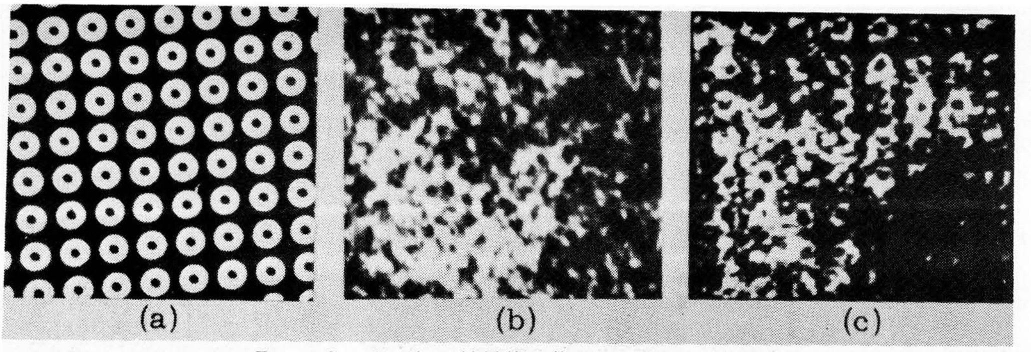


Fig. 3 − 9　(a)　結晶格子像のモデル
(b)　ランダム雑音のモデル
(c)　雑音に乱された格子像のモデル

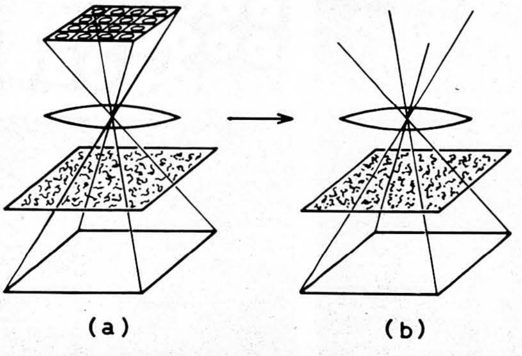


Fig. 3 − 10
雑音に乱された格子像（Fig. 3 − 9 (c)）の作り方　まず
(a)　乗算的に格子像（Fig. 3 − 9 (a)）にランダム雑音（Fig. 3−9 (b)）をのせ、更に雑音だけを
(b)　加算的に加える。

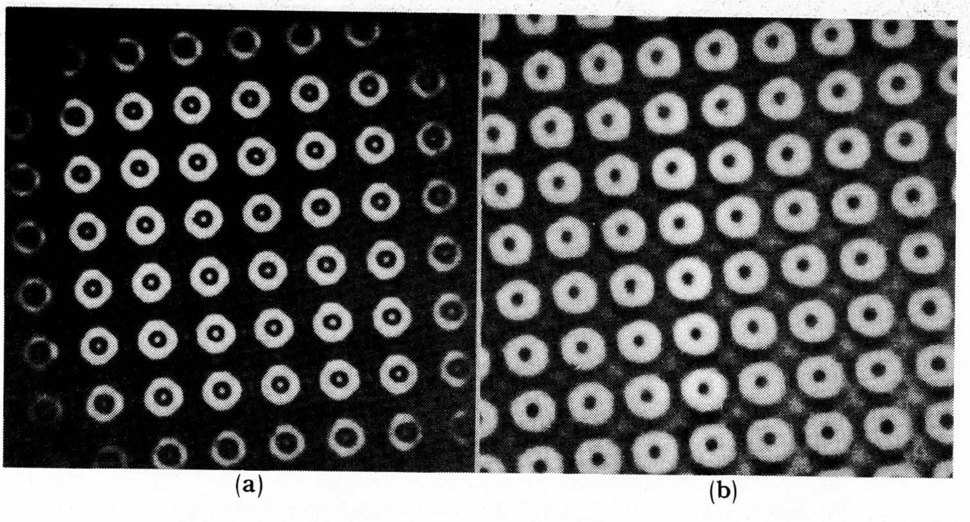
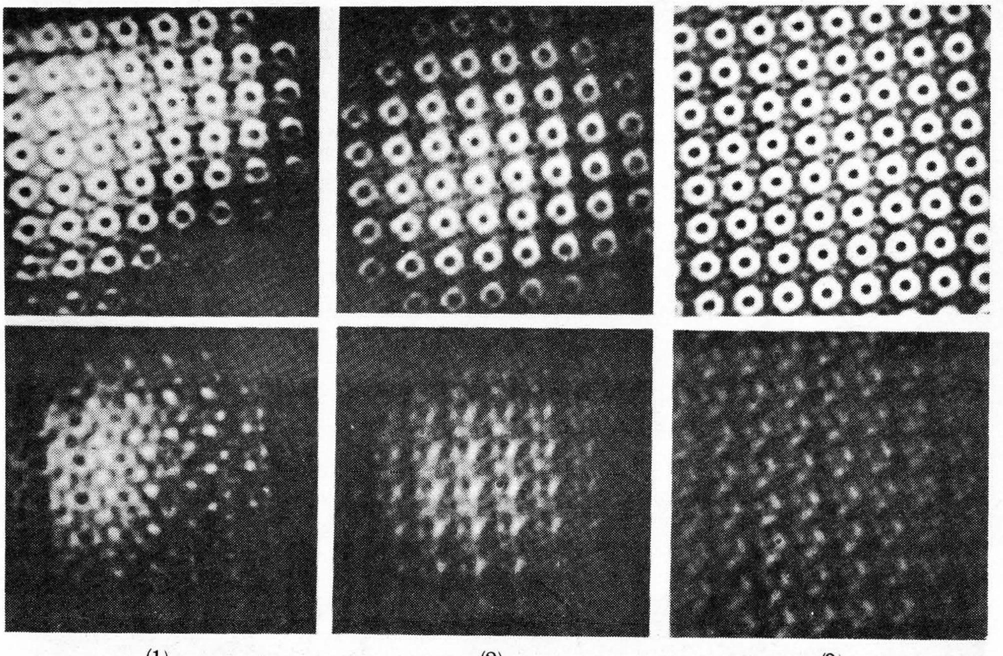


Fig. 3 − 11　格子像のモデル（Fig. 3 − 9 (a)）のフィルターグレーティングによる処理
(a)　0.5 g$^{\phi}$ の穴径のフィルターで処理したもの
(b)　0.075 g$^{\phi}$ の穴径のフィルターで処理したもの

られた。またＦｉｇ．３－１２(b)のように、ランダム雑音のみを処理した場合にも格子状の模様が得られていることに注意せねばならない。Ｆｉｇ．３－１２の(a)と(b)で同じ穴径のフイルターによる処理像は、露出時間や写真処理等が全く同じ条件でなされている。従つて正しく処理された格子像(a)中に含まれる雑音の影響は十分小さいと考えられる。(b)に現われている格子状の構造については、第四章で詳しく検討する。



(1)　(2)　(3)

Ｆｉｇ．３－１２　モデル像の処理
(a)　Ｆｉｇ．３－９(c)の雑音に埋れた格子像の場合
(b)　Ｆｉｇ．３－９(b)のランダム雑音のみの場合
用いたフィルター・グレーティングの穴径は
(1)0.５ｇ$^{\phi}$　(2)0.２５ｇ$^{\phi}$　(3)0.075ｇ$^{\phi}$

３－５　格子像の処理

Ｆｉｇ．３－１３に高分解能電子顕微鏡（ＪＥＭ１００Ｃ）で撮られた金の結晶格子像を示す。結晶表面は（００１）面にほぼ平行であり、7.7×10^{-2} rad の対物絞りを用い４次まで５７波を結像に用いている。像の各部にコントラストの変化や濃淡が見られるのは、結晶が薄く（～２００Å）部分的に湾曲していて入射電子線に対しＢｒａｇｇ条件が変化しているためである。この格子像のノイズ・フィルターグレーティングによる処理を示す。Ｆｉｇ．３－１３のＡの部分をＦｉｇ．３－１４(a)に示す様に、できるだけ均一なコントラストを呈していると思われる小部分に区切って処理を行った。

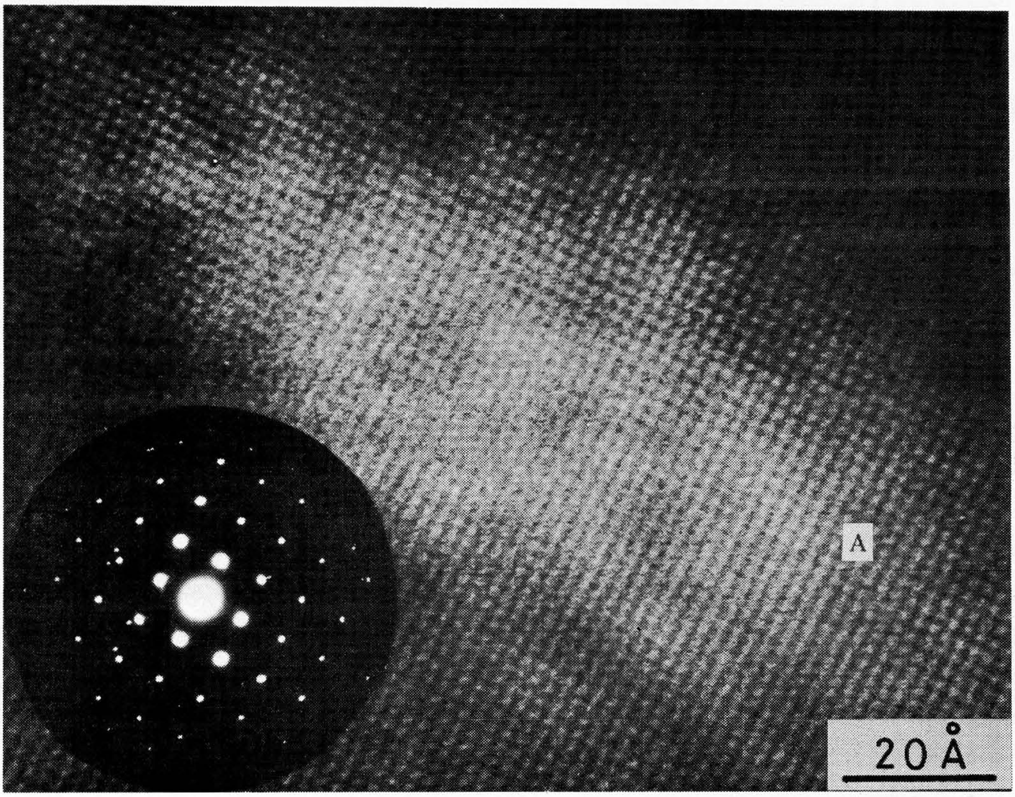


Fig. 3－13　57波を用いて結像された金（001）面の結晶格子像
Aの部分の処理がFig. 3－14に示される。

視野は一辺約15Åの試料領域に対応する正方形で、外周により回折された波がフィルターの穴に入らないよう、辺が格子列に対し約25°傾けて取ってある。これは(b)の光回折像からもわかる。この視野を直径0.8g，0.5g，0.25g，0.075gの穴を持つフィルターで処理して得られた像がそれぞれ(c)，(d)，(e)，(f)である。ここでは、gとして000斑点と200回折斑点との距離をとっている。(e)〜(f)の処理像は(a)と同じ倍率で示されており、穴径を小さくするほど格子像が元の視野の枠の外へ拡がり、コントラストも一様になって平均化が進んでいることがわかる。また、（3－15）式より求めた最適穴径0.075gの時視野全域でほとんど均一で鮮明なパターンが得られている。

3－6　色収差の補正

本章では、これまで、いかに雑音を除去し、SN比の高い理想的な顕微鏡像を得るかということを処理の主眼として来た。しかし、いかに球面収差の影響が無いように結像しても、色収差の影響

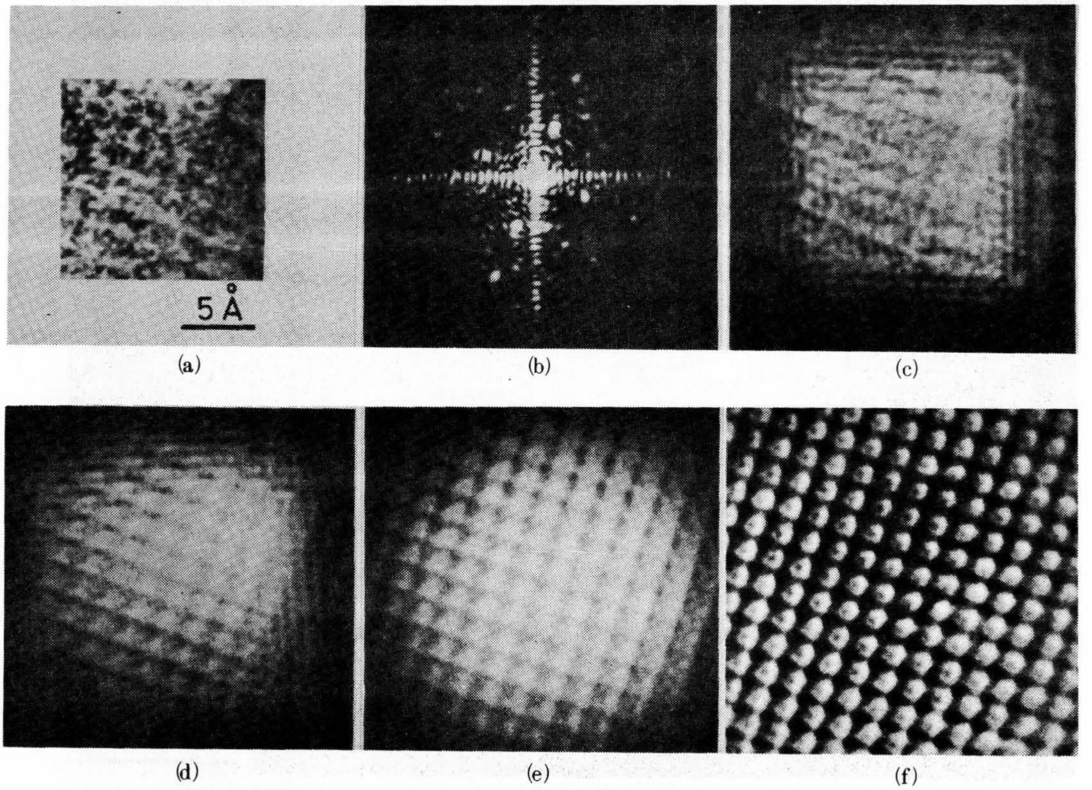


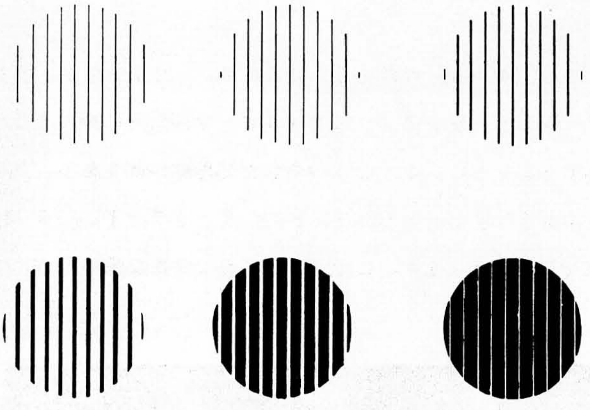
Fig. 3－14　金格子像の処理
(a)の格子像を　0.8 g$^{\phi}$ (c)，0.5 g$^{\phi}$ (d)，0.25 g$^{\phi}$ (e)，
0.075g$^{\phi}$ (f)の穴径のフィルターで処理したもの

は除去することが出来ない。そこで（１－３４）式に従ってフィルターの穴に透過度の差をつけた。

Teble 3 －2に各回折波に対する色収差の大きさと補正のためのフィルターの透過度を示す。

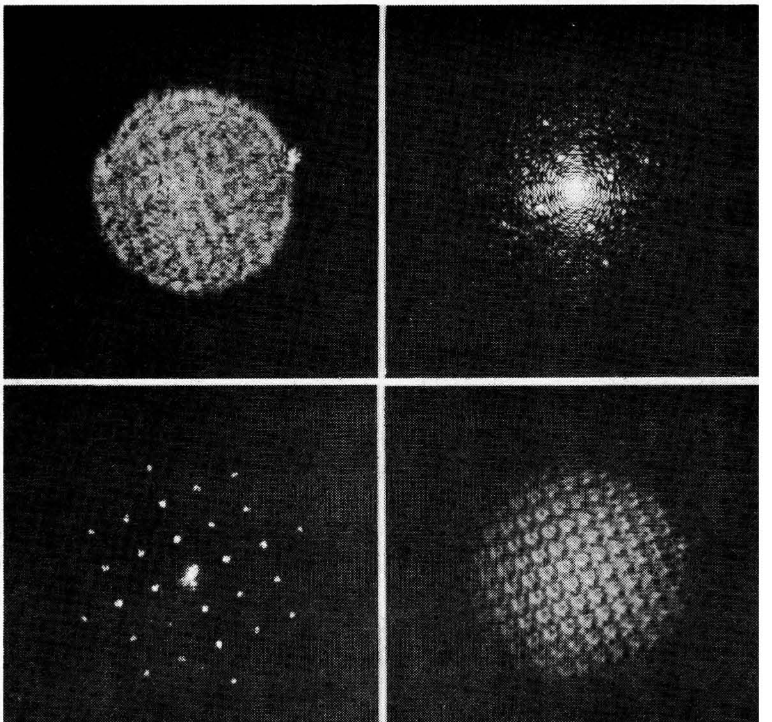
Teble 3−2　色収差による振巾の減少と補正フィルターの透過度

hkl	$\lvert \mathbf{s} \rvert = {}^1/_d$	G（$\mathbf{s}$）	${}^1/_{G(\mathbf{s})}$	t（透過度）
0 0 0	0（$Å^{-1}$）	1.0	1.0	0.0 8
2 0 0	0.490	0.890	1.124	0.0 8
2 2 0	0.693	0.669	1.495	0.1 2
4 0 0	0.981	0.334	2.994	0.2 4
4 2 0	1.096	0.244	4.098	0.3 2
4 4 0	1.387	0.112	8.929	0.7 6
6 0 0	1.471	0.090	11.111	0.9 2



Ｆｉｇ．３－１５　色収差補正用フィルターの各穴の拡大図
（ネガ）
スリットの巾により６段階に透過度の差をつけてある。

ただし、色収差としては熱電子のエネルギー分布のみを考え、$\delta E=0.3\,eV$，$Cch=1.03\,mm$としている。またフィルムの濃度差により透過度に差を付けるのは、その制御が難しく、しかも位相差を補うためにフィルターをオプティカルパラレルではさまねばならない。そこで本実験ではＦｉｇ．３－１５にそのネガを示すように各穴の中の細い１０本のスリットの巾で透過度に差



Ｆｉｇ．３－１６　Ａｕ（００１）格子像の色収差補正
(a)　被処理像　　(c)　フィルター挿入後の回折像
(b)　(a)の光回折像　　(d)　処 理 像

をつけるバイナリータイプのものを用いた。また、000回折波と200回折波に対しては同じ透過率の穴を用いた。

Fig. 3－16にその結果を示す。ただし、スリットの精度を高めるため、穴径は0.25gと少し広くした。試料の結晶格子像(a)の光回折像(b)と一致するようにフィルターを回折面に挿入する。その時のフィルター透過後の回折波の強度が(c)であり、こうして得られた処理像が(d)である。穴径が大きなため視野の各部にコントラストの大きな変化が見られる。Fig. 3－17はFig. 3-16(d)の拡大像である。同じ穴径で処理されたFig. 3－14(e)に比べてはるかに良好な像が得られている。

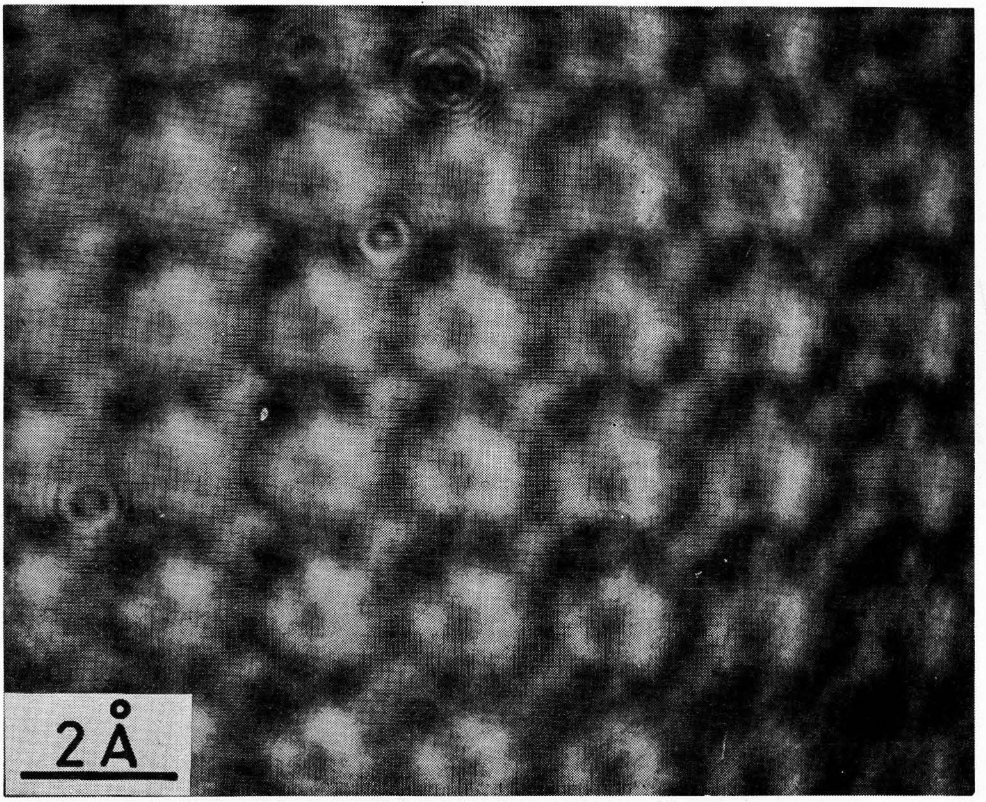


Fig. 3－17 金の処理像
Fig. 3－16(d)の拡大像

3－7 考察

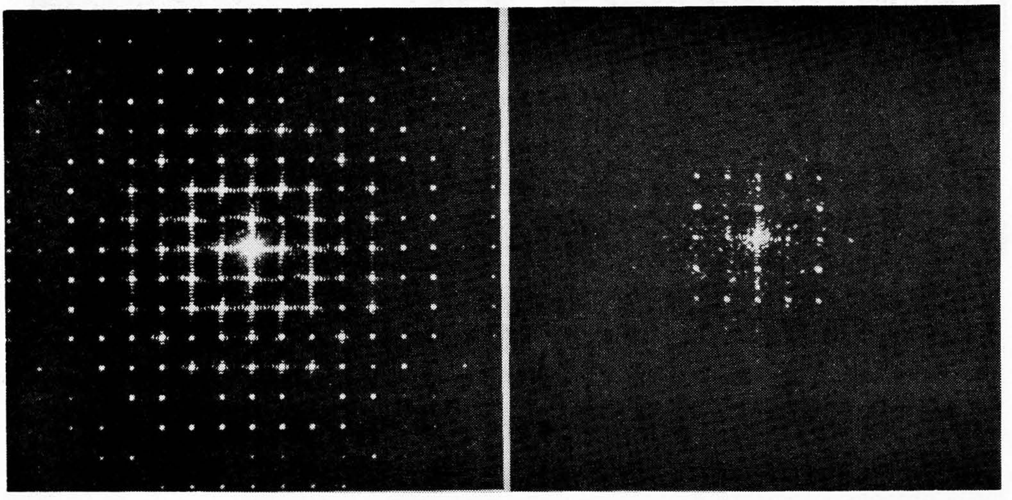
次の3点について考察する。

i) 3－4節におけるモデル実験の結果得られた処理像とモデルとの相違について。

ⅱ）モデル実験ではフィルター・グレーティングの穴が大きな場合にも、視野の中央部では比較的良好な処理像が得られているのに対し、3－5節での金の格子像の処理では穴の直径が十分に小さくなるまで良い像が得られていないことの原因について。

ⅲ）（1−34）式に基づいて行った金の格子像の色収差補正の妥当性について。

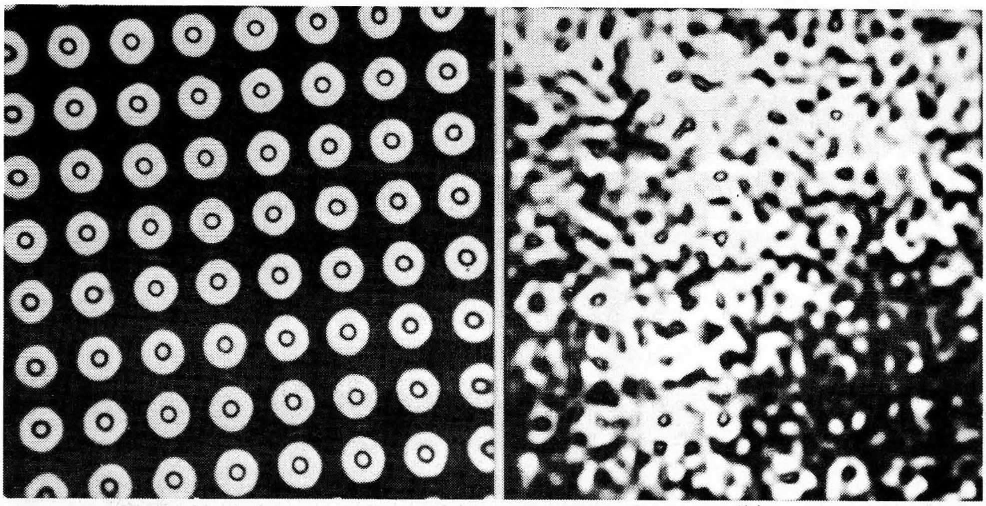
ⅰ）Figs. 3－11，3－12(a)に示された各処理像は元の真の情報のモデルFig. 3－9(a)の円環以外に更に細かな構造が混ざり込んでいる。これはフィルターにより高次の回折波を除去しているためである。Fig. 3－18に雑音を含まぬ格子像のモデル、即ちFig. 3－9(a)の光回折



(a)　　　(b)

Fig. 3－18　格子像のモデルの光回折像
(a)　雑音がない場合（Fig. 3－9(a)）
(b)　雑音に埋もれている場合（Fig. 3－9(c)）

像(a)と、雑音により乱された格子像のモデルFig. 3－9(c)からの光回折像(b)とを示す。同図(a)からわかるように、元々の格子像のモデルは非常に高次までの周波数成分から成り立っている。これらの周波数成分をフィルターにより3次までに限ったため、上のような結果が現われたものである。このことは、ノイズ・フィルター・グレーティングの代りにやはり3次の波までしか通さない円形絞りを用いても確かめられた。Fig. 3－19(a)にその円形絞りによる処理像を、また同時にFig. 3－19(b)にその絞りで雑音で乱された格子モデルFig. 3－9(c)を処理した結果を示す。しかしながら格子モデルの処理像Figs. 3－11，3－12(a)において、各円環の中心にある明るい点が、どちらの図においてもフィルターの穴径を小さくすると消滅している。我々は今、Fig. 3－



(a)　　　　　　　　　　　　　　(b)

Ｆｉｇ．３－１９　円形絞りによる格子像の処理
(a)　雑音がない場合　（Ｆｉｇ．３－９(a)）
(b)　雑音に埋もれている場合　（Ｆｉｇ．３－９(c)）
どちらの場合にも３次までの回折斑点のみで結像された。

１９(a)の像を処理の目標とするべきであるから上のＦｉｇｓ．３－１１，３－１２(a)の結果はかえってこの目標に反するように思われる。おそらく、フィルターの穴が小さくなり重ね合わせが進んだことにより、像のコントラストが高められたためであろうと思われるが、この微細構造の変化については更に詳して研究を要する。また、雑音に乱された格子像のモデルの光回折像Ｆｉｇ．３－１８(b)では雑音に埋もれて３次以上の回折斑点は非常に弱くなっている。しかしながらその処理像Ｆｉｇ．３－１２(a)やＦｉｇ．３－１９(b)に、高次の波を除いた影響が現われているのは注目すべきである。

ⅱ）Ｆｉｇ．３－１８(b)に示すモデル格子像の光回折像と、Ｆｉｇ．３－１４(b)に示す結晶格子の電子顕微鏡像の光回折像を比べると前者の方がＳＮ比が高く２次までの各回折斑点はすべて確認でき、３次の斑点も一部見られるのに対し、後者では、２次までの斑点でも雑音と判別できないものが多くある。従って同じ穴径を持つフィルターでは、後者の電子顕微鏡像の方が雑音の影響が強く処理像に現われ、良い像を得るためにはフィルターの穴径を十分に小さくせねばならなかったのであろう。

ⅲ）（１－３４）式は、一般に各回折波の振巾 $|\Phi_g|$ が前方散乱波（透過波）の振巾 $|\Phi_0|$ に比べて十分小さい時にのみ成り立つ式である。弱い位相物体近似や運動学的回折理論の適用可能な領域で用いられる際には問題はない。また、厚い結晶あるいは金のような散乱能の大きな原子から成る結晶の場合で各 Φ_0, Φ_g を動力学的に求めねばならない場合でもその振巾が小さければ上式

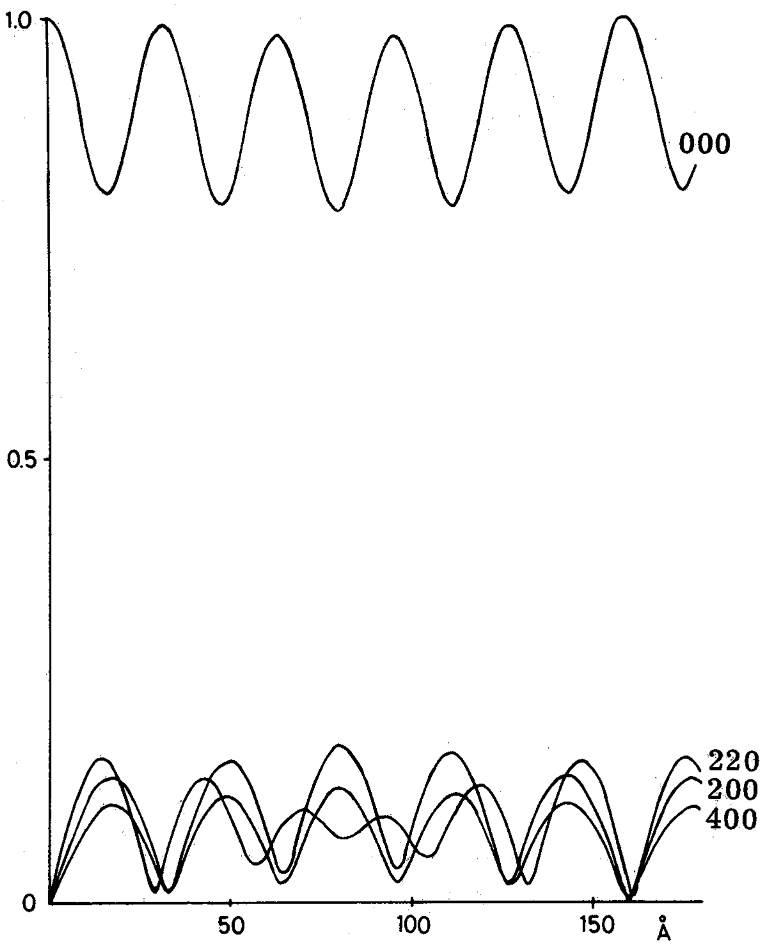
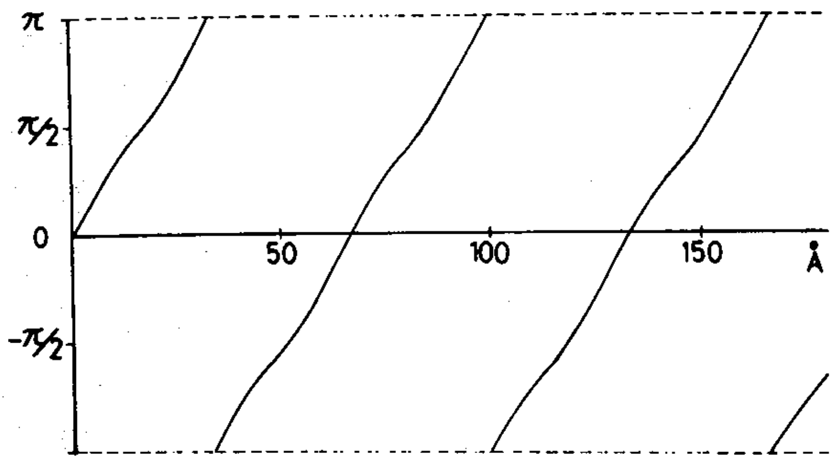
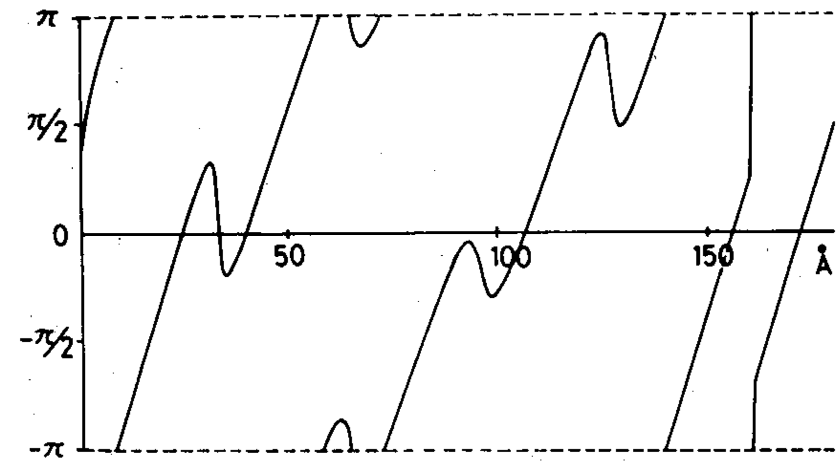


Fig. 3 − 2 0　動力学的に計算された金結晶からの回折波の振巾の厚さ依存性
（電子線は＜0 0 1 ＞軸と平行な入射を仮定している。）

は適用可能である。Figs. 3−20，3−21に遠藤により動力学的に計算された金の結晶に電子線が〈001〉軸と平行に入射した場合の回折波の振巾と位相を示す。図より｜Φ_g｜が結晶構造因子と試料の厚さに比例し、Φ_gのΦ_0に対する位相のズレが$\pi/2$ であると仮定する運動学的回折理論は1 0 Å以下の結晶についてしか適用できないことがわかる。また$|\Phi_g|/|\Phi_0|$は0 〜0. 2 の間で複雑に変化するが、しかし平均で$|\Phi_g|/|\Phi_0|$ ≈0. 1 となる。この値に対して（ 1 − 3 3 ）式で示される近似はかなり満足すべきものとなる。



000



220

Fig. 3－21　動力学的に計算された金結晶からの回折波の位相の厚さ依存性

（電子線は＜001＞軸と平行な入射を仮定している。）

3－8　結　　　語

本章では、ノイズ・フィルター・グレーティングを用いた格子像のＳＮ比向上のための画像処理の機構が数式を用いて明確にされた。そして処理に最適な穴の大きさとして、Ｍ×Ｎ個の格子点が並ぶ視野の場合、穴の周期 g に対して $0.35g/c$ という半径の値が求められた。

ただし、$c = \sqrt{M^2 + N^2}$ である。

次に、新しく試作し、組み立てられた光学系について述べられ、モデルを用いた予備実験により理論的説明が裏付けられ、上の最適な穴径で良好な像の得られることを確認された。また、ランダム雑音のみからでもこの処理により格子状の模様が得られ、実際の処理にあたって真の情報と取り違えぬよう十分注意される必要があることが、実験的に示された。この疑似格子像についての詳しい検討は次章で行われる。

最後に、金の結晶格子像に応用され微細構造が明瞭に観察された。更にこの金の格子像に対し、放出熱電子のエネルギー分布による色収差の補正が、フィルターの各穴中に細いスリットを入れる方式により試みられ一応の成果が得られた。次段階として、球面収差の補正にもこの方式の応用が期待される。

第４章　白色雑音とグレーティングにより作られる疑似格子像

４－１　緒　　　言

通常、高倍率高分解能電子顕微鏡像で問題とされる、放出電子流のショット雑音や、フィルム乳剤の粒状性による雑音は像の大きさに対して十分にランダムであり、あらゆる周波数成分を含んでいると考えられる。従ってその散乱は回折面上で広範囲に拡がる。ノイズフィルターグレーティングにより格子像を処理する際、試料が例え周期構造を含んでなくとも、ランダムな雑音が強ければ格子状の処理像の得られることは既にFig. 1－11に示した通りである。液浸により補正されない限り、試料フィルムの乳剤面には、その濃淡に応じた凹凸が在り、透過光はその振巾ばかりではなく、位相の変化をも受けている。そこで、前述の疑似格子像を論じる時には、拡大、強調された"雑音の像"は振巾位相散乱体として取り扱われるべきである（Tanji, Hashimoto and Tomioka 1977）。コヒーレント光によるランダムな振巾位相散乱体により生ずる像は、いわゆるスペックル（雑音）の一種として知られている（Schiffner 1965, Enloe 1967, Lowenthal and Arsenault 1970）。スペックルとは、コヒーレント又は部分的コヒーレント光とランダムに配列している散乱中心により引き起こされる現像であり（Dainty 1970, Ichioka 1974）、散乱体としては、入射光の振巾、位相、偏光のいずれに作用するものでもよい（Martienssen and Spiller 1965）。また、光学系の回折領域においても像領域においても観察される。

本章では、ノイズ・フィルター・グレーティングによる処理の際現われる疑似格子像をスペックルとして取り扱い解析する。そしてモデル実験を行った結果との比較を行う。また、前章３－５節で用いた金の結晶格子像に含まれる雑音の処理像への寄与についても議論する。

４－２　像面に生ずるスペックルの理論

試料像に含まれる雑音は全くランダムであるため、一意的な関数で表わすことはできず、現象の記述には統計的に取扱う必要がある。そこでこの節では、像面に生ずる雑音の強度の自己相関関数、パワースペクトルをYamaguchi（1972, 1973），山口（1974）に従って導く。

ランダム雑音を記録したフィルムが準単色光で照明され、レンズの後焦点面に入れられたフィルターグレーティングを通ってGauss像面に結像されるものとし、物面（フィルム）、Fourier面、像面の各座標系をFig. 4－1に示すようにそれぞれ$\mathbf{r}$，$\mathbf{s}$，$\mathbf{R}$とする。物面透過直後の$\mathbf{r}_1$と$\mathbf{r}_2$における相互強度（Mutual intensity）は次のように書ける。

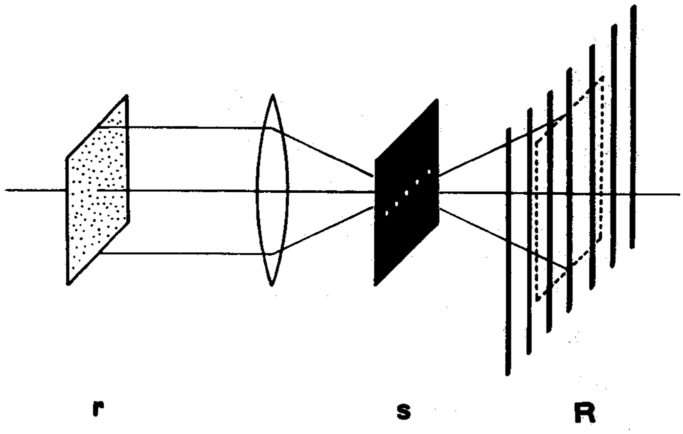


Fig. 4－1 疑似格子像
試料がランダムな散乱体ならばグレーティングにより格子状の像が得られる。

$$J_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \equiv \langle V(\mathbf{r}_1, t)\, V^*(\mathbf{r}_2, t) \rangle_t$$
$$= a(\mathbf{r}_1)\, a^*(\mathbf{r}_2)\, \exp i[\phi(\mathbf{r}_1) - \phi(\mathbf{r}_2)]$$
$$\sqrt{I(\mathbf{r}_1)\, I(\mathbf{r}_2)}\, \gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \qquad (4-1)$$

ただし、$V(\mathbf{r}, t)$ ： 時刻 t、位置 $\mathbf{r}$ における複素振巾。

$\langle \quad \rangle_t$ ： t に関する平均。

$\exp i\phi(\mathbf{r})$： ランダム雑音による微視的振巾透過率で $\phi(\mathbf{r})$ は一般には複素数である。

$a(\mathbf{r})$ ： 巨視的振巾透過率で本来の試料の像を表わす。

$I(\mathbf{r})$ ： 照明光の強度分布。

$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ ：空間的コヒーレンス関数

とする。系の伝達関数を仮に $K(\mathbf{R}\,;\mathbf{r})$ とすると、像面における相互強度は

$$J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2) = \int\int K(\mathbf{R}_1; \mathbf{r}_1)\, K^*(\mathbf{R}_2; \mathbf{r}_2)\, J_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\, d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \qquad (4-2)$$

となる。$K(\mathbf{R}; \mathbf{r})$ は $\mathbf{r}$ に単色で 0 位相の単位強度をもつ点光源をおいた時に $\mathbf{R}$ に生ずる振巾を意味している。積分は物体面全面にわたって行われる。

$J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)$ はランダム変数 $\exp(i\phi)$ の存在によって統計的なゆらぎを示すが、特に強度

$$I(\mathbf{R}) \equiv J(\mathbf{R}, \mathbf{R}) \qquad (4-3)$$

のゆらぎがスペックルに他ならない。そこで $\exp i\phi$ の統計集合についての平均（ensemble average）をとると、コヒーレント照明を仮定して

$$\langle J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2) \rangle = \int\int K(\mathbf{R}_1; \mathbf{r}_1)\, K^*(\mathbf{R}_2; \mathbf{r}_2)\, u_0(\mathbf{r}_1)\, u_0^*(\mathbf{r}_2)$$
$$\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\, d\mathbf{r}_1\, d\mathbf{r}_2 \qquad (4-4)$$

となり、これが振巾の自己相関関数になる。ここに$u_0=\sqrt{I}$ は物面通過直後の波の巨視的振巾分布を意味する。また

$$\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \equiv \langle \exp i\{\phi(\mathbf{r}_1) - \phi^*(\mathbf{r}_2)\}\rangle \qquad (4-5)$$

はノイズによる微視的振巾透過係数の二次のモーメントである。

強度の平均は

$$\langle I(\mathbf{R})\rangle = \int\int K(\mathbf{R};\mathbf{r}_1) K^*(\mathbf{R};\mathbf{r}_2)\, u_0(\mathbf{r}_1)\, u_0^*(\mathbf{r}_2)\, \rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\, d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \qquad (4-6)$$

であり、これはコヒーレンス度$\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$という光で雑音を含まない試料フィルムを部分的コヒーレント照明した時に得られる強度に等しい。

強度の自己相関関数は、平均強度のまわりの強度ゆらぎ

$$\triangle I(\mathbf{R}) \equiv I(\mathbf{R}) - \langle I(\mathbf{R})\rangle \qquad (4-7)$$

を用いて

$$\langle I(\mathbf{R}_1)\ I(\mathbf{R}_2)\rangle = \langle I(\mathbf{R}_1)\rangle\langle I(\mathbf{R}_2)\rangle + \langle\triangle I(\mathbf{R}_1)\ \triangle I(\mathbf{R}_2)\rangle \qquad (4-8)$$

ここで右辺第二項は、強度ゆらぎの自己相関関数で

$$\langle\triangle I(\mathbf{R}_1)\ \triangle I(\mathbf{R}_2)\rangle = \int\int\int\int K(\mathbf{R}_1;\mathbf{r}_1) K^*(\mathbf{R}_1;\mathbf{r}_2) K(\mathbf{R}_2;\mathbf{r}_3) K(\mathbf{R}_2;\mathbf{r}_4)\, u_0(\mathbf{r}_1)\, u_0(\mathbf{r}_2)\, u_0(\mathbf{r}_3)\, u_0^*(\mathbf{r}_4)\, \triangle\rho(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4)\, d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 d\mathbf{r}_3 d\mathbf{r}_4 \qquad (4-9)$$

ただし

$$\triangle\rho(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4) \equiv \rho_4(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4) - \rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\cdot\rho_2(\mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4) \qquad (4-10)$$

$$\rho_4(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4) \equiv \langle \exp i\{\phi(\mathbf{r}_1) - \phi^*(\mathbf{r}_2) + \phi(\mathbf{r}_3) - \phi^*(\mathbf{r}_4)\}\rangle \qquad (4-11)$$

であり、ρ_4は微視的振巾透過率の四次のモーメントである。

この時、像強度のパワースペクトル(Wiener スペクトルとも言う)は、強度の自己相関関数(4−8)式と次の関係にある。

$$P(\mathbf{S})=\int\int \langle I(\mathbf{R}_1)\cdot I(\mathbf{R}_2)\rangle \exp[2\pi i\mathbf{s}\cdot(\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2)]\,d\mathbf{R}_1 d\mathbf{R}_2 \quad (4-12)$$

ただしI(**R**)は**R**の有限の範囲でのみ値をもち(4−12)式は発散することが無いものとする。

ここで次の仮定を設ける。

1, 物体の微視的構造が定常かつ等方的である。即ち

$$\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)=\rho_2(|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2|) \quad (4-13)$$

2, 微視的凹凸が光の波長より十分大きく、散乱光の位相の変化と振巾の分布が独立しているとみなせる。即ちϕの実部の分散が

$$\langle(\mathrm{Re}\,\phi)^2\rangle > \pi^2 \quad (4-14)$$

3, 雑音となる散乱中心が、巨視的振巾変化に比べて十分大きい。

2と3の仮定から、中心極限定理により、物体面透過直後の振巾の変動は、実部、虚部が平均値0、等分散が互いに独立な複素Gauss統計に従うことになる。その時、四次のモーメントは、モーメントの定理(Reed, 1962)によると

$$\rho_4(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4)=\rho_2(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)\cdot\rho_2(\mathbf{r}_3-\mathbf{r}_4)$$
$$+\rho_2(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_4)\cdot\rho_2(\mathbf{r}_2-\mathbf{r}_3) \quad (4-15)$$

と表わされる。従って(4−10)式は

$$\triangle\rho(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4)=\rho_2(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_4)\cdot\rho_2(\mathbf{r}_2-\mathbf{r}_3) \quad (4-16)$$

となる。(4−7)式に(4−14)式を代入したものと、(4−13)式を(4−4)式に代入したものととを比べて

$$\langle\triangle I(\mathbf{R}_1)\cdot\triangle I(\mathbf{R}_2)\rangle = |\langle J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)\rangle|^2 \quad (4-17)$$

を得る。

更に加えて

4, 微視的振巾透過率の相関長が十分小さい。

と仮定する。その場合、二次元のDirac δ関数を用いて

$$\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)=\int\rho_2(\mathbf{r})\,d\mathbf{r}\;\delta(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2) \quad (4-18)$$

と書けるから

$$<J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)> = \int \rho_2(\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \int K(\mathbf{R}_1; \mathbf{r})\, K^*(\mathbf{R}_2; \mathbf{r})\, Io(\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \quad (4-19)$$

$$<I(\mathbf{R})> = \int \rho_2(\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \int |K(\mathbf{R}; \mathbf{r})|^2\, Io(\mathbf{r})\, d\mathbf{r}$$

と表わせる。ただし

$$Io(\mathbf{r}) = |u_0(\mathbf{r})|^2 \quad (4-20)$$

は物体の巨視的強度分布、つまり雑音を含まない像の強度分布を示している。そして（4－17)、（4－17）式より

$$<\triangle I(\mathbf{R}_1) \cdot \triangle I(\mathbf{R}_2)> = \left| \int \rho_2(\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \int K(\mathbf{R}_1; \mathbf{r})\, K^*(\mathbf{R}_2; \mathbf{r})\, Io(\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \right|^2 \quad (4-21)$$

である。次に具体的に伝達関数の形を求めてみると、一枚のレンズ（焦点距離f）によりGauss像面へ等倍で結像する時の伝達関数は、レンズの収差を無視し、回折面にフィルター$f(\mathbf{s})$を挿入した場合

$$K(\mathbf{R}; \mathbf{r}) = \exp\left[ik\left(4f + \frac{|\mathbf{r}|^2 + |\mathbf{R}|^2}{4f}\right)\right] \int f(\mathbf{s}) \exp[-2\pi i (\mathbf{R} - \mathbf{r}) \cdot \mathbf{s}]\, d\mathbf{s} \quad (4-22)$$

となる（Goodman 1968)（4－22）式を（4－19）式に代入して

$$<J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)> = \exp\left(ik\frac{|\mathbf{R}_1|^2 - |\mathbf{R}_2|^2}{4f}\right)$$

$$\int [\int f(\mathbf{s}) \exp\{-2\pi i (\mathbf{R}_1 - \mathbf{r})\, \mathbf{s}\}\, d\mathbf{s} \int f^*(\mathbf{s}) \exp\{$$

$$\exp\{2\pi i (\mathbf{R}_2 - \mathbf{r}) \cdot \mathbf{s}\}\, d\mathbf{s}]\, Io(\mathbf{r})\, d\mathbf{r}$$

$$= \exp\left[ik\frac{|\mathbf{R}_1|^2 - |\mathbf{R}_2|^2}{4f}\right] \iiint Io(\mathbf{r})$$

$$\exp[2\pi i (\mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_2) \cdot \mathbf{r}]\, d\mathbf{r}$$

$$f(\mathbf{s}_1) \exp(-2\pi i \mathbf{R}_1 \cdot \mathbf{s}_1)\, f^*(\mathbf{s}_2) \exp(2\pi i \mathbf{R}_2 \cdot \mathbf{s}_2)$$

$$d\mathbf{s}_1 d\mathbf{s}_2$$

$$= \exp\left[ik\frac{|\mathbf{R}_1|^2 - |\mathbf{R}_2|^2}{4f}\right] \iint \tilde{I}_0(\mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_2)\, f(\mathbf{s}_1) f^*(\mathbf{s}_2)$$

$$\exp(-2\pi i \mathbf{R}_1 \cdot \mathbf{s}_1) \exp(2\pi i \mathbf{R}_2 \cdot \mathbf{s}_2)\, d\mathbf{s}_1 d\mathbf{s}_2$$

$\mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_2$を$\mathbf{s}$とおくと$\mathbf{s}_1 = \mathbf{s} + \mathbf{s}_2$で右辺の$\mathbf{s}_2$をあらためて$\mathbf{s}_1$とおけば

$$<J(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)> = \exp\left[ik\frac{|\mathbf{R}_1|^2 - |\mathbf{R}_2|^2}{4f}\right] \iint \tilde{I}_0(\mathbf{s}) f(\mathbf{s}+\mathbf{s}_1) f^*(\mathbf{s}_1)$$

$$\exp[-2\pi i\mathbf{R}_1\cdot(\mathbf{s}+\mathbf{s}_1)] \exp(2\pi i\mathbf{R}_2\cdot\mathbf{s}_1)\, d\mathbf{s}_1 d\mathbf{s}$$

$$= \exp\left[ik\frac{|\mathbf{R}_1|^2 - |\mathbf{R}_2|^2}{4f}\right] \int \tilde{I}_0(\mathbf{s}) \exp(-2\pi i\mathbf{R}_1\cdot\mathbf{s})$$

$$\iint f^*(\mathbf{s}_1) f(\mathbf{s}+\mathbf{s}_1) \exp[-2\pi i(\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2)\cdot\mathbf{s}_1]\, d\mathbf{s}_1 d\mathbf{s} \qquad (4-23)$$

ここに

$$\tilde{I}o(\mathbf{s}) = \int Io(\mathbf{s}) \exp(2\pi i\mathbf{s}\cdot\mathbf{r})\, d\mathbf{r} \qquad (4-24)$$

は$Io(\mathbf{r})$のフーリェ変換である。そこで（4－7)、(4－23)式から（4－12）式のパワースペクトル

$$P(\mathbf{s}) = \left|\tilde{I}o(\mathbf{s}) \iint f^*(\mathbf{s}_1) f(\mathbf{s}+\mathbf{s}_1)\, d\mathbf{s}_1\right|^2$$

$$+ \int |\tilde{I}o(\mathbf{s}_1)|^2 \iint f(\mathbf{s}_2) f^*(\mathbf{s}+\mathbf{s}_2) f^*(\mathbf{s}_1+\mathbf{s}_2) f(\mathbf{s}+\mathbf{s}_1+\mathbf{s}_2)$$

$$d\mathbf{s}_2 d\mathbf{s}_1 \qquad (4-25)$$

となる。この式の第一項は雑音の無い場合の処理像のパワースペクトル、第二項は雑音によるゆらぎのパワースペクトルを示している。次節で（4－25）式を用いて疑似格子像の特性を調べる。

4－3　疑似格子像のパワースペクトルの計算

この節では、有限の大きさを持つ試料フィルムを完全なコヒーレント照明下でノイズフィルターグレーティングで処理した場合に、試料中に含まれる雑音が処理像に与える影響を像のパワースペクトルを計算して調べる。簡単のためすべて一次元で議論するが、二次元への拡張も容易である。その時（4－25）におけるフィルター関数は

$$f(s) = \sum_{n=-N}^{N} O(s) * \delta(s-ng) \qquad (4-26)$$

ただし

$$O(s) = \begin{cases} 1 & \text{when } |s| < d \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \qquad (4-27)$$

と表わされる。ここでdはノイズフィルターグレーティングの各穴の半径、gは穴の周期を示す。（4－25）式は$f(s)$が実関数であるから

$$P(s)=|\tilde{I}o(s)|^2\int f(s_1)f(s+s_1)ds_1$$
$$+\int|\tilde{I}o(s_1)|^2\int f(s_2)f(s_1+s_2)f(s+s_2)f(s+s_1+s_2)$$
$$ds_2ds_1 \qquad (4-28)$$

となる。

4－3－1 計算の方法

（4－28）式に従ってパワースペクトルを計算するわけであるが、フィルター関数f(s)が不連続関数で解析的に表わせず、f(s)の値は論理ＩＦ文を使って定めなくてはならない。しかしまた、f(s)は1か0のどちらかの値しかとらないので計算は少し簡単になる。

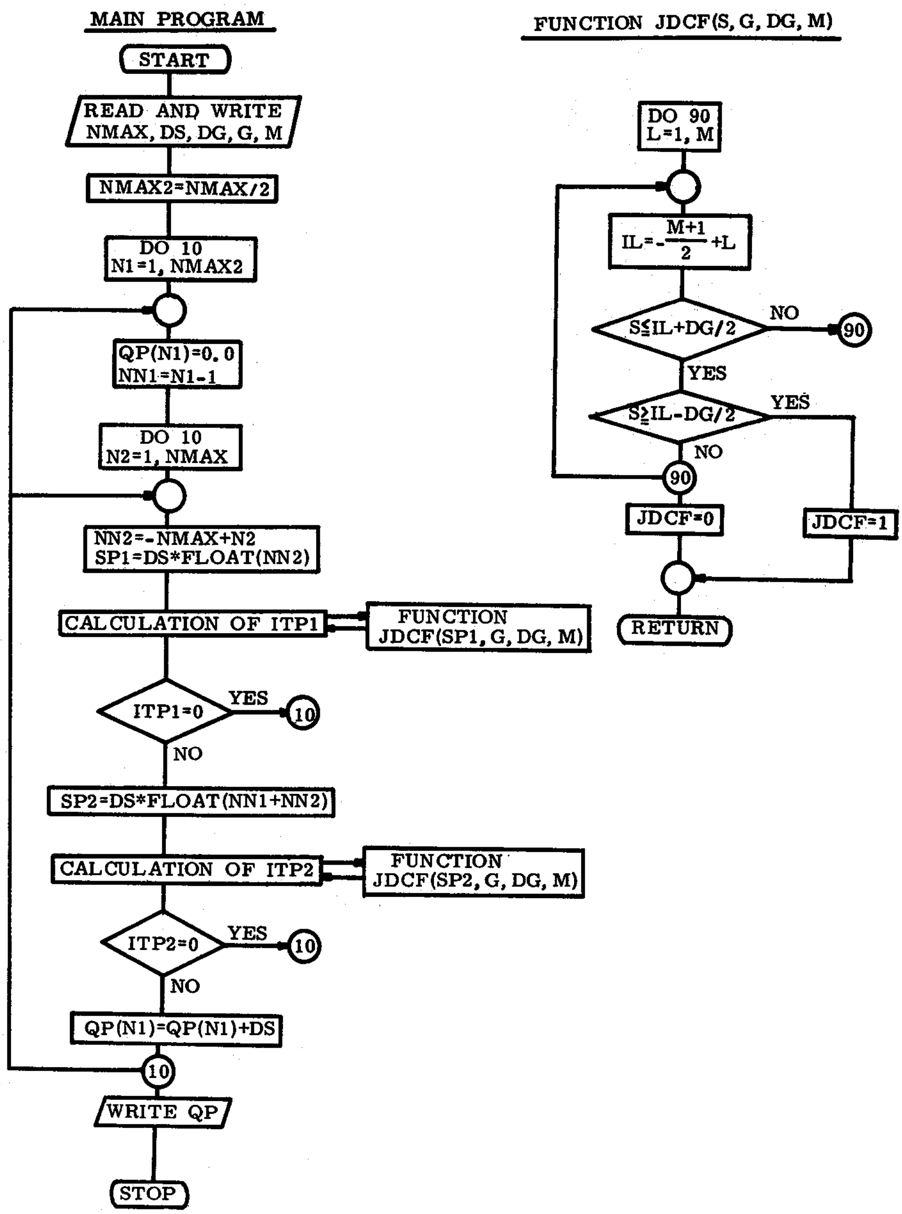
$\int f(s_1)\ f(s+s_1)\ ds_1$の部分の計算手順のみをFig. 4－2に示す。

4－3－2 試料がランダムな雑音のみから成る場合

この場合（4－20）式で表わされるIo（r）は一次元のスリットの像であるから、そのFourier変換は定係数を無視して

$$\tilde{I}o(s)=\frac{\sin\pi Kas}{\pi s} \qquad (4-29)$$

と表わせる。ここでKは自然数、aは（4－26）式におけるgの逆数である。スリットが巾の狭い場合及び広い場合の例として、それぞれK＝10, K＝100として計算を行った。フィルターの穴数はすべて5個で（4－26）式ではN＝2である。狭い視野について直径が0.8g、0.5g、0.25gの穴をもつフィルターグレーティングで処理した像のパワースペクトルをFig. 4－3に示す。各P(s)はP(0)＝1となるように規格化されている。また、Fig. 4－4には広視野の場合のパワースペクトルを示す。視野が狭い場合には、視野の外形の効果が（4－28）式の第一項により現われ。s＝0.1gの整数倍の位置に谷が見られる。処理には、s＝ −2g, −g, 0, g, 2gを中心とする5つの穴を持ったフィルターが使われたが、得られた像のスペクトルにはs＝-4g, ……4gに中心をもつ9つのピークが現われている。そして中心ピークを除く各ピークは穴の直径の2倍の底辺を持つ二等辺三角形になっている。また2d＝0.8gの場合には、各二等辺三角形が重なりあっている。これらの特徴は、Enloe（1967）により求められた単純な有限開口の場合、即ち（4－27）式で表わされるスリットをフィルターとして用いた場合の計算結果からの類推と矛盾しない。



Fig。4－2

ノイズフィルター・グレーティングを用いた時の
フィルター関数の自己相関関数計算の手順

NMAX：フィルター上のサンプル数　DS：フィルター上のサンプル点の間隔

DG　：フィルターの穴の直径　G：フィルターの穴の間隔

M　：フィルターの穴の数　ITP1$=f(s_1)$

ITP2$=f(s+s_1)$　QP$=\int f(s_1)\,f(s+s_1)\,ds_1$

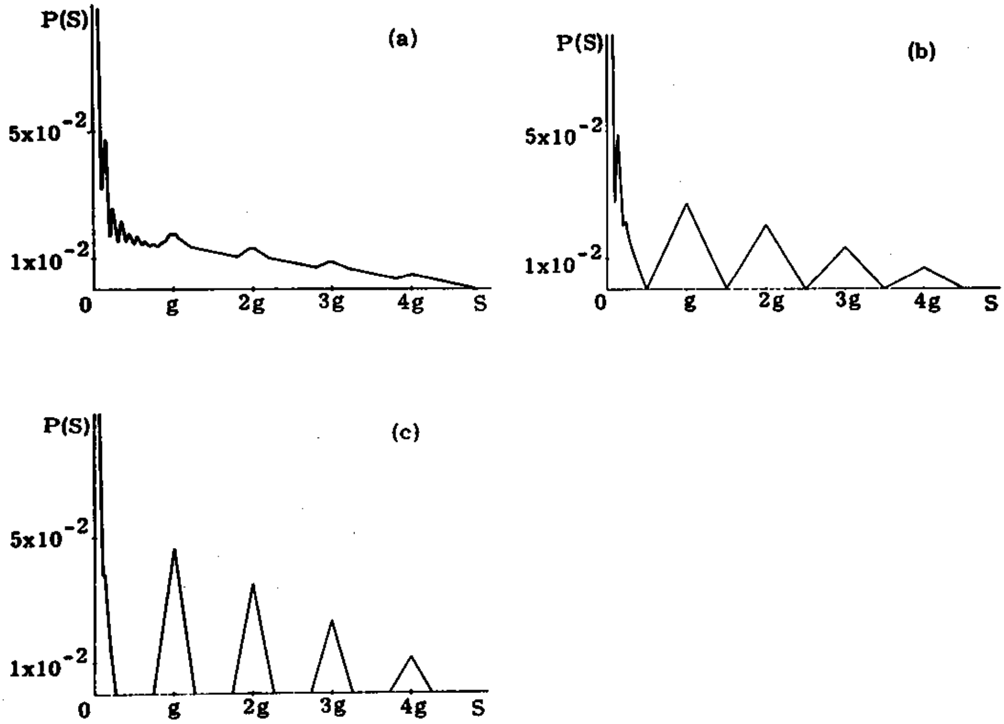


Fig.4−3　疑似格子像のパワースペクトルの計算

フィルターの穴は

(a) 0.8 g　(b) 0.5 g　(c) 0.25 g

K＝10,　N＝2

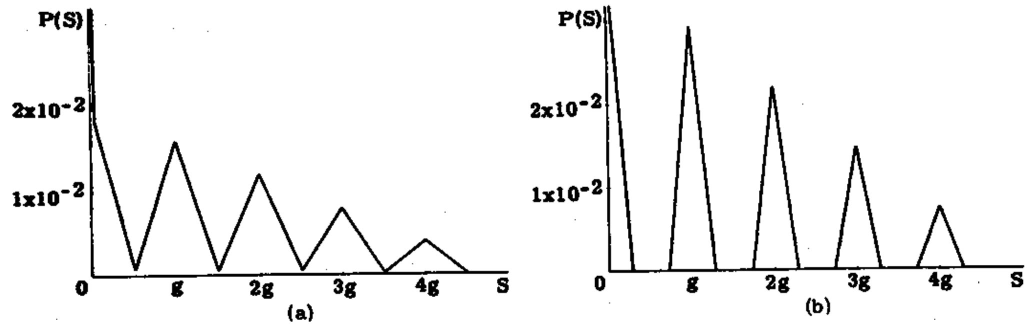


Fig.4−4　視野を $100/g$ に拡げた場合の疑似格子像のパワースペクトル

フィルターの穴径は

(a) 0.5 g　(b) 0.25 g　K＝100　N＝2

また、Fig.4－3 (a)、(b) に比べて、用いたフィルターの穴径が小さいにもかかわらず(c)の場合のピークが高いのは、それぞれの場合についてピークはP(0)で規格化されていて、(a)、(b)の場合のP(0)は(c)のそれよりも大きなためである。同じことは、Fig.4－4のピークがFig.4－3の対応するピークに比べて低い理由としても言える。規格化されていないピークの高さは穴の直径に比例している。

4－3－3　周期物体の像に雑音がのっている試料の場合

Fig.4－3、4－4から試料中のランダム雑音のみで疑似格子像が現われることを示した。次に、より実際的な場合として、ランダム雑音を含む格子像の処理を考える。

Fig.4－5は試料に含まれる格子の周期aが $a=1/g$、即ち回折斑点の周期とフィルターグレーティングの穴の周期とが一致している場合の処理像の計算されたパワースペクトラムである。この計算では

$$\tilde{I}o(s)=e^{-s}\frac{\sin(\pi Kas)}{\sin(\pi as)} \qquad (4-30)$$

としている。グレーティングの穴の直径は0.8g(a)と0.25g(b)である。2d＝0.25gの時には雑音のみの場合のFig.4－3(c)と比べてgの周期の構造が約$\sqrt{3}$倍高いコントラストを示すことがわかる。また、$a=2/g$ 即ち回折斑点がグレーティングの周期の $1/2$ の周期で現われる場合のパワースペクトラムをFig.4－6に示す。穴の大きさはFig.4－5の場合と同じである。

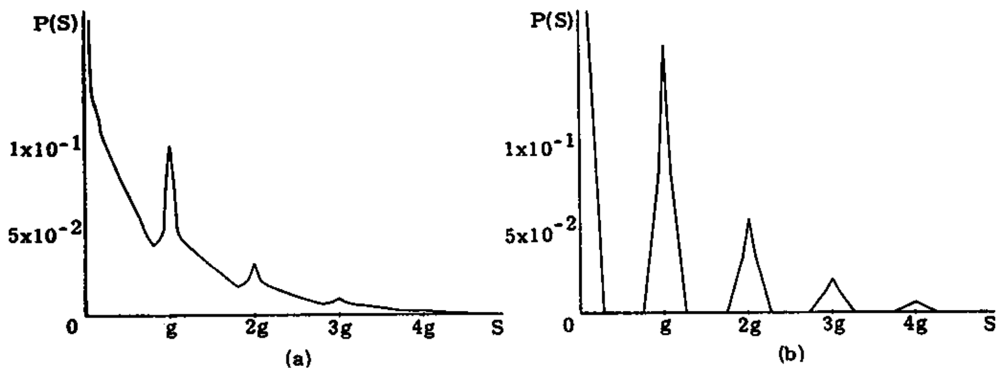
Fig.4－6(a)の穴径が0.8gの場合には、フィルターグレーティングの穴と穴の中間にある回折波 $g/2$、$3g/2$、$5g/2$、$7g/2$ も像面で結像に寄与している。つまり、フィルターにより除去されていないことがわかる。これは山口（1974）による周期像の単純開口での処理の計算からも類推される。

4－4　実験結果と考察

4－4－1　ランダム散乱体の処理像

ランダム雑音しか含まない試料をグレーティングで処理することにより実験的に得られた疑似格子像は既にFig.3—12に示した。この節では、疑似格子像の特性を前節で理論的に調べた結果と比較する。試料としては半透明テープ（スコッチテープ）及びすりガラスが用いられた。

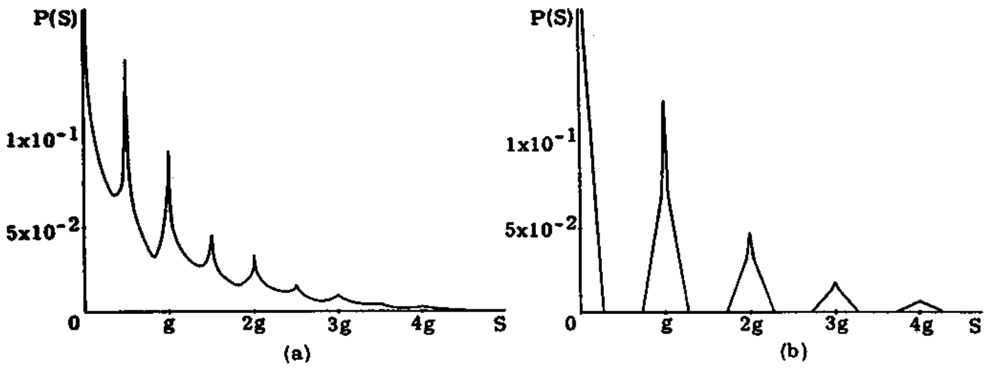
Fig.4－7(a)にグレーティングを入れない場合の半透明テープの像を示す。通常よく知られているスペックルが全面に現われている。



Ｆｉｇ．４－５　雑音を含む周期物体の処理像のパワ－スペクトル

Ｋ＝１０、　Ｎ＝２、　$a = {}^{1}\!/_{g}$

フィルタ－の直径の穴は (a) 0.8 g　(b) 0.25 g

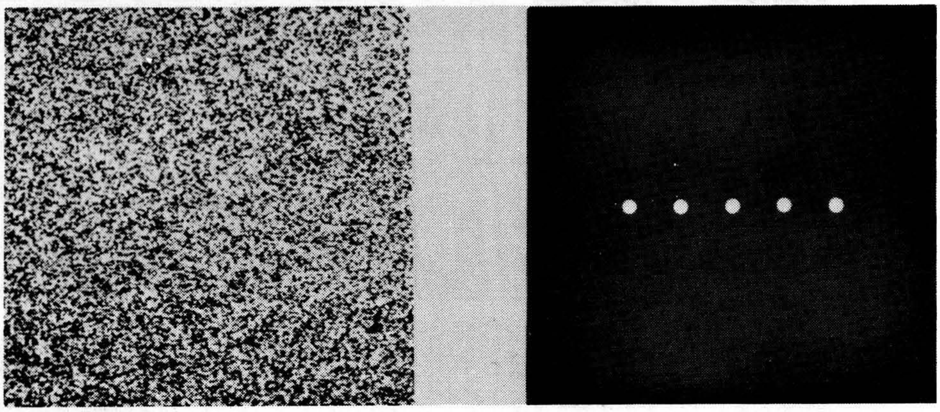


Ｆｉｇ．４－６　雑音を含む周期物体の処理像のパワ－スペクトル

Ｋ＝１０、　Ｎ＝２、　$a = {}^{2}\!/_{g}$

フィルタ－の穴の直径は (a) 0.8 g　(b) 0.25 g

その時、回折面内にＦｉｇ．４－７(b)にその一例を示すようなフィルタ－グレ－ティングを入れた時に得られた疑似格子像とその光回折像（パワ－スペクトル）をＦｉｇ．４－８に示す。Ｆｉｇ．４－８の(a)、(b)、(c)はそれぞれＦｉｇ．４－３の(a)、(b)、(c)に示した計算結果に相当する。計算から予想された通り、処理像には疑似格子像が明瞭に現われており、それらは、フィルタ－が二次（５穴）までであったにもかかわらず、四次までのスペクトルから成り立っていることが光回折像からわかる。そして、Ｆｉｇ．４－８(a)の光回折像は連続スペクトルの中に既に小さなピ－クが現われているのもＦｉｇ．４－３(a)と同様である。また光回折像が計算結果のように滑らかでないのは、平均化操作を



(a)　　　　　　　　　　　　　　　　(b)

Fig. 4－7　(a)　ランダム散乱体の像と
　　　　　　(b)　フィルターグレーティング

行っていないためで、視野が十分広ければ、光回折を行う際、視野を微動することにより滑らかな回折像が得られるであろう。疑似格子像は二次元フィルターグレーティングを用いるとより明瞭になる。

拡散板（スリガラス）を試料とし、前章Figs. 3－12、3－14　で用いられたものと同じフィルターグレーティングにより処理して得られた像をFig. 4－9に示す。図の(f)ではFig. 3－14(f)と一見よく似た模様が得られていることが注目を要する。試料としてFig. 3－14(a)のような結晶格子の電子顕微鏡像が用いられた時と、Fig. 4－7(a)や4－9(a)のようなランダム散乱体が用いられた時とでは、フィルターの各々の穴を通る光の強度が異なるため、全く同じ処理像は得られないが、穴径を小さくして、前章で示した平均化を進めていくと、同じフィルターを用いているので、解像度の等しい、一見よく似た幾何学模様が得られる。ただし、Figs. 3－12、4－9の結果はともにFig. 3－8(b)に示したフィルターの光回折像とは全く異なることがわかる。

4－4－2　金格子像中に含まれる雑音による像

金格子中に含まれるランダム雑音による疑似格子像をFig. 4—10に示す。図(c)は(a)の格子像と直径0.075gの穴を持つフィルターにより得られた像でフィルターを正しく調整してある。(d)は同じ格子像とフィルターグレーティングを用いているが、グレーティングを光軸の周わりに約35度回転させて、(b)で見られる試料に含まれた周期構造による回折波をできるだけ通さないように調節して得られた像である。

(a)

(b)

(c)

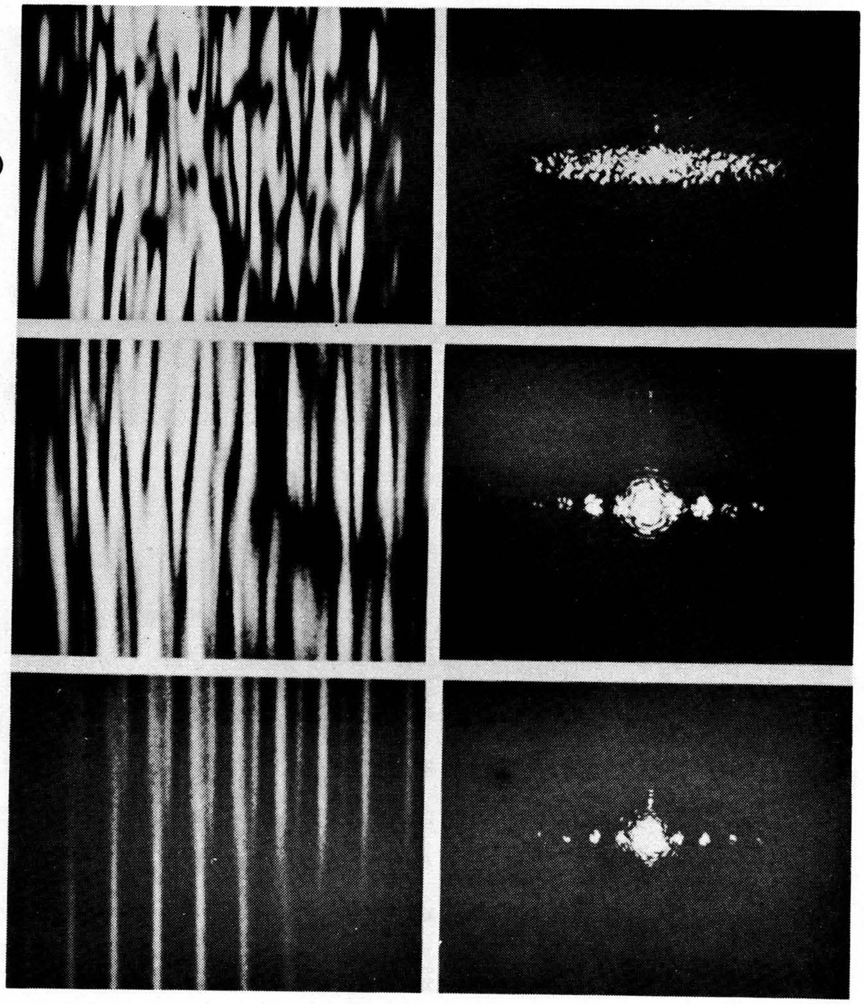


Fig. 4－8　ランダム散乱体の処理
Fig. 4－7(a)の散乱体を(b)のフィルターグレーティングで処理したもの
(a) 0.8 g$^{\phi}$ (b) 0.5 g$^{\phi}$ (c) 0.25 g$^{\phi}$ の穴を持つ一次元グレーティングで得られた疑似格子像とそのパワースペクトル

(a)に含まれる雑音は半透明テープほど強くは光を散乱しないので、コントラストはFig. 4－9に比べて少し低いが、やはり格子状の像が得られている。(c)、(d)両図の格子縞の傾きの差がフィルターグレーティングの回転角に相当する。(b)の各回折斑点から伸びている副極大がフィルターを透過して、(d)の格子状の像の形成に寄与していることも考えられる。しかし、(c)からもわかるように、

視野の一辺は格子約7列分に相当し、副極大の強度は最大で主極大の約5%であり、中心斑点以外については回折像にも記録されていない。従って、(d)の像は大部分が(a)に含まれるランダム雑音による疑似格子像であろうと考えられる。(d)図の格子像は(c)のそれとコントラストに大差はあるが、単独では真疑を判別し難く、格子像の処理においては取り違えることのないように、十分な注意が払われるべきである。

(a) (d) (b) (e) (c) (f)

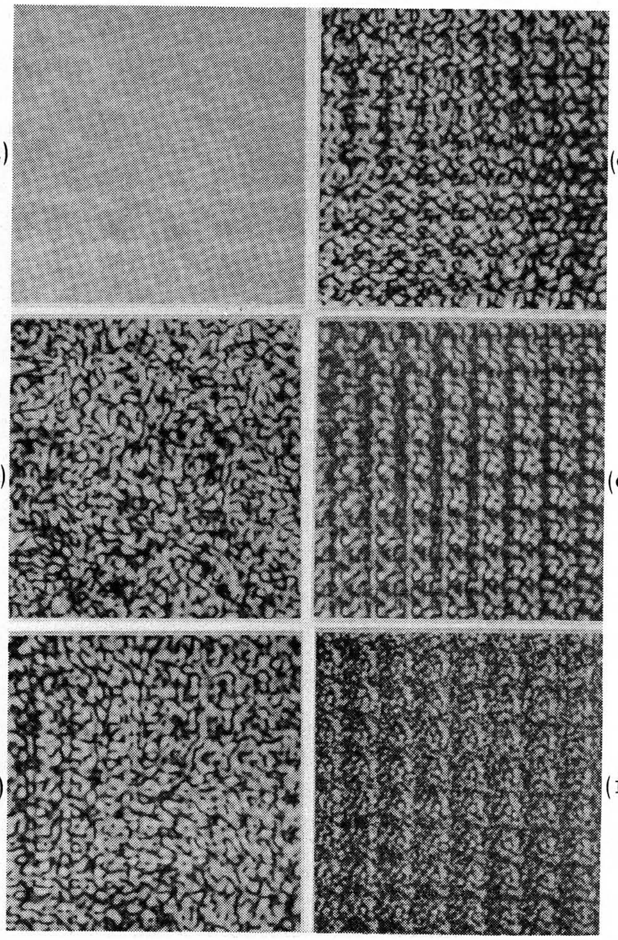


Fig. 4－9　二次元グレーティングで得られた疑似格子像
(a) グレーティングなし　(d) $\phi = 0.25$ g
(b) $\phi = 0.8$ g　(e) $\phi = 0.1$ g
(c) $\phi = 0.5$ g　(f) $\phi = 0.075$ g

4－5　結　　　　語

この章では、前章において結晶格子像のノイズフィルターグレーティングによる処理のモデル実験の際に観察された疑似格子像即ちランダム雑音とグレーティングによるコントラスト像について検討した。

試料に含まれる雑音をランダム散乱体とみなし、スペックルの理論を用いて、疑似格子像のパワースペクトラムが求められた。そしてその結果は、典型的なランダム散乱体を試料とした実験の結果とよく一致した。

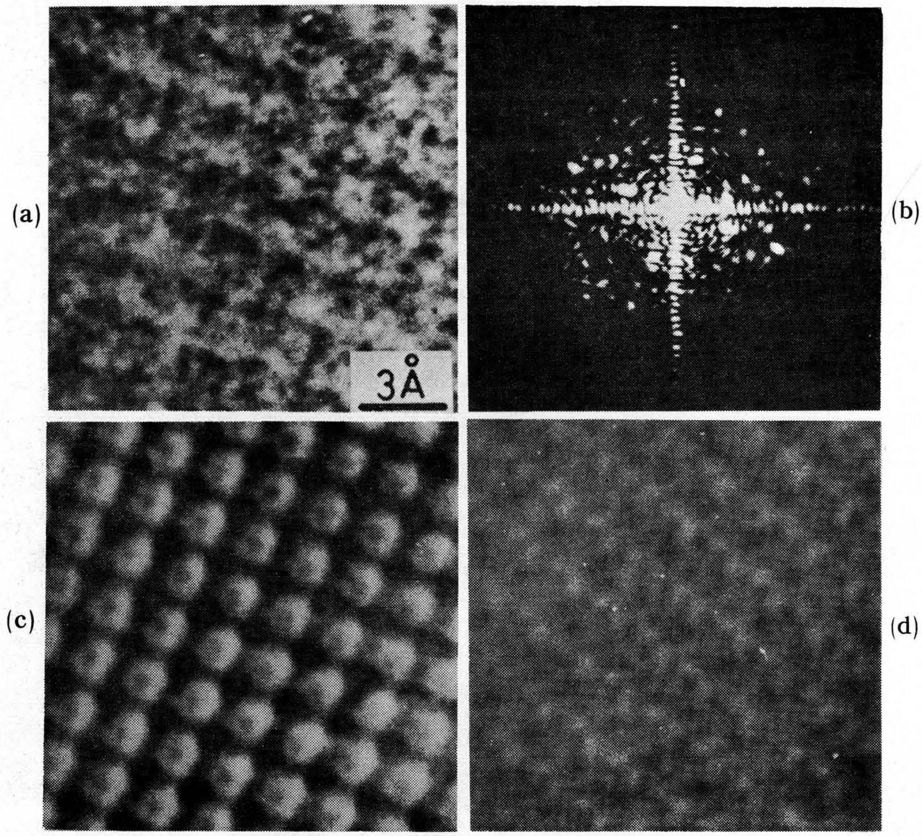


Fig. 4—10 金格子像中に含まれているランダム雑音による
疑似格子像
(a) 被処理像
(b) (a) の光回折像
(c) 正しくフィルターグレーティングを挿入した時
の処理像
(d) フィルターを光軸のまわりに35°回転させてで
きた疑似格子像

また理論計算では、格子像が雑音に埋もれた場合の処理像のパワースペクトルも同上の考えのもとで求められ、フィルターグレーティングの穴の中心から半径の2倍以内にあるスペクトルを持つ構造は十分に除去され得ないことが示された。そして最後に、金の結晶格子像中に含まれるランダム

雑音で作られた疑似格子像が正しく処理された格子と比較され、両者のコントラストには大きな差があること、しかしながら得られた疑似格子像は単独では真の情報と区別がつき難く、格子像の処理に際して十分な注意を要すること等を示された。

第５章　金格子像の最適撮像条件

５－１　緒　　言

第３章では、一度記録された電顕像のＳＮ比向上を試みたが、このようにして得られた格子像は既に述べたように、電子レンズの球面収差の影響を強くうけている。従って、結晶下面での電子波の強度分布を再現するためには、無収差の電子レンズで結像するか、画像処理により収差の補正を行なわねばならない。後者には、既に試料からの回折波の強度が透過波のそれに比べて十分小さな場合についての試みがあることを述べた。前者に関しては、厳密な意味で無収差レンズを実現することは、現在の電子顕微鏡のしくみでは不可能であるが、伝達関数の改善のため、電子顕微鏡の対物レンズの後焦点面上に位相板を入れたり（Tochigi et al. 1970，Thon and Willasch 1972)、回折波を非対称に片側だけ取り入れるサイドバンドホログラム（Downing and Siegel 1975）などの試みもある。この章では、焦点の調節により、できるだけ球面収差の影響の少ない状態で、格子像を撮影する方式について述べる。

５－２　Scherzer フォーカスとアベレーションフリーフォーカス

単位胞の比較的大きな、例えばNb_2O_5―WO_3系化合物等の場合には、伝達関数の虚数部が、かなり広い低周波数領域で一定となる、Scherzer フォーカスつまり（1―45）式で示した$\triangle f=\sqrt{C_s \lambda}$付近で、伝達関数の振動している高周波域を除くような絞りを用いた撮影が行なわれている。この様な焦点条件は、オプティマム・フォーカスと呼ばれる事もある。

単位胞の小さな一般の結晶ではScherzer フォーカスは意味を持たなくなる。動力学的計算によると、完全レンズにより、多くの回折波をとり入れて作られたFig. 3－13のような金の格子像には、微細構造が現われるはずである（Hashimoto, Endoh, & Kumao 1975。）だが、金結晶の格子定数は4.07Åと小さく、その最低次200回折波ですら、既にオプティマム・フォーカスにおける伝達関数の第一零点よりも更に高周波側にある。従って、電子顕微鏡の分解能が更に高くなり、より球面収差の小さなレンズが作られなければ、金の格子像中の微細構造までを撮影することはできない。

しかしながら、もし試料が二次元的に十分大きな完全結晶であるならば、像面の各点において各回折波の位相は、焦点外れ量$\triangle f$の関数として（０，2π）の間で振動している。従って適当な$\triangle f$を選べば透過波に対する回折波の位相のズレを2πの整数倍にしてしまう事が可能である。もしこの様にしてすべての回折波に対して位相のズレを2πの整数倍にする様な焦点外れの条件が存在すれば、その時、有限の収差をもったレンズは、その特定の結晶に対してあたかも無収差レンズの如く振舞う

はずである(Hashimoto 1976, Hashimoto et al. 1977)。一例として、Cs = 0.75 mmのレンズを持つ100kV電子顕微鏡の場合$\triangle f$ = 553 Åとしたときの伝達関数を金の結晶(a = 4.0786 Å)からの回折波の位置と共にFig. 5−1に示す。図の(a)と(b)より伝達関数の実部が620回折波に対してまで大きく虚部が十分小さいことから一次波に対して位相のズレがほとんど無い事がわかる。次にその簡単な計算方法について述べる。

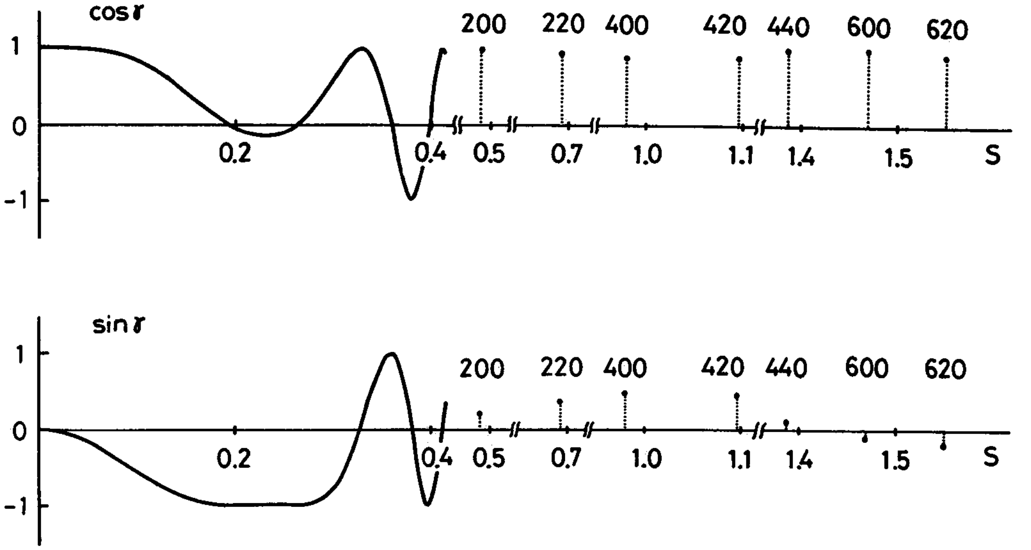


Fig. 5−1　Au(001)格子像に対するアベレーションフリーフォーカス$\triangle f$ = 553 Åでの伝達関数の実部と虚部

(Cs = 0.75mm,　100kV)

5−3　a. f. f. 条件の導出

a. f. f. 条件とは、各格子面からの回折角 α_{hkl} ($= 2\theta_B$) に対して cos γ もしくは sin γ が大きな値を示す$\triangle f$の範囲である。即ち$\triangle f$の変化に応じて、cos γ . sin γ はそれぞれの回折波に対して+1〜−1の範囲で周期的にかわるが、これが極大値を示す条件をみつけることである。次に cos γ の大きな$\triangle f$の範囲を解析的に求める方法について述べる。

cos γ ≧ a　(a > 0) なる$\triangle f$の範囲を格子間隔dの面について求める。$\theta_c \pi = \mathrm{Cos}^{-1}\, a$ とおくと、(1−17)式より求める$\triangle f$の範囲は、

$$2m\pi-\theta_c\pi\leqq\frac{\pi}{2}\{Cs\lambda^3s^4-2\Delta f\lambda s^2\}\leqq 2m\pi+\theta_c\pi \qquad (5-1)$$

で表わされる。ただしmは整数。ここで$d=1/s$を用いると、

$$2m\pi-\theta_c\pi\leqq 2\pi\{\frac{C_s\lambda^3}{4d^4}-\frac{\Delta f\lambda}{2}\frac{1}{d^2}\}\leqq 2m\pi+\theta_c\pi \qquad (5-2)$$

となる。更にGauss記号を用いた$M=[\frac{Cs\lambda^3}{4}\frac{1}{d^4}]$を使うと

$$2n\pi-\theta_c\pi\leqq 2\pi\{\frac{C_s\lambda^3}{4}\frac{1}{d^4}-M-\frac{\Delta f\lambda}{2}\frac{1}{d^2}\}\leqq 2n\pi+\theta_c\pi \qquad (5-3)$$

と表わせる。ここでnも整数である。従って、

$$n-\frac{\theta_c}{2}\leqq\frac{C_s\lambda^3}{4}\frac{1}{d^4}-M-\frac{\lambda}{2d^2}\Delta f\leqq n+\frac{\theta_c}{2} \qquad (5-4)$$

となり　n=−n　と置き換えると、

$$(\frac{C_s\lambda^3}{4d^4}-M-\frac{\theta_c}{2})\frac{2d^2}{\lambda}+\frac{2d^2}{\lambda}n\leqq\Delta f\leqq(\frac{C_s\lambda^3}{4d^4}-M+\frac{\theta_c}{2})\frac{2d^2}{\lambda}+\frac{2d^2}{\lambda}n \qquad (5-5)$$

と表わせる。(5−5)式より$\cos\gamma\geqq a$なるΔfの範囲は$2\theta_c d^2/\lambda$の巾、$2d^2/\lambda$の周期をもって現われる事がわかる。

例えば、金の格子定数を4.07864Åとすると(5−5)式は、$d_{200}=2.03932$Åに対して、$Cs=0.75$㎜，$\lambda=0.03701$Å，$a=0.8$とすると、

$$88.1+224.08n\leqq\Delta f\leqq 134.0+224.08n \qquad (5-6)$$

$$(n=0,\pm1,\pm2,\cdots\cdots)$$

となり、巾45.9Å 周期224.08Åで $\cos\gamma\geqq 0.8$なる焦点外れの部分がある事がわかる。

Fig. 5−2 に上の場合の200回折波から820回折波まで金の〈001〉軸に平行に電子線を入射した時に現われる10種類の回折波に対する$|\cos\gamma|\geqq 0.8$なる領域が示されている。

$\Delta f=104$Å付近がa.f.f条件をほぼ満足している事がわかる。そして

$$d^2_{hkl}=\frac{d^2_{200}}{j} \qquad (5-7)$$

ただし、$j=(h^2+k^2+\ell^2)/2$　でjは金結晶のこの方位では常に整数となり、220以上の高次回折波に対する周期は、(5−5)式より常に200回折波の周期の整数分の1になっている。従って全体の周期は200回折波の周期と一致し、a.f.f.は$\Delta f=104$Åのつぎに、328Å、552Å、776Å………と存在する。

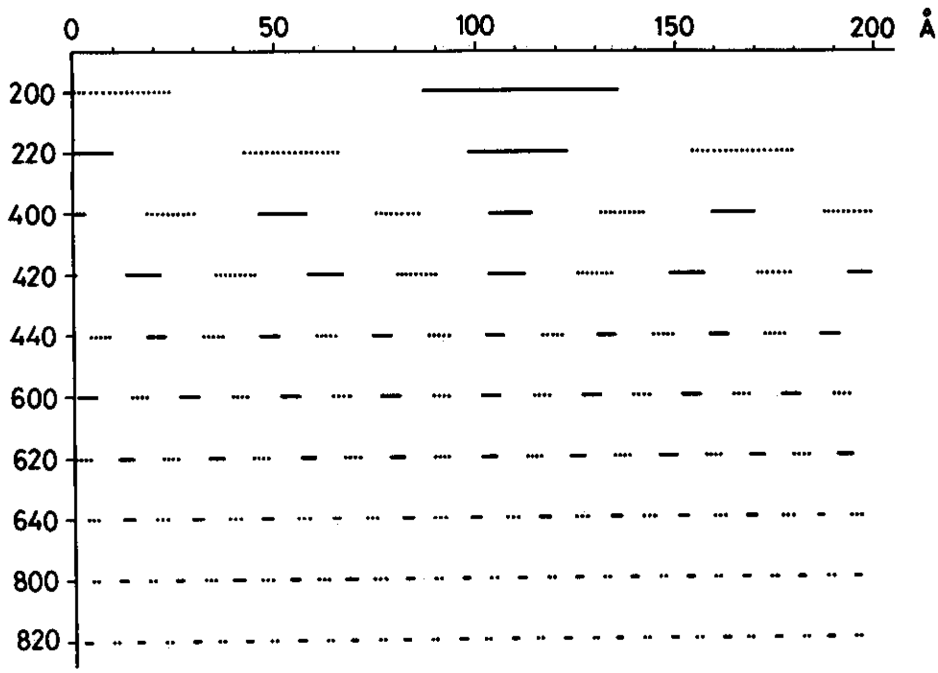


Fig. 5—2　Au(001)からの各回折波に対し $|\cos\gamma| \geqq 0.8$ となる Δf の範囲

実線と点線はそれぞれ $\cos\gamma$ の正負を表わす。

(Cs＝0.75mm,　100kV)

5－4　考　　　察

5－5式により計算されたa.f.f.条件に、試料結晶の格子定数、電子顕微鏡の球面収差そして電子の波長等の測定精度が及ぼす影響を評価する。（5－5）式におけるΔfの下限を

$$\varphi(Cs,d,\lambda)=\frac{C_s\lambda^2}{2d^2}+\left(n-\frac{\theta_c}{2}\right)\frac{2d^2}{\lambda} \qquad (5-8)$$

と置いて、右辺を (Cs_0, d_0, λ_0) の近傍でTaylor展開すると、

$Cs=Cs_0+\Delta Cs$，$d=d_0+\Delta d$，$\lambda=\lambda_0+\Delta\lambda$として

$$\varphi(Cs,d,\lambda)=\varphi(Cs_0,d_0,\lambda_0)+\left(\frac{\lambda_0^2}{2d_0^2}\right)\Delta Cs+\left\{-\frac{Cs_0\lambda_0^2}{d_0^3}+\left(n-\frac{\theta_c}{2}\right)\frac{4d_0}{\lambda_0}\right\}\Delta d$$

$$+\left\{\frac{Cs_0\lambda_0}{d_0^2}-\left(n-\frac{\theta_c}{2}\right)\frac{2d_0^2}{\lambda_0^2}\right\}\Delta\lambda+Om(\Delta Cs,\Delta d,\Delta\lambda) \qquad (5-9)$$

ただし、$Om(\Delta Cs, \Delta d, \Delta\lambda)$は$\Delta Cs$，$\Delta d$，$\Delta\lambda$の2次以上の項を表わす。

今、5－3節での計算条件に従い、$Cs_0=0.75$㎜、$d_0=2.03932$Å、$\lambda_0=0.03701$Å　$\cos(\theta c\pi)=0.8$，$n=0$と置くと

$$|\varphi(Cs,d,\lambda)-\varphi(Cs_0,d_0,\lambda_0)|\lessgtr(1.647\times10^{-4})\Delta Cs$$

$$+(1.234\times10^3)\Delta d+(6.737\times10^4)\Delta\lambda \qquad (5-10)$$

となる。Cs，d，λの精度を正確に求める事はしないが、仮に$\Delta Cs\sim10^4$Å、$\Delta d\sim10^{-3}$Å　$\Delta\lambda\sim10^{-6}$Å とすると（5－10）式から

$$\varphi(Cs,d,\lambda)\approx88.1\pm3.0\text{Å} \qquad (5-11)$$

となる。6.0Åというのは$\cos\gamma\geqq0.8$とした時の440回折波に対するΔfの巾にほぼ匹敵する。

5－5　結　　　語

本章では、結晶格子像を撮影するための最適焦点条件として、アベレーションフリーフォーカス（a.f.f.）を提案し、その解析的求め方を示した。そして一例として金（001）面の格子像を撮影する場合のa.f.f.条件を示した。ただし、この条件は結晶の格子定数、対物レンズの球面収差係数、電子線の波長に依存し、一定の球面収差係数のレンズを持つ、一定の加速電圧の電子顕微鏡でどのような結晶に対しても存在する訳ではない。任意の結晶の格子像をa．f．f条件で撮影するためには球面収差係数を連続的に変えられるような装置が必要である。この点は、電子顕微鏡の今後の装置的な課題であろう。

第6章　総　括

本論文では、高分解能電子顕微鏡により得られた結晶格子像の光学的画像情報処理について述べた。要旨を章ごとにまとめると、

第1章では、格子像の情報処理のための基礎として、

(1) 透過型電子顕微鏡の構造と結像方法について述べ、

(2) 格子像のコントラストに関する電子線の回折理論と結像理論を紹介した。そして

(3) 通常の制限視野電子回折法における制限領域の限界を越えるため試みられているいくつかの微小制限視野回折法を紹介して、高分解能電子顕微鏡像と光回折の組み合わせが、試料のドリフト・汚染・破損が少ないという点において有利であることを述べ、

(4) 現在までに行なわれている電子顕微鏡像の光学的画像修正に関する研究を紹介した。

第2章では、極微制限視野回折法としての結晶格子像の光回折について行った研究の結果を述べた。

(1) まず、試料が弱い位相物体である場合と、十分に大きな完全結晶である場合についての光回折強度を、焦点外れと球面収差のみを考慮した結像理論に基き導出し、電子回折像とかなり良く対応することを見出した。また、

(2) 幾何光学的考察から、電磁レンズの収差の影響を抑え、制限領域を十分狭くするためには、結像に寄与する電子線の最小錯乱円を像面に持ってくる必要があり、$\Delta f = (3/4) C_s \alpha_m^2$で格子像が撮影されるのが最適であることを指摘し、それからずれた場合についても、有効制限領域の下限を求めた。そして

(3) 理論的に予想した通り、光回折像が結晶の厚さや、格子像撮影時の焦点外れの量によらず、一定の位置に回折斑点が現われること、こうして求められた格子面の間隔はX線回折の結果と2.8%以内、面間角度は 2°以内の精度で一致することを実験的に確かめた。その応用例として、

(4) 直径約80Åの領域に含まれる2つの結晶粒を回折領域を約30Åに絞ることにより区別し、それぞれの結晶方位を決定し、

(5) 単位格子の投影像から、連続的な構造因子の測定を行った。そしてその測定値はX線回折のデータを用い、球面収差を考慮した理論計算と比較して、$\Delta f = 1210$ Åの時によく一致することを示した。

(6) 最後に、転位を含む格子像に応用して、芯の付近の格子面の歪みを、直径約30Åの範囲の平均として求め、回折斑点の分離およびズレからすべり面の決定が容易であることを示した。

第３章では、ノイズフィルターグレーティングによる格子像の処理に関して述べた。

(1) 処理が単に雑音の濾過だけではなく、格子と同じ周期を持ち$\frac{2J_1(r)}{r}$という重みをもった重ね合わせであることを数式的に明らかにし、その重ね合わせの重みが平均化される視野内で０.５以上になるようにフィルターの最適穴径を２A≈０.３５g/cと定めた。そして、

(2) 本実験のため特に試作した試料ホルダーとフィルターホルダー及び処理光学系について述べ、

(3) 格子像のモデルにより処理をシミュレートして、処理の機構が重ね合わせであること、理論的に求めた穴径が最適であることを確認した。更に

(4) ランダム雑音のみの像を処理した時、像面に疑似格子像が現われることを見出し、処理には十分な注意が必要であることを指摘した。次に

(5) 金の格子像にノイズ・フィルター・グレーティングを応用し、微細構造を含む良質の像を得ることができた。

(6) 更にその金の格子像の処理では、色収差の補正を試み、一応の成果が得られた。

第４章では、前章で見出された疑似格子像を一種のスペックルと見なして、

(1) ランダム散乱体と一次元のグレーティングを用いて得られる像のパワースペクトルを計算し、像にはグレーティングを通る波の２倍の空間周波数を持つ構造までが含まれていること、そしてそのスペクトル中の各ピークはグレーティングの穴径の２倍の底をもつ二等辺三角形になっていることなどを予想した。また、周期構造とランダム雑音が混在する場合についての計算も行った。そして

(2) 半透明テープと一列に穴の並んだグレーティングを用いた実験の結果を計算結果と比較し、よい一致を見た。

(3) 最後に金の格子像中に含まれるランダム雑音による疑似格子像を得、正しく処理した格子像との比較を行った。

第５章では小さな単位胞の結晶を電子顕微鏡で観察するには、Ｓｃｈｅｒｚｅｒのオプティマムフォーカス条件は無効であり、我々が新たに提案したａ.f.f.条件をもってすれば、有限の球面収差をもつレンズでもあたかも無収差レンズのごとく用いることが可能であることを示し、その条件の計算方法を述べた。

以上各章で得られた結果をまとめた。今後の課題としてまず極微制限視野回折法を用いたいろいろな物性研究の具体化が望まれる。例えば本論文に取り上げた中からでも、析出物の研究、ラボラドライト長石の結晶構造、つまりＮａ原子とＣａ原子の位置の正確な決定、結晶中での電子の消衰効果の

研究、転位近傍の格子歪の研究などが上げられる。特に結晶構造の研究には、単位胞からの回折像が有効であろう。また、格子歪の研究では、動力学的計算と併用することにより、より有益な結果が期待される。また転位線が入射電子線に対し斜めに入っている場合などについての研究も更に進められねばならない。そのためには、上の二つの手段に加えて光学的なシミュレーションも有効となろう。

ノイズフィルターグレーティングを用いた格子像の処理に関しては、コントラストが連続的に変化する広い領域の処理および本研究で行った色収差補正のように従来のインバース・フィルターと組み合わせた球面収差や電子線のコヒーレンス度の補正などがすぐに期待できよう。また結晶格子像の撮影には伝達関数が激しく振動している周波数領域の波を用いることが多く、球面収差を補正するためには、非晶質の像の場合に比べ、より正確な焦点外れ量の決定が必要となる。それには、単に広い領域の光回折像を用いるばかりではなく、単位胞からの回折像を用いるのが有効であろう。

以上の電子顕微鏡像の後処理に加えて、試料に忠実な解像度の高い像を得るためには、電子レンズの収差を小さくする努力のほかに、収差補正のための位相板を用いた撮像などの前処理や、任意の結晶に対して a.*f*.*f*. 条件が得られるよう、球面収差係数を自由にコントロールする機構、それも、できれば加速電圧を変化させずにコントロールできる機構の開発などに大きな期待が掛けられる。

参 考 文 献

Abbe, E. (1873). Arch. Mik. Anat. 9, 413.

安達公一，石原信一，岡田正和，小野昭成，田辺良美，四本晴夫，（1 9 7 5）
"電子顕微鏡利用の基礎" 共立出版

Agar, A. W. (1960). J. appl. Phys. 11, 540.

Allpress, J. G., Sanders, J. V. and Wadsley, A. D. (1960). Acta Cryst. B25, 1156.

Allpress, J. G., Sanders, J. V. (1973). J. appl. Cryst. 6, 165.

Anstis, G. R. and O'Keefe, M. A. (1976). 34th Ann. Proc. Electron Microscopy Soc. Amer. Miami.

Anstis, G. R., Iijima, S. and O'Keefe, M. A. (1976). Private communication.

Bethe, H. A. (1928). Ann. Phys. Lpz. 87, 55.

Boersch, H. (1936). Ann. Phys. Lpz. 27, 78.

Boersch, H. (1946). Monatsheft Chem. 78, 163.

Boersch, H. (1947). Z. Naturforschung 29, 615

Born, M. and Wolf, E. (1959). "Principles of Optics" Pergamon Press, (Oxford), 5ed. (1975).

Borries, B. V. and Ruska, E, (1932). Z. Phys. 76, 649.

Burge, R. E. and Scott, R. F. (1975a). Optik 43, 53.

Burge, R. E. and Scott, R. F. (1975b). Optik 43, 503.

Burge, R. E. and Scott, R. F. (1976). Optik 44, 159.

Cockayne, D. J. H., Ray, I. L. F. and Whelan, M. J. (1969). Phil. Mag. 20, 1265.

Cockayne, D. J. H., Parsons, J. R. and Hoelke, C. W. (1971). Phil. Mag. 24, 139.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1957a). Proc. Phys. Soc. 486.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1957b). Proc. Phys. Soc. B70, 497.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1957c). Proc. Phys. Soc. B70, 505.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1957d). Proc. Phys. Soc. B70, 533.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1957e). Acta Cryst. 10, 609.

Cowley, J. M. and Moodie, A. F. (1960). Proc. Phys. Soc. 76, 378.

Cowley, J. M. (1959). Acta. Cryst. 12, 367.

Cowley, J. M. and Iijima, S. (1972). Z. Naturforsch. 27a, 445.

Cowley, J. M. (1973). Acta Cryst. A29, 529.
Cowley, J. M. (1977). Proc. 5th. Int. Conf. HVEM, Kyoto.
Crewe, A. V. (1975). Sur. Sci. 48, 152.
Dainty, J. C. (1970). Opt. Acta 17, 761.
Darwin, C. G. (1914). Phil. Mag. 27, 675.
DeRosier, D. J. and Klug, A. (1972). J. Mol. Biol. 65, 469.
Dowell, W. C. T. and Goodman, R. (1973). Phil. Mag. 31, 471.
Downing, K. H. and Siegel, B. M. (1975). Optik 42, 155.
Dupouy, G., Perrier, F., Uyeda, R., Ayroles, R. and Bousquet, A. (1963). Comptes rendus 257, 1511.
Dupouy, G., Marais, B. and Verdier, P. (1972). Proc. 5th Europ. Cong. Electr. Micros. 404.
Eisenhandler, C. B. and Siegel, B. M. (1966). J. appl. Phys. 37, 1613.
Enloe, L. H. (1967). Bell System Tech. J. 46, 1579.
Erickson, H. P. and Klug, A. F. R. S. (1971). Phil. Trans. Roy. Soc. B261, 105.
Ewald, P. P. (1917). Ann. Phys. 54, 517.
Ewald, P. P. (1920). Z. Phys. 2, 232.
Fejes, P. L. (1972). 13th Ann. EMSA Meeting 558.
Fert, C. and Durandeau, P. (1967). "Focussing of Charged Particle" Vol. 1 Ch. 2·3 Academic Press (New York).
Frank, J. (1973). Optik 38, 519.
Frank, J. (1975). Optik 43, 25.
Frank, J. (1976). Optik 44, 379.
深見章，村上悟 (1974) 電子顕微鏡 9，4.
Fukuhara, A., Komoda, T. and adano, B. (1966/1967). Optik 24, 513.
Geiss, R. H. (1975). Appl. Phys. Lett. 27, 174.
Gel'fand, I. M. and Shilov, G. E. (1964). "Generalized Functions" Vol. 1 translated by Saletan, E. Academic Press (New York).
Glaser, W. (1933). Z. Phys. 81, 647.
Glaser, W. (1941). Z. Phys. 117, 285.
Goodman, J. W. (1968). "Introduction to Fourier Optics" McGraw-Hill (San Francisco).
Hahn, M., Baumeister, W. (1973). Cytobiologie 7, 224.
Hashimoto, H., Mannami, M. and Naiki, T. (1961). Phil. Trans. Roy. Soc. London 253, 459.
Hashimoto, H. (1971). Jernkont. Ann. 155, 479.
Hashimoto, H., Kumao, A., Hino, K., Yotsumoto, H. and

Ono, A. (1971). Japan. J. appl. Phys. 10, 1115.
橋本初次郎 (1973) 応用物理 42, 330
Hashimoto, H., Kumao, A., Hino, K., Endoh, H., Yotsumoto, H. and Ono, A. (1973). J. Electron Microscopy 22, 123.
Hashimoto, H., Endoh, H. and Kumao, A. (1975). Microscopie Electronique A Hante Tension, Toulouse 79.
Hashimoto, H., Tanji, T., Ono, A. and Kumao, A. (1975). J. Electron Microscopy 24, 122.
Hashimoto, H., Endoh, H., Tanji, T., Ono, A. and Watanabe, E. (1976a). Proc. US-Japan HVEM Seminar, Honolulu 61.
Hashimoto, H., Nissen, H-U, Ono, A., Kumao, A., Endoh, H., Woensdregt, C. F. (1976b). "Electron Microscopy in Mineralogy" Springer-verlag (Berlin).
Hashimoto, H. (1976a). Proc. Specialist Workshop in Analytical Electron Microscopy, Cornell Univ. New York 69.
Hashimoto, H. (1976b). Proc. Specialist Workshop in Analytical Electron Microscopy, Cornell Univ. New York 93.
Hashimoto, H., Endoh, H., Tanji, T., Ono, A. and Watanabe, E. (1977). J. Phys. Soc. Japan 42, 1073.
Hanßen, K. J. and Trepte, L. (1971). Optik 32, 519.
Harris, J. L., Sr. (1966). J. Opt. Soc. Am. 56, 569.
Hawkes, P. W. (1967). "Focussing of Charged Particles" ed. by Séptier, A. Vol. 1, Academic Press (New York)
Heidenreich, R. D. (1964). "Fundamentals of Transmission Electron Microscopy" Interscience Publishers (John Wiely & Sons, New York).
Heidenreich, R. D. and Hamming, R. W. (1965). Bell Sys. Tech. Jour. XLIV, 207.
Hibi, T. (1974). 8th Int. Cong. Electron Microscopy, Canberra 1, 208.
Hibi, T., Yada, K. and Takahashi, S. (1962). J. Electron Microscopy 11, 244.
Hibi, T. and Yada, K. (1964). J. Electron Microscopy 13, 94.
日比忠俊，矢田慶治 (1975) 電子顕微鏡 10, 111.
Hirsch, P. B., Howie, A., Nicholson, P. B., Pashley, D. W. and Whelan, M. J. (1965). "Electron Microscopy of Thin Crystals" Butterworths (London).
Hosoki, S., Ohtsuka, M. and Okano, H. (1975). J. Electron Microscopy 24, 180.

Howie, A. and Whelan, M. J. (1961). Proc. Roy. Soc. A263, 217.

Howie, A. and Whelan, M. J. (1962). Proc. Roy. Soc. A267, 206.

Ichioka, Y. (1974). J. Opt. Soc. Am. 64, 919.

Iijima, S. (1973). Acta Cryst. A29, 18.

Iijima, S, (1974). Proc. 8th Int. Cong. Electron Microscopy, Canberra 1, 242.

Iijima, S., Kimura, S. and Goto, M. (1973). Acta Cryst. A29, 632.

井村徹 (1970). 日本物理学会誌 25, 815.

井村徹, 藤田広 (1975). 電子顕微鏡 10, 59.

金谷光一 (1975). 電子顕微鏡 10, 119.

金谷光一 (1976). 電子顕微鏡 11, 35.

Kato, N. (1952). J. Phys. Soc. Japan 7, 397.

Klug, A. and Berger, J. E. (1964). J. Mol. Biol. 10, 565.

Klug, A. and DeRosier, D. J. (1966). Nature 212, 29.

Knoll, M. and Ruska, E. (1932). Z. Phys. 78, 318.

Koreeda, A., Okamoto, H. and Shimizu, K. (1971). Rev. Sci. Inst. 42, 1676.

Krakow, W., Downing K. H. and Siegel. B. M. (1974). Optik 40, 1.

Krakow, W. and Siegel, B. M. (1975). Optik 42, 245.

Krivanek, O. L. (1976). Optik 45, 97.

久保田広 (1959). "応用光学" 岩波全書

Le Poole, J. B. (1947). Philips tech. Rdsch. 9, 33.

Liebmann, G. (1955a). Proc. Phys. Soc. Lond. B68, 679.

Liebmann, G. (1955b). Proc. Phys. Soc. Lond. B68, 737.

Lohmann, A. W. and Paris, D. P. (1967). Appl. Opt. 6, 1739.

Lohmann, A. W. and Paris, D. P. (1967). Appl. Opt. 7, 651.

Lowenthal, S. and Arsenault, H. (1970). J. Opt. Soc. Am. 60, 1478.

Markham, R., Frey, S. and Hills, G. J. (1963). Virology 20, 88.

Markham, R., Hitchborn, J. H., Hills, G. J. and Frey, S. (1964). Virology 22, 342.

Mahl, H. (1939). Tech. Phys. 20, 316.

Martienssen, W. and Spiller E. (1965). Naturwiss. 52, 52.

Menter, J. W. (1956). Proc. Stockholm conf. Electr. Micros. 88.

Menter, J. W. (1958). Advances in Physics 7, 299.

Nagata, F. Matauda, T. Komoda, T. and Hama, K. (1976). J. Electron Microscopy 25, 237.

Nakagawa, S. and Yamada, T. (1975). J. Electron Microscopy 24, 180.

中川清一 (1977). 電子顕微鏡 12, 59.

Niehrs, H. (1954). Z. Phys. 138, 570.

野々村禎昭 (1975). 電子顕微鏡 10, 92.

O'Neil~~l~~, E. L. (1956). IRE trans. IT-2, 56.

Oostrum, K. J. van., Leenhouts, A. and Jere, A. (1973). Appl. Phys. Lett. 23, 283.

Ooue, S. (1969). "Progress in Optics" ed. by Wolf. E. North-Holland Vol. 7, 299.

Ottensmeyer, F. P., Schmitt, E. F., Jack, T. and Powell, J. (1972). J. Ultrastruct. Res. 40, 546.

Phillips, V. A., Chalk, A. J. and Hugo, J. T. (1972). J. Electron Microscopy 21, 32.

Rebsch, R. (1938). Ann. Phys. Lpz. 31, 551.

Reed, I. S. (1962). IRE trans. IT-8, 194.

Riecke, W. D. (1961). Optik. 18, 278.

Riecke, W. D. (1969). Z. angew. Phys. 27, 155.

Ruska, E. (1934). Z. Phys. 87, 580.

Scherzer, O. (1949). J. Appl. Phys. 20, 20.

Schiffner, G. (1965). Proc. IEEE. 53, 1245.

Shimizu, R., Kataoka, Y., Kawai, S. and Tanaka, T. (1975a). Appl. Phys. Lett. 26, 113.
(1975b). Jap. J. Appl. Phys. 14, 1089.

Shimizu, R. Shinike, T., Kawai, S. and Tanaka, T. (1977). Japan. J. Appl. Phys. 16, 66.

下山宏 (1975). 電子顕微鏡 10, 75.

Sinclair, R., Gronsky, R. and Thomas, G. (1976). Acta Met. 24, 789.

Sinclair, R. and Dutkienwicz, J. (1977). Acta Met. 25, 235.

Siegel, B., Uyeda, N. and Kirkland E. (1977). Proc. 5th Int. Conf. HVEM Kyoto.

Smith, G. H. and Burge, R. E. (1962). Acta Cryst. 15, 182.

Steven, A. C., Aebi, U. and Showe, M. K. (1976). J. Mol. Biol. 102, 373.

Stroke, G. W. and Halioua, M. (1972a). Optik 35, 50.

Stroke, G. W. and Halioua, M. (1972b). Optik 35, 489.

Stroke, G. W. and Halioua, M. (1973a). Optik 37, 192.

Stroke, G. W. and Halioua, M. (1973b). Optik 37, 249.

Stroke, G. W., Halioua, M., Thon, F. and Willasch, D. (1974a). 8th Int. Cong. Electron Microscopy, Canberra 1, 324.
Stroke, G. W., Halioua, M., Thon, F. and Willasch, D. (1974b). Optik 41, 319.
菅田栄治 (1956). 〃電子顕微鏡 (2)〃 オーム社
Tanaka, K. and Hashimoto, H. (1953). Rev. Sci. Inst. 24, 669.
Tanji, T., Hashimoto, H. and Endoh, H. (1977). Proc. 5th Int. Conf. HVEM (Kyoto).
Tanji, T. and Hashimoto, H. (1977). Acta. Cryst. to be published.
Tanji, T., Hashimoto, H. and tomioka, H. (1977).
Thon, F. (1966). 6th Int. Cong. Electron Microscopy, Kyoto 23.
Thon, F. (1966). Z. Naturforsch. 21a, 476.
Thon, F. and Willasch, E. (1972). 30th Ann. Proc. Elec. Micro. Soc. Amer.
Tochigi, H., Hakatsuka, H., Fukami, A. and Kanaya, K. (1970). 7th Int. cong. Electron Microscopy, Grenoble, 73.
Toman, K. and Frueh, A. J. (1973). Z. Krist. 138, 22.
Troyon, M. (1976). Optik 46, 439.
Uchikawa, Y. and Maruse, S. (1969). J. Electron Microscopy 18, 118.
Uyeda, R., Dupouy, G., Perrier, F., Ayroles, R. and Bousquet, A. (1963). J. Electron Microscopy 12, 271.
上田良二 (1974). 電子顕微鏡 9, 49.
Uyeda, N., Kobayashi, R., Suito, E., Harada, Y. and Watanabe, M. (1970). Proc. Micr. Electronique, (Grenoble) 1, 23.
Whelan, M. J. and Hirsch, P. B. (1957). Phil. Mag. 2, 1121 and 1303.
Wiesner, J. C. and Everhart, T. E. (1973). J. appl. Phys. 44 2140.
Yada, K. (1971). Acta Cryst. A27, 659.
Yada, K. and Kawakatsu, H. (1976). J. Electron Microscopy 25, 1.
Yamaguchi, I. (1972). Optik 36, 241.
Yamaguchi, I. (1973). Optik 37, 141.
山口一郎 (1974). 光学 3, 76.
Yanagida, M., DeRosier, D. J. and Klug, A. (1972). J. Mol. Biol. 65, 489.

謝　　辞

本研究は、大阪大学工学部応用物理学教室において、橋本初次郎教授の御指導の下に行われたものである。研究を遂行するにあたり、終始懇切な御指導をいただきました橋本初次郎先生に心から御礼申し上げます。

また終始有益な御助言、御討論をいただきました同研究室の志水隆一助教授、上田一之助手、遠藤久満助手の諸先生に深く感謝いたします。特に遠藤久満先生には第2章、第3章で導出した理論式の細部にわたる検討、ならびに第3章で用いた金の結晶からの電子回折強度の動力学的計算をしていただきました。重ねて御礼申し上げます。

同教室教授鈴木達朗先生には、終始励ましと御助言をいただきました。また同教室教授三石明善先生には、論文作成にあたって検討していただきました。ここに厚く御礼申し上げます。

同教室教授久保忠雄先生には、数式の展開に関して御助言をいただきました。また助教授一岡芳樹助手横関俊介両先生には、第3章、第4章の画像修正に関しては数々の有益な御助言をいただき、京都工芸繊維大学講師熊尾章宏先生には、第2章の研究においてラボラドライト長石の電子回折像から結晶の方位を決定していただきました。深く感謝いたします。

同教室技官深田英作氏には写真処理における高度な技術的援助をいただき、また本学大学院博士前期課程在学の富岡秀起君には実験の一部を手伝っていただきました。終始励ましと援助を賜わりました橋本研究室の諸兄、諸先輩とともに心から感謝いたします。

また、日本電子株式会社技術本部の小野昭成、渡辺栄一両氏には第2章、第3章で用いた結晶格子像を撮影していただきました。Swiss Federal Institute of Technologe の Dr. H.-U. Nissen には第2章で用いたラボラドライト長石の試料を提供していただきました。そして、Arizona State University の Prof. J. M. Cowley には 第2、第3、第4章の研究を通して討論していただき、また論文の検討をしていただきました。ここに記して、感謝の意を表します。

正　誤　表

頁	行		
2	1	本研究る	本研究を
12	7	磁極の飽昭	磁束の飽和
70	Fig.3—12		〃上段を(a)　下段を(b)とする〃
76	下4	$\|\Phi_0$	$\|\Phi_0\|$
80	8	Fig.1—11	Fig.3—12
	15	現像	現象
84	6	（4－17）式	（4－19）式
	16	$f^*(s)\exp\{$	$f^*(s)$
108	1	Matauda	Matsuda
109	11	tomioka, H. (1977)	Tomioka, H. (1977), 投稿中
	17	Hakatsuka	Nakatsuka