

解 説

UDC 620.187 : 539.27 : 548.7

電子顕微鏡による格子欠陥の性質の決定*

古 林 英 一**

Identification of the Character of Crystal Lattice Defects by
Transmission Electron Microscopy

Ei-ichi FURUBAYASHI

1. は し が き

回折の動力学理論によつて、薄膜試料の透過電子顕微鏡像は非常によく説明される。電子顕微鏡を使つて格子欠陥を観察するにはこの理論をよく知る必要がある。しかしながら、この理論はわれわれの日常生活の経験と結びつきの少ない量子力学や数式の鎧を着ているので、それらを理解するのにかなりの忍耐を要求される。忙しい現代人はその数学のジャングルの中で途方にくれ²⁾、肝心のその裏にある物理的イメージに到達する時間的余裕を持たない場合もある。とくに透過電子顕微鏡が今日のように広く用いられるようになると、取り付きにくい「電顕学」をくわしく知らなければ、観察に支障があるようでは、その有用性が著しく損われる。これはカメラを使うのにいちいち光の屈折や回折について深く知る必要がないのと似ている。このような観点から本稿では転位の Burgers ベクトルの大きさ、方向、向き、ループが interstitial 型か vacancy 型かといった性質 (character) を決定するために必要な回折理論の初歩的イメージを得られるように配慮した。できるだけ直観的に記述し、用いる式は正確さは多少犠牲にしても物理的概念を把握するに必要最小限度にとどめたのは、そうほうがともかくすぐ役立つと考えたからである。

本稿を一読されてから本来の教科書^{3)~5)}を読めば、より容易に理解できるであろう。電子顕微鏡の基礎について知りたいときは上田の解説⁶⁾が大変役立つ。

2. 透過電子顕微鏡像の基礎

2.1 結晶中を伝わる波、Bloch 波

電子線の波としての性質は Schrödinger の波動方程式 $\nabla^2 \Psi(\mathbf{r}) + (8\pi^2 m e / h^2) [E + V(\mathbf{r})] \Psi(\mathbf{r}) = 0^* \dots (1)$ によつて記述される³⁾。電子の波が結晶に入る前は $V=0$

であるから、(1)式を解くと平面波の解

$$\Psi(\mathbf{r}) = \exp(2\pi i \boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{r})^* \dots \dots \dots (2)$$

が得られる。ここに $h^2 \chi^2 / 2m = eE$ で決められる $\boldsymbol{\chi}$ は真空中における平面波の波数ベクトル**である。波が結晶中に入ると、原子が規則的に正しく並んでいるため、内部電位 $V(\mathbf{r})$ は結晶格子の周期に等しい変動成分を加え合わせた形、すなわち

$$V(\mathbf{r}) = -\frac{h^2}{2me} \sum_{\mathbf{g}} U_{\mathbf{g}} \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \dots \dots \dots (3)$$

で表わされる。 $U_{\mathbf{g}}$ は内部電位の格子周期に相当する波数 \mathbf{g} をもつフーリエ成分である。一定成分 U_0 の効果は真空中から結晶中に入った場合の波の速さの変化を与え、これは波の屈折と関係している。すなわち波の振動数は不変だから、波数が $\boldsymbol{\chi}$ から $\mathbf{K} = \sqrt{\boldsymbol{\chi}^2 + U_0}$ に変化する。

一方変動成分の効果は格子周期で変調を受けたいわゆる Bloch 波を生ずる。結晶中に入った波は種々の格子面で回折を起こすが、その回折する前の進行方向に平行に進む波を透過波といい、その波数ベクトルを \mathbf{k}_0 とすれば、回折波の波数は $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_0 + \mathbf{g}$ である。したがつて Bloch 波の波動函数 (振幅) は

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}(\mathbf{k}_0) \exp(2\pi i (\mathbf{k}_0 + \mathbf{g}) \cdot \mathbf{r}) \dots \dots \dots (4)$$

という形に書ける。ここでわれわれは 2 波近似を用いて $c_{\mathbf{g}}(\mathbf{k}_0)$ の満足すべき条件を調べる。2 波近似とは透過波 $\mathbf{g}=0$ と 1 つの回折波 $\mathbf{g}=\mathbf{g}$ だけが励起されているという近似で、回折理論の最も単純な立場としてしばしば用いられる。以下の解析でもこの条件を仮定している。むずかしく言えば(4)式を(1)式に代入して $c_{\mathbf{g}}(\mathbf{k}_0)$ に関

* これらの表式は複素函数で書かれているが、(1)式の第1, 第2, 第3項はそれぞれ運動エネルギー, 全エネルギー, ポテンシャルエネルギーを表わし、(1)式自体はエネルギー保存則にはかならない。(2)式は $\sin(2\pi \boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{r})$ と同じ意味である。両式とも E は一定であるから時間依存性は $\exp(-2\pi i Et/h)$ を乗じれば通常の力学の波動方程式になる。なお記号は文献(3)に準拠した。

** 単位長さ当たりの波の数、すなわち波長の逆数の大きさを持ち、波の進行方向に平行なベクトルでもベクトルともいう。

* 昭和46年6月3日受付 (依頼解説)

** 金属材料技術研究所 工博

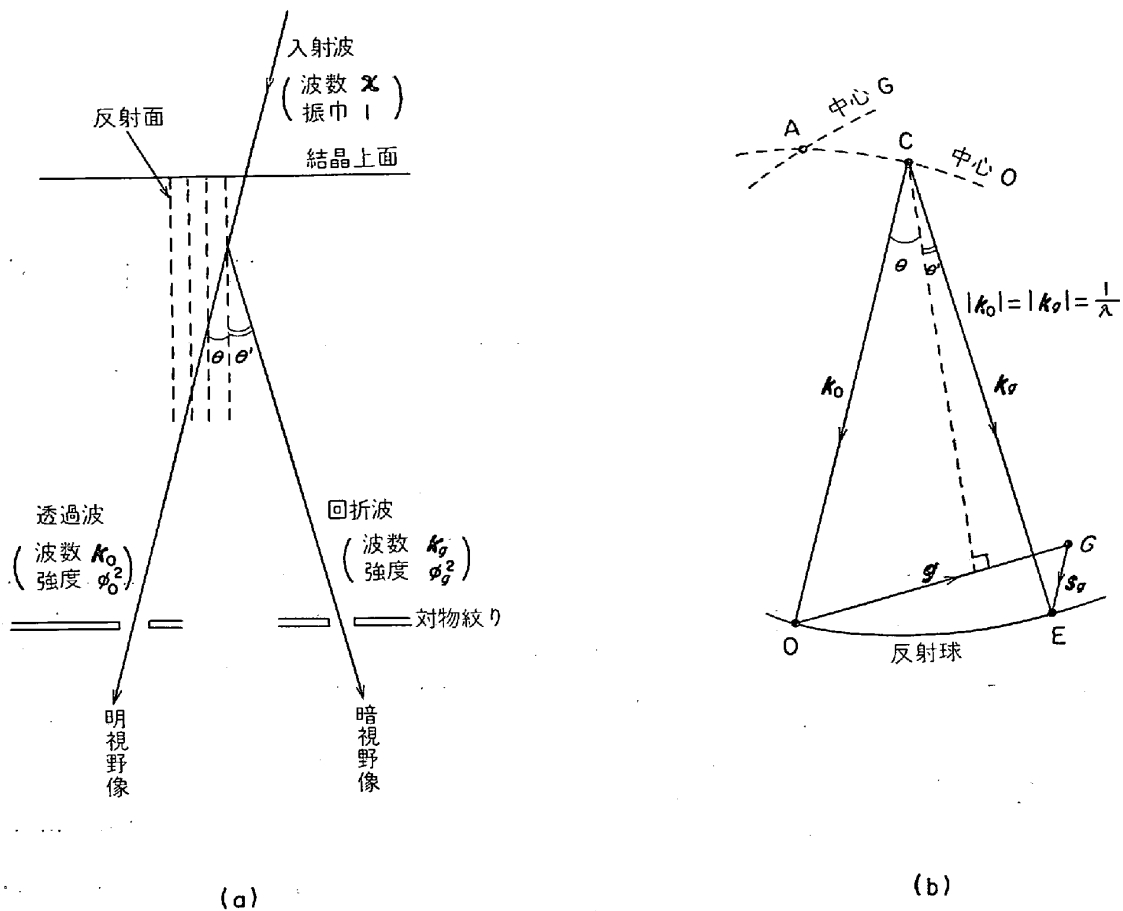


図 1 運動学理論における実空間(a)と逆格子空間(b)での波の回折の表示

する永年方程式のトリビアルでない解を求めると、

$$(k_0 - K)(|k_0 + g| - K) = \frac{|U_g|^2}{4K^2} \dots (5)$$

となる。つまり(5)式を満足する Bloch 波だけが結晶中に励起される。

(5)式の意味を検討する前に逆格子空間⁶⁾における波の回折の表示法を簡単に述べる。図1は実際の結晶格子空間と逆格子空間における波の回折の表示の関係を示したものである*。逆格子点 G が反射球の内側にあるときを $s_g > 0$ と約束する⁶⁾。Bragg 条件を満足するところでは $s_g = 0$ で、そこでは Bloch 波は波数 g の変調を最も強く受けた形をしている。

さて(5)式は図1(b)と同様の手法で描いた図2によって説明される。すなわち図2でOとGは回折に寄与す

る逆格子点である。A点を通る二組の細線はそれぞれO, Gを中心とする半径Kの円で、それに漸近する太線のカーブは分散面と呼ばれ、その上の点はすべて(5)式を満足している。そこで入射波 λ に対応する X 点から OG に垂直に線を引き、二つの分散面と交わる点 D⁽¹⁾, D⁽²⁾をとり、そこから O, G へ向かうベクトル $k_0^{(1)}$, $k_g^{(1)} = k_0^{(1)} + g$, $k_0^{(2)}$, $k_g^{(2)} = k_0^{(2)} + g$ をとると、それは結晶中に励起される Bloch 波の波数ベクトルを示している。

図2の二つの分散面はまた周期構造をもつた結晶の Brillouin zone 境界における分散関係のエネルギーギャップ⁶⁾と同じものである。Bragg 条件は Brillouin zone 境界上でちょうど満足されている。自由電子に近い時は分散面は細線にそつて A 点を通るが、内部電位が増加するとエネルギーギャップを生じ、波数の小さい(エネルギーの低い) (1)の波と、波数の大きい(2)の波が生ずる。この波数の相異は(5)式より内部電位の g 成分に依存する。この二種類の Bloch 波は、Bragg 条件の近くでとくに特徴的な相異を示すが、それは Brillouin zone 境界における Bloch 波の反射によって生ずる定常波 (standing wave) の性質として理解できる。

* 回折に寄与している結晶格子面Gと θ をなす方向から入射した波が、反射(回折)後 θ' 方向へ進む場合、逆格子空間では透過波と回折波の波数ベクトル k_0, k_g を用いて図1(b)のように表わされる。Oは逆格子点の一つで $\vec{CO} = k_0$ をOに向かつて入射波の方向に引き、Cより回折波の方向に $\vec{CE} = k_g$ を引く。この場合円OE上に逆格子点Gがくることが Bragg 条件に相当する⁶⁾。一般にはGとEは s_g だけずれているが、これは図1(a)で $\theta \neq \theta'$ に対応している。HOWIE らにしたがつて $\theta > \theta'$ のときに $s_g = |s_g| > 0$ と約束する。円OEは実は逆格子空間における球で反射球または Ewald 球と呼ばれる。

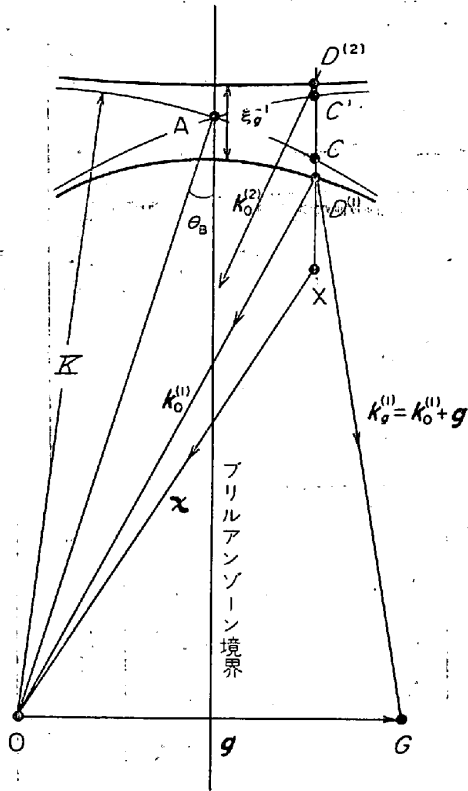


図2 2波動力学理論における分散面³⁾。 k_0 は入射波の真空中における波数ベクトルで、 $D^{(1)}$ 、 $D^{(2)}$ に対応する二種の Bloch 波 (波数ベクトル $k^{(1)}$ 、 $k^{(2)}$) が励起される。図は $s_g > 0$ の場合を示し、解りやすいように K と g の比を実際より小さく描いてある。

2.2 吸収と消衰

Bloch 波は結晶中を伝播してゆく過程で、その強度が変化するが、その仕方にはエネルギーが保存されながら変化する消衰とエネルギーが失われる吸収がある。吸収は波が格子の熱振動や種々の非弾性励起によつてレンズ絞りの外にでてしまう場合で比較的理解しやすい。消衰はこれに対して図3に示すように、透過波 (回折波) が次第に回折して回折波 (透過波) に移行する現象をいう。透過波に比べて回折波の強度がもともと弱い運動学的条件下では消衰はそれほど目立たないが、試料が厚く、また Bragg 条件に近い動力学条件では、図3のように回折波と透過波の間に波のエネルギーが行つたり来たりする現象が起きる。吸収がなければ透過波と回折波のエネルギーを合わせたものは不変である。

図3のような波の強度変化の波長を消衰距離 (extinction distance) ξ_g と呼び、 g と s_g の函数である。表1に種々の金属の消衰距離の計算値³⁾を示す。結晶下面がもしAの位置であるとすれば、透過波で像を観察する明視野像は結晶全体が一様に暗く、反対に回折波による暗視野像は明るく見える⁴⁾。一方Bの位置では明暗がちやうどAと反対になる。くさび形断面を持つ結晶に現われ

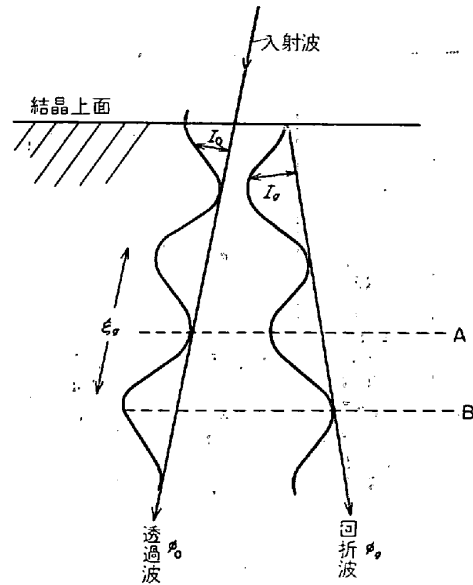


図3 吸収を無視した場合の結晶中の Bragg 条件における透過波と回折波の強度分布

る等厚干渉縞はこの消衰効果の結果である。次々に消衰をくり返してゆくうちに、実際には吸収によつて図6のように次第に消衰が弱められる。

消衰は図2で示した二つの分散面 $D^{(1)}$ と $D^{(2)}$ に対応する二種類の Bloch 波 (1) と (2) の波の干渉によるうなりである。また吸収は消衰が三角函数で表わされるうなりであるのに対して、形式的には虚の位相角、すなわち指数函数に従う減衰で表される。

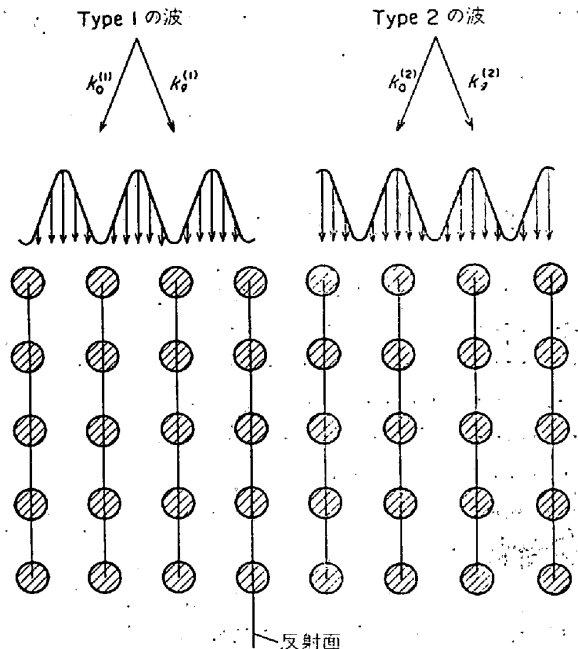


図4 Bragg 反射条件における2種類の Bloch 波の強度分布⁷⁾。斜線を引いた円形の部分は原子附近の吸収領域を示す。type (2) の波は原子列の上を通るので、原子列の間を通る type(1) の波より多く吸収される。

表 1 100 kV ($\lambda = 0.0370\text{\AA}$) における相対論の補正をした消衰距離 $\xi_g^{(2)}$.

反 射	Al	Cu	Ni	Ag	Pt	Au	Pb	LiF	MgO
111	556	242	236	224	147	159	240	1717	2726
200	673	281	275	255	166	179	266	645	461
220	1057	416	409	363	232	248	359	942	662
311	1300	505	499	433	274	292	418	2199	11797
222	1377	535	529	455	288	307	436	1210	852
400	1672	654	652	544	343	363	505	1463	1033
331	1877	745	745	611	385	406	555	3352	10756
420	1943	776	776	634	398	420	572	1710	1201
422	2190	897	896	724	453	477	638		
511	2363	985	983	792	494	519	688		
333	2363	985	983	792	494	519	688		
440	2637	1126	1120	901	558	587	772		
531	2798	1206	1196	964	594	626	822		
600	2851	1232	1221	984	606	638	838		
442	2851	1232	1221	984	606	638	838		

反 射	Fe	Nb
110	270	261
200	395	367
211	503	457
220	606	539
310	712	619
222	820	699
321	927	781
400	1032	863
411	1134	944
420	1231	1024
332	1324	1102
422	1414	1178
510	1500	1251
431	1500	1251
521	1663	1390

反 射	Mg	Co	Zn	Zr	Cd
1100	1509	467	553	594	519
1120	1405	429	497	493	438
2200	3348	1027	1180	1151	1023
1101	1001	306	351	379	324
2201	2018	620	704	691	608
0002	811	248	260	317	244
1102	2310	702	762	837	683
1122	1710	524	578	590	501
2202	3917	1215	1339	1333	1140

反 射	Diamond	Si	Ge
111	476	602	430
220	665	757	452
311	1245	1349	757
400	1215	1268	659
331	1972	2046	1028
511	2613	2645	1273
333	2613	2645	1273
440	2151	2093	1008

* 100 kV 以外の加熱電圧に対しては表中の値 $\xi_g^{(2)}(100)$ に電子速度の比 V/V_{100} を乗じればよい。

2.3 異状吸収波と異状透過波

Bragg 条件の近くでとくに強く励起される二種の波 (1) と (2) の性質をもう少し調べよう。Bragg 条件を満足する所では波は定常波になるから、そこで励起される波は透過波と回折波が逆位相となるか、同位相となるかの二つの可能性しか存在しない。前者が (1) の波で、原子位置に関して振幅が反対称であり、後者は (2) の波で対称である。(2) の波と (1) の波は図 4 に示すように、原子列およびその中間でそれぞれ波の強度が最大となっている⁷⁾。すなわち (1) の波は原子列の中間を「通る」ので散乱を受けにくい、(2) の波は原子列との相互作用がとくに大きく吸収されやすい。しかしこのような相異は Bragg 条件からのはずれ s_g が大きくなると消失し、どちらも通常の吸収条件係数をもつ波になる。その意味で (1) の波を異状透過、(2) を異状吸収の波という⁷⁾。

このような二種類の Bloch 波の存在が像や回折パ

ーンの上でどのような形で現われるかを次にみてみよう。図 5 はくさび形の断面を持つ結晶がゆるやかに曲がっている場合* を想定して、像に現われる消衰コンター (竹の子模様または Bend contour と呼ばれる) と、その種々の場所における制限視野回折パターン、さらに反射球と逆格子点 $\pm g$ との相対的關係を示したものである。各領域における g と s_g の符号も示してある。図では試料の曲がりの曲率中心は下側にある場合を示したが、上側にある場合は $+g$ のバンドコンターが左、 $-g$ が右側にきて、回折パターンも α 側と η 側が入れ換ったものになる。回折パターンは通常観察するように蛍光板上で上から覗いた向きにおいてあるが、もし写真印画に通常の方法で膜面を向き合わせて焼きつけるとちょうど裏返しの關係になる⁸⁾、また鏡を用いたりテレビ方式の

* 大抵の金属薄膜の端部はこのようなになっている。もし結晶が曲がっていない場合は竹の子模様の代わりに直線的な等厚干渉縞を生ずる。

場合も向きを調べるにはよく検討する必要がある。

図5(a)のABおよびCDに沿った波の強度を示すと図6のようになる。ABに沿った強度変化(a)は s_g の変化に基づくもので、暗視野では $s_g=0$ に関して左右対称であるが明視野では強い非対称がある。またCDに沿った波の強度(b)は $s_g=0$ に対応する等厚干渉縞で、試料の薄い所では強いうなりがあるが、吸収のために厚さとともに減衰する。

図5(a)の2本の竹の子は $+g$ または $-g$ 、すなわち g という格子面の表または裏での反射がBragg条件を満足しているところを示している*。いま $+g$ の反射について考えると、コンターの右側すなわち η 領域は非常に明るく、 ϵ 領域では暗い。この明視野における非対称性(図6)は、回折角 θ がBragg角 θ_B より大きい η 領域で波数の小さい(1)の波すなわち異常透過波が優勢であり、反対の θ の小さい ϵ 領域側では(2)の波つまり異常吸収波が優先しているためである**。 α と γ の領域についても同様である。Bragg条件を満足している β

および ζ 領域では、2つのBloch波が同程度の強さを持つので、うなりが最も強い。しかし試料が厚くなると(2)の波が速く減衰するために、コンターの縞の数は通常10本位で消失する。それより厚い所では異常透過波が優勢な α および η 領域の、しかもとくにコンターの近くだけが透過して見える。写真1はその一例である。二本の竹の子の中間は $\pm g$ のいずれについても異常吸収($s_g < 0$)となるので、幅の広い一本の帯として見えることが多い。これを消衰帯と呼ぶことがある。本稿ではバンドコンターまたは単にコンターを消衰帯ととくに区別せず同じ意味に使っている。

消衰帯の中では吸収が大きいことと関連して、高圧電子顕微鏡でのダメージがとくに大きいことが指摘されている¹⁰⁾³⁴⁾。帯の両側の異常透領域では反対にダメージを受けにくい。

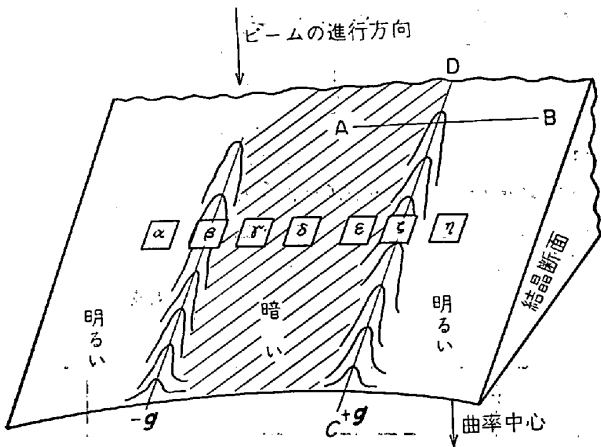
消衰距離 ξ_g の g と s_g への依存性を最後に一言述べよう。 $w \equiv \xi_g \cdot s_g$ というBragg条件からはずれを表わす無次元の量を用いると、 $w=0$ のときの ξ_g を ξ_g^0 とすれば、

$$\xi_g^w = \xi_g^0 / \sqrt{1+w^2} \dots\dots\dots (6)$$

ξ_g^0 は表1に示すように金属の種類および g の大きさに依存する。その理由は構造因子すなわち内部電位のフーリエ成分が g とともに減少することに相当している。 g の小さい(低指数)反射を用い、 s_g を小さくして観察することが、異常透過を有効に利用するポイントである。

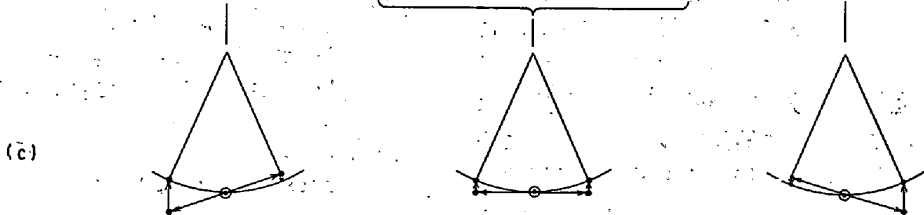
* とくに δ 領域では透過波のほかに $\pm g$ の二つの回折波が励起されているから2波条件からはずれる。ここではある加速電圧以上ではchannelingという異状によく透る現象が観察される⁹⁾。

** 図2の細線ACとAC'を比較すると、図1の運動学理論の場合にはAC'という枝は存在しないことがわかる。すなわち図2の分散面は左側($s_g > 0$)では(2)の枝、右側($s_g < 0$)では(1)の枝が強いのはこのことと関係している。



(a) : 明視野像

領域	α	β	γ	δ	ϵ	ζ	η
回折像における菊池線対の位置	$0 \quad -g$ ○ ●	○ ●	○ ●	$+g \quad 0 \quad -g$ ● ○ ●	○ ●	○ ●	$+g \quad 0$ ● ○
g	-	-	-	- +	+	+	+
s_g	+	0	-	- -	-	0	+



(b) (a)の各領域の制限視野回折パターン、および g と s_g の符号。
回折パターンの平行線は菊池線
(c) (b)に対応する反射球と逆格子点 g の関係

図5 くさび形断面を持ち、ゆるやかに曲がった試料における消衰フリッジと回折パターン

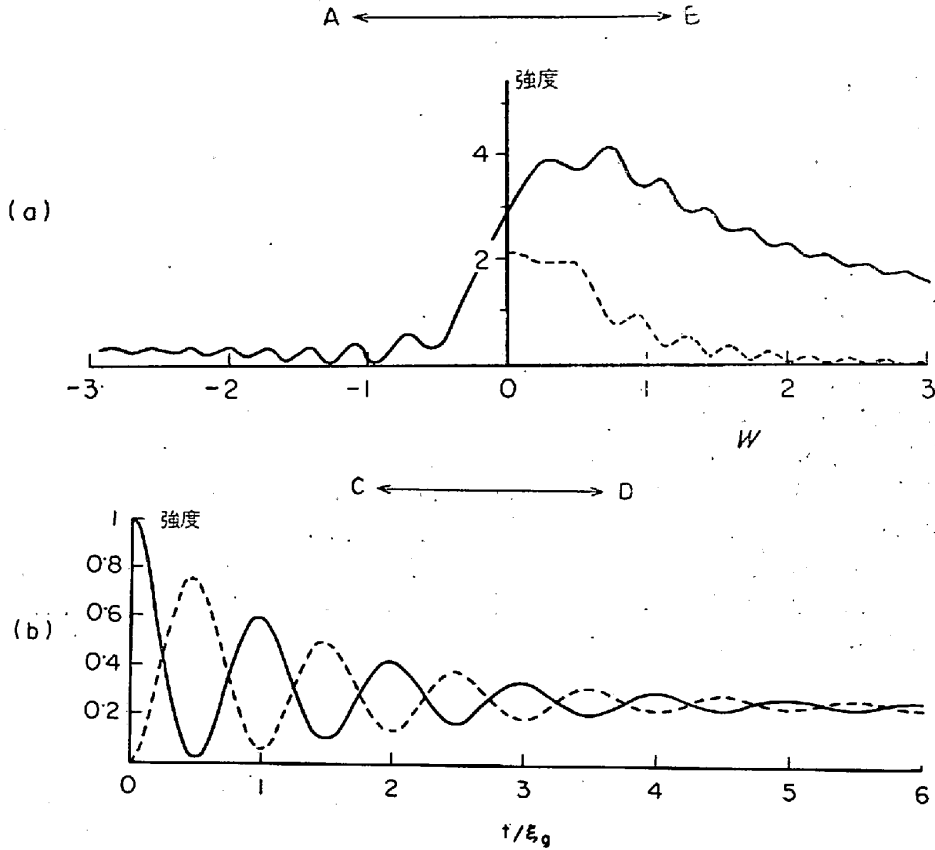


図 6 図 5 (a) の A B および C D に沿った消衰コンターの強度変化の計算例。実線は明視野，点線は暗視野

2.4 格子欠陥像のコントラスト

格子欠陥の像とは、欠陥が存在するために結晶格子が歪み、その影響を受けて回折条件が場所によつて変化する、そのために生ずる結晶下面の波の強度分布にほかならない。回折理論を応用して像を計算するにはいわゆるコラム近似が用いられる。図 7 に示すように厚さ t の結晶中の上面から深さ z の点に転位が存在する場合を考える。入射波は結晶中を進んで下面に達するが、その場合波が結晶中で散乱されて拡がる広さは非常に狭く、波の位相差が $\lambda/2$ の領域*の高々数倍程度である。この大きさは 20 \AA 程度であるから、試料の厚さを 1000 \AA としても波はほとんど拡がることなく、波の進行方向に沿った長い柱の中を進行すると考えてよい。厳密には透過波と回折波は Bragg 角 θ の 2 倍だけ進行方向が異なるが、その大きさは 10^{-2} rad. 程度でほぼ平行とみてよい。こうして図 7 のハッチングで示した柱 (コラム) AB を考えると、その中を進行する波は柱の外の結晶の状態とは一応無関係である。このように結晶を多くのコラムに分け、各コラムは他と独立に波を伝えると考える近似法がコラム近似である。

転位によつてコラム AB 中の原子は本来の位置からベクトル \mathbf{R} だけ変位している。 \mathbf{R} は深さ z のほか、コラムの位置 x の関数である。転位の歪場 $\mathbf{R}(z)$ は転位の

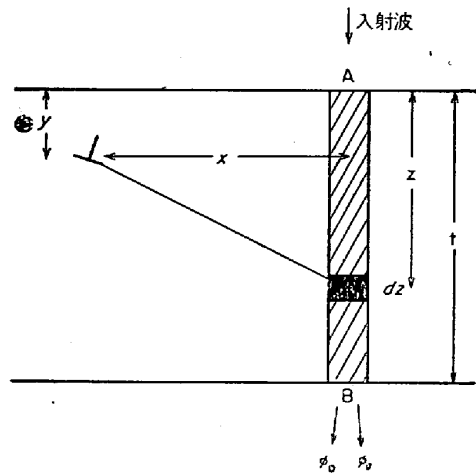


図 7 転位像を計算するためのコラム³⁾。コラム A B に沿つて転位による歪場に基づく波の位相変化を結晶の厚さ t にわたつて積分する

弾性論で与えられる。 \mathbf{R} の存在によつて Bloch 波は $\exp(i\alpha) \equiv \exp(2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{R})$ だけの位相変化を受けるから、これを波動方程式に代入すれば像が計算できる。厚さ t の結晶下面における回折波の波動関数 ϕ_g は

$$\phi_g = \frac{\pi i}{\zeta_g} \phi_0 \int_0^t \exp(-2\pi i s_g z - 2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}(z)) dz \dots\dots\dots (7)$$

* 1-st Fresnel zone



写真1 ベンドコンター(竹の子)付近における転位像。 s_g の符号と明るさ, コントラストに注意. Fe-3%Si 単結晶, 加速電圧 500 kV, (200) 反射。

で与えられる。ここで ϕ_0 は透過波の波動関数である。すなわちコラムに沿って入射した波 ϕ_0 が、個々の原子によつて散乱される効果を、コラムに沿って位相を考慮して単純に加え合わせたものである。もし ϕ_g が大きくなると、 ϕ_g がふたたび回折して ϕ_0 に移行する過程が無視できない。この効果を考えに入れたのが動力学理論である。2波近似では ϕ_0 から ϕ_g へと、 ϕ_g から ϕ_0 へ

の2つの過程を支配する方程式を連立させて解けばよい。

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\phi_0}{dz} &= -\frac{\pi i}{\zeta_0} \phi_0 + \frac{\pi i}{\zeta_g} \phi_g \exp(2\pi i s_g z + 2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}(z)) \\ \frac{d\phi_g}{dz} &= \frac{\pi i}{\zeta_0} \phi_g + \frac{\pi i}{\zeta_g} \phi_0 \exp(-2\pi i s_g z - 2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}(z)) \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (8)$$

第一式の右辺の第一項は ϕ_0 から ϕ_0 への散乱で、位相のずれはないが、第二項は Bragg 反射によつて ϕ_g から ϕ_0 へ移る時に $2\pi i s_g z$, および歪による $2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ という2つの位相変化が起きる。(8)の連立方程式の解は2つ存在するが、それらが先に示した2つの Bloch 波、(1)の波と(2)の波にほかならない。

欠陥による格子歪 $\mathbf{R}(z)$ は格子面間距離の変化と、格子面の傾きの変化に分けて考えられるが、前者の効果は後者に比べて一般に無視しうるほど小さい。以後の議論で、格子面の傾きだけを考えれば像を直観的に理解できるのはこのためである。

3. 格子欠陥の性質の判定における基本的条件

具体的に代表的格子欠陥の歪場の性質を調べる方法を検討する前に、その基本的な点について確認しておこう。

この目的のためには2波動力学条件がすべての解析の出発点になっている。これは回折パターンでは透過波と一つの回折波だけが現われていること、また電顕像では図5(a)のような消衰帯の近くで、しかも他のコンターが近くに存在しないことに相当する。結晶を傾斜装置を使つてこのような条件にするわけであるが、細いコンターが多く横たわつたり交叉したりしている所は不規則で曲率が大きい場所であるから2波条件になりにくい。

加速電圧の上昇とともに反射球の半径が増大するから2波条件は得にくくなる。一方高压電顕で厚い試料を見る場合、電子波の透過するのは低指数反射による異状透過領域だけであるから、見えるところは必然的に2波動力学条件を満たしている。図5(a)の2つのバンドコンターが互いに近接する傾向もある。さらにこうした厚い試料を透過した波はほとんど非弾性散乱*を受けた波であるから、本稿における弾性散乱*を仮定した解析は厳密にはそのまま適用できない。しかし実際に非弾性散乱で失われる電子波のエネルギーは10eVのオーダーで、加速電圧100keV程度のエネルギーに比べて像に対する大きな影響はないとされている³²⁾。

ここでさらに単純でしかも多くの研究者が過ちを犯し

* 結晶を透過した波が入射した波と同じエネルギーを持つとき、つまり波長が変わらない場合に、これを弾性散乱という。それに対して電子のエネルギー状態を励起したりフォノンやプラズモンを発生させて波長が長くなるものを非弾性散乱という。

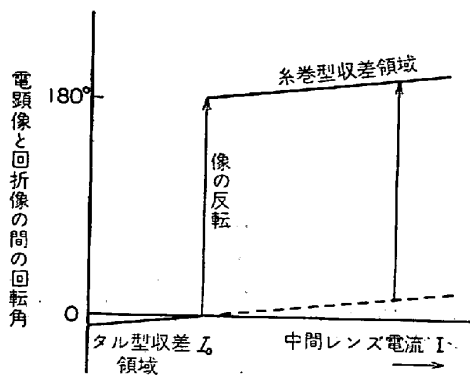


図 8 中間レンズ電流と像の回転. 制限視野回折パターンは I_0 で得られ, それ以上の電流値では像は 180° 反転する.

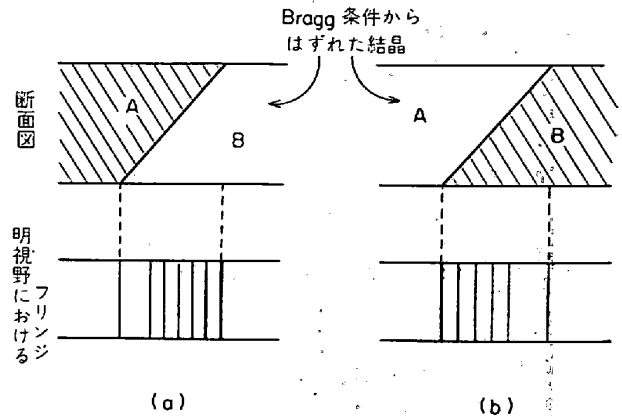


図 9 片方の結晶が Bragg 反射条件に近いときの結晶粒界の等厚干渉縞. 斜線の結晶が反射条件に近い.

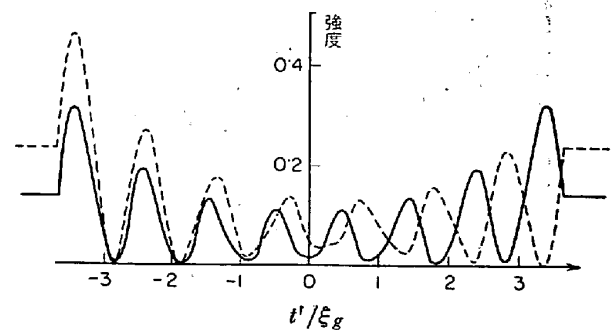


図 10 異状吸収効果を考慮した $\alpha = +2\pi/3$ の S.F. 像の計算例⁷⁾. $t/\xi_g = 7.25$, $w = -0.2$. 実線は明視野, 点線は暗視野. 明視野では両端のフリッジが明るい. t' は厚さ方向の座標.

易い問題に注目しよう. それは電頭像と制限視野回折パターンの間の方位の回転である. この回転角の測定は通常中間レンズの電流 I を変えて回折パターンが得られる I の値 I_0 の上下で像の回転を調べ, I_0 に内挿する方法が用いられていると思われる. $I < I_0$ におけるピアダル型収差の領域では, 対物レンズと中間レンズは一つの合成レンズとして作用するから, 対物レンズによる像の反転* は起きない. すなわち回折像と電頭像は「通常」の回転角の補正だけでよろしい. しかしわれわれが最も多く使っている $I > I_0$ の糸巻収差領域では, 図 8 に示すように通常測定した回転角に更に 180° を加えなければならない. この問題は g の方向のみを問題にする大多数の実験には関係ないが, g の向きが成否をにぎる格子欠陥の性質の判定においては, まつたく反対の結果になる³⁾恐れがあるので特に注意してほしい. 写真フィルムの焼付による裏表の反転も要注意の一つであろう.

4. 結晶粒界と積層欠陥 (S.F.)

4.1 面欠陥によるフリッジ

面欠陥としてある意味で対照的な粒界と積層欠陥 (S.F.) を対比させてみよう. 粒界はその両側で結晶方位が異なるから, 一般にはどちらか一方の結晶だけが Bragg 反射を起こしているのに対し, S:F. では欠陥をはさんで結晶方位はまつたく同一である点が異なっている.

まず試料面に対して適当な傾きを持った粒界に着目する. 図 9 で斜線を施した結晶粒が Bragg 条件に近く, 他の粒はそれから十分離れた方位であると考えよう. 結晶が 2000 \AA 程度より厚く, 吸収の効果がある場合は, 下面における波の強度は Bragg 反射を起こしているほうの結晶粒の尖端に強い消衰フリッジを生ずる. これは丁度 Bragg 条件から遠いほうの結晶を除外したくさび形結晶によるフリッジとだいたい同じである. このフリッジの数と ξ_g の値から試料の厚さが測定できる.

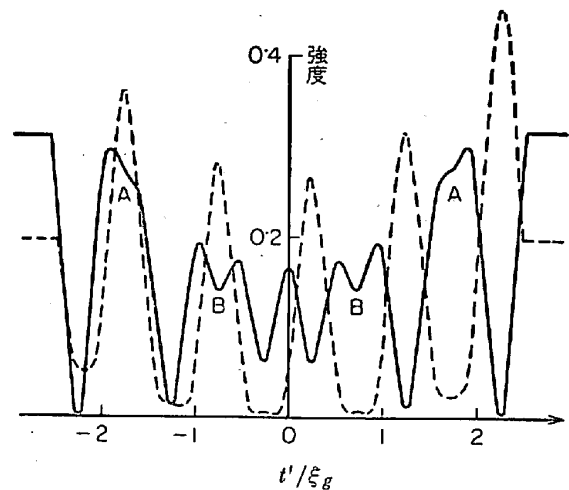


図 11 図 10 と同様の計算を $\alpha = -2\pi/3$ について行なった結果⁸⁾. $t/\xi_g = 5$, $w = 0$. 両端のフリッジが明視野 (実線) で暗い.

次に S.F. がやはり傾いて存在する場合はどうなるか. bcc の S.F. は構造が不明なので, ここでは fcc について記そう. fcc の S.F. は界面において原子面が一枚不足 (intrinsic 型) または過剰 (extrinsic 型) に存在するものと考えてよい. 図 10, および 11 に S.F. によるフ

* レンズで実像を結像させると, 像は磁界レンズによる回転のほか反転する.

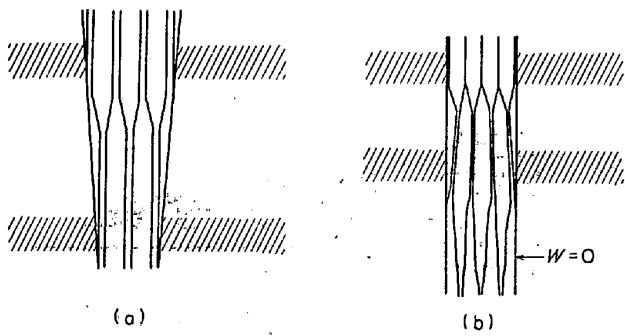


図12(a) : S.F. 像プロフィールに及ぼす厚さ t の効果 (w 固定).

(b) : w の効果 (t 固定)¹¹⁾.

リングの計算例を示す。S.F. フリンジの第一の特徴は、上下の試料面近くでは、中心部に比べてフリンジの振幅が共に大きいことで、これは粒界の場合に示したように、Bragg 反射を起こしている欠陥上下の結晶のそれぞれの尖端でフリンジが強く表われると考えてよからう。第2に図 12 に示すように、厚さや回折条件によつてフリンジの位置が変わること¹¹⁾で、これによつて S.F. が粒界か知ることができる。また w が大きいときは、欠陥の片方の結晶を取り去つたくさび状結晶におけるフリンジと同じ間隔の弱い縞になるのに対して、 w が小さいときはその 1/2 の間隔の強い縞が生ずる¹¹⁾¹³⁾。

4.2 S.F. の傾きの判定

吸収がなければ、格子欠陥の像は明視野と暗視野とで互いに相補的、すなわち重ね合わせれば 1 になる。しかし実際には吸収の効果によつて相補性がくずれる。この事実を使つて、S.F. および転位やループが上面側また

は下面側のどちらに近いかを知ることができる。ここでは上下面はまたがつて存在する S.F. について調べるが、転位についてもまったく同じであり、ループについては後述する。

(1) S.F. フリンジが最もはつきり見える回折条件を捜す。こうすることによつて結晶は特定の g に関して Bragg 条件に非常に近い状態にある。

(2) 制限視野回折像を観察し、2 波条件が達せられていることを確認する。

(3) 明視野像と暗視野像を比較し、両者でフリンジの明暗が反転しているほう、つまり相補性のあるほうが吸収を受けていないから下面、反対に明暗が同じ位相のほうが上面である。図 10 と図 11 をみればこのことが了解される。

4.3 S.F. の性質の判定

fcc の S.F. が試料面に対して傾いて存在する場合、intrinsic か extrinsic かを判定する方法を橋本⁷⁾および GEVERS¹²⁾によつて示そう。

4.3.1 HASHIMOTO, HOWIE, WHELAN⁸⁾⁹⁾の方法

(1) 明視野で観察した S.F. フリンジの最も外側が明か暗か調べる。この端に一番近いフリンジが地より明るいときは図 10 と 11 から S.F. による位相角変化 $\alpha = 2\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ が $+2\pi/3$ 、反対に暗い時は $\alpha = -2\pi/3$ である。写真 2 では α は正である。

(2) 次に制限視野回折パターンから g と R の方向と符号(向き)を判定する。 g の符号は図 5 のようにして判定される。 R の方向は、原子面を挿入または除去することによつて生ずると考へてよいから、欠陥面に垂直である。 R の符号は上側の結晶を固定して考えたときに、

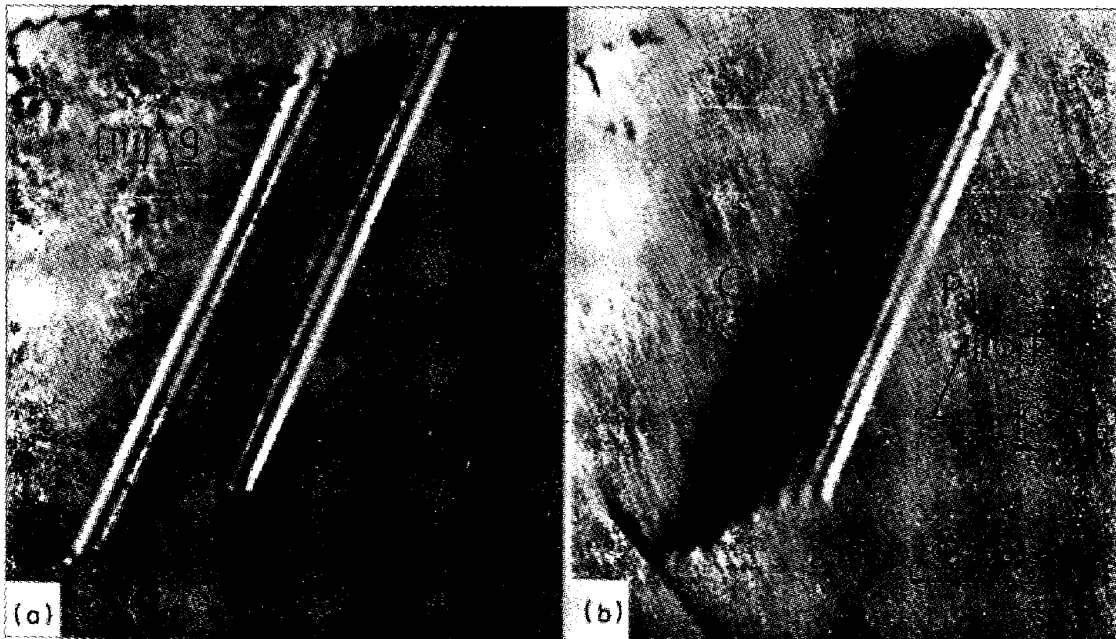


写真 2 Cu-7%Al の $\alpha = +2\pi/3$ の S.F. の明視野像 (a) と暗視野像⁷⁾。薄膜法線は $[101]$ で S.F. は (111) 面上にある。写真は図 13 の試料を下から見た場合に相当。(a) と (b) の相補性の比較から P が上面、Q が下面であることがわかる。

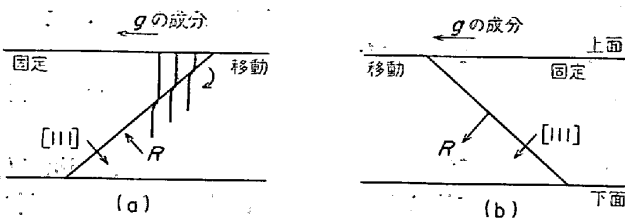


図 13 写真 2 に示された S.F. の可能な配置. 写真 2 (a) の両端のフリンジが明るいことから, $\alpha = +2\pi/3$, すなわち $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} > 0$ である. (a), (b) は共にこの条件を満たす.

図 13 のように下側の結晶をずらして S.F. を導入するための移動を \mathbf{R} の方向と定める. (a) では intrinsic, (b) では extrinsic である.

(3) 最後に図 13 (a) と (b) の二つの可能性のうち, (b) を前節の傾きの判定法で除去すれば, 写真 2 の S.F. は intrinsic 型であることが結論される.

フリンジの明暗から S.F. の性質が判定できる理由と, その覚え方は, S.F. が微視的にみれば欠陥のまわりで反射面が図 13 (a) のように局部的に回転していることに着目すればよい. マトリックスで $s_g = 0$ とすれば, 欠陥による格子面の回転は intrinsic 型では図のように逆格子点 \mathbf{g} が反射球の内側 ($s_g > 0$) に入ることになり, 異状透過によつて明視野でフリンジの端が明るくなる.

4.3.2 GEVERS, ART, AMELINCKX¹²⁾¹³⁾¹⁵⁾ の方法

この方法は \mathbf{R} の向きについて特別の約束が不要でしかも欠陥の傾きを調べることなく性質の判定ができる. 暗視野で S.F. を観察し, 表 2 の附図に示すように暗い縞から明るい縞へ向かつて引いたベクトル \mathbf{L} と \mathbf{g} とのスカラー積 ($\mathbf{g} \cdot \mathbf{L}$) の符号と, \mathbf{g} の指数とから判定される. 結果を表 2 に示すように, B クラスの反射すなわち \mathbf{g} が {111}, {220}, {400} の場合には \mathbf{g} ベクトルが明るい縞の方向を向けば, extrinsic, 暗い縞のほうを向けば intrinsic である. 反対に A クラスの反射では結果が逆になる.

表 2 GEVER ら¹²⁾¹³⁾¹⁵⁾の方法による S.F. の性質の判定法

クラス	\mathbf{g}	$(\mathbf{g} \cdot \mathbf{L}^*)$	Extrinsic と Intrinsic の別
A	200	+ --	I E
B	400	+ --	E I
B	220	+ --	E I
B	111	+ --	E I
A	222	+ --	I E

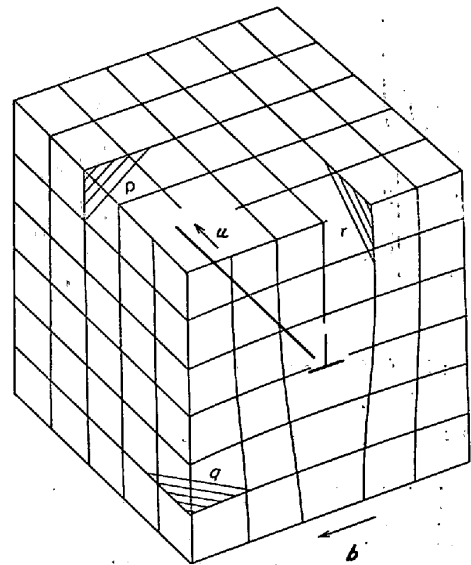


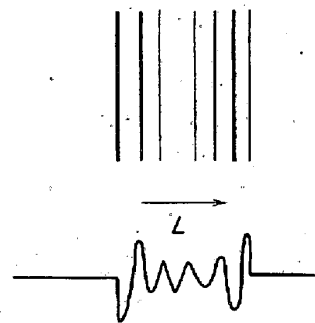
図 14 刃状転位による格子面のわん曲. まつたくわん曲していないのは p 面だけであるが, q 面でも $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ を満たしている.

5. 転位の Burgers ベクトル

Burgers ベクトルの決定の前に, 転位の像が生ずる理由を考えよう. 転位がよく見えるのは図 5 (a) の α または η 領域である. ここでは地は Bragg 条件から少しはずれているわけであるが, 転位芯のまわりの格子の曲がりのために, その一部に局部的に Bragg 条件に近づく所が存在する. このことは図 5 のコンターが転位芯の近くに「つめ込まれた」と考えてよい. これがすなわち転位像にほかならない.

これから容易に察せられるように, Bragg 条件からどちらへはずれるか, すなわち \mathbf{g} および s_g の符号によつて転位の像は 芯の位置から異なる方向へ片寄つて生ずる. この性質を用いて後述するように Burgers ベクトル \mathbf{b} の符号が決定される.

もし反射にあずかる結晶面が転位によつてまつたく歪



* ベクトル \mathbf{L} は S.F. の暗視野像上で暗い縞から他端の明るい縞に向かつて縞と垂直に引いたベクトル

を受けていない面であれば、転位のコントラストはまったく生じない。このことを使って b の方向を決定することができる。転位が見えないための(十分)条件は、

$$g \cdot b = 0 \dots\dots\dots (9)$$

および

$$g \cdot b \times u = 0 \dots\dots\dots (10)$$

である³⁾。ここで u は転位線の方に沿ったベクトルで、記号 \times はベクトル積を表わす。らせん転位は常に(10)式を満足している。刃状転位では図14からわかるように、(9)式を満足している p 面および q 面のうち、 p 面は確かに無歪面であるが、 q 面のほうはわずかに曲

がっている。この q 面によつて結像させるとコントラストが相当生ずるので、それを除外する条件式が(10)式である。

5.1 b の大きさの決定

原理的にはこのようにして b の方向と向きが決定できるが、その大きさ $|b|$ はどうであろうか。このためには $g \cdot b \equiv n$ の大きさを知る必要がある。立方晶の完全転位では n は整数である。

5.1.1 HOWIE, WHELAN¹³⁾ の方法

HOWIE らの計算によると、Bragg 条件を満足するところで転位像は、 $n=1$ では転位芯の位置に単一の強度

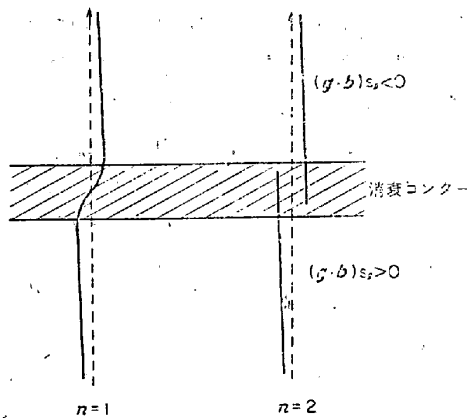


図15 コンターを横切る転位像(実線)の芯(点線)からのずれ³⁾。図は蛍光板上からみた場合を示し、 $n \equiv g \cdot b$ である。

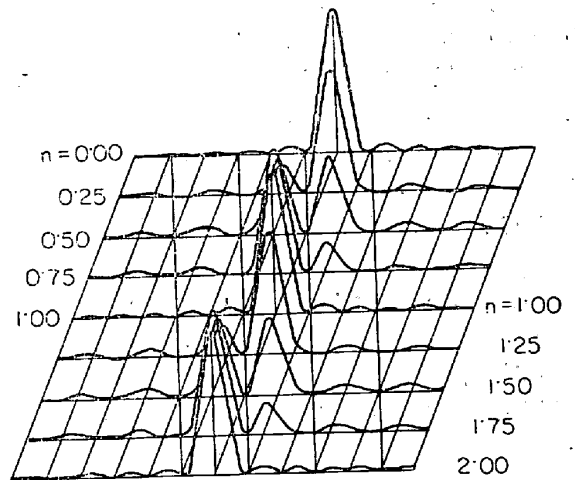


図16 らせん転位を横切るコンターの強度分布の変化¹⁴⁾。

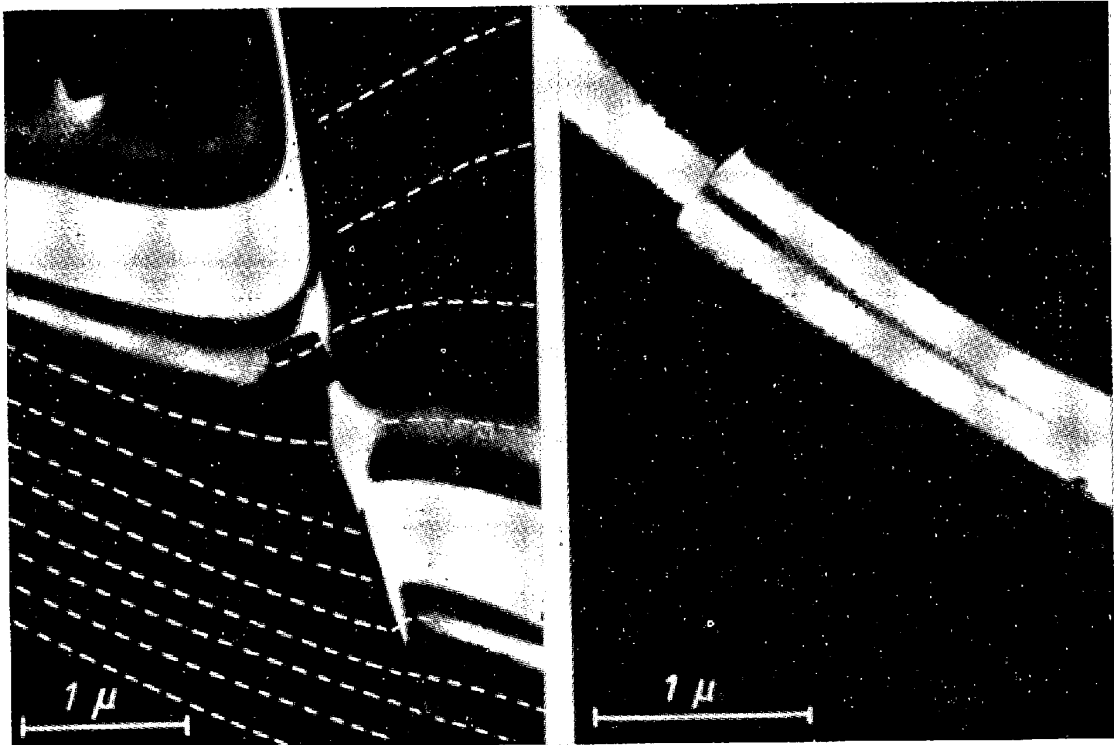


写真3 グラファイトの転位を横切るコンターのずれから n を求める例¹⁴⁾。
(a) : $n=2$, (11·0) 反射, (b) : $n=\frac{1}{2}$, (20·1) 反射。

ピーク, $n=2$ では二つのピークを持つ. s_g の増加とともに $n=1$ のピークは位置が図 15 に模式的に示すように徐々にずれるが, $n=2$ では位置は変わらず, ピーク強度が変化する. 転位線がコンターを横切ると像はずれる. このずれに注目すれば n を決定できる.

5.1.2 BOLLMANN¹⁴⁾ の方法

BOLLMANN は n を決定するのに, 転位に交わる消衰コンターのくいちがいに着目する方法を提案した¹⁴⁾. コンターのプロファイルは完全結晶中では図 16 の $n=0.00$ の場合に示される弱い副極大を伴っている. 転位に近づくと図 n の値が変化し, 極大の位置がずれ, 隣合う極大間の強度分布が変化する. 転位を完全に横切った所では $g \cdot b = n$ のプロファイルになる. したがって転位による消衰コンターの途切れ方を図 16 と比較すると n を推定することができる. 写真 3 はその例を示す. 写真の副極大を対応させながら数えたと(a)では 4 本つまり $n=2$ であることがわかる.

5.2 b の方向の決定

通常 Burgers ベクトルの決定といえば方向を決めることを意味する. そこでとくに α 鉄を中心に行なわれた DINGLEY ら¹⁵⁾ と FRANCE ら¹⁶⁾ の方法について, 問題点を含めて検討しよう. 結論を先に述べれば, $g \cdot b = 0$ という規準はいろいろ問題がある.

5.2.1 DINGLEY, HALE¹⁵⁾ の方法

N.P.L. の DINGLEY と HALE は変形した α 鉄および鉄合金の転位の b を, $g \cdot b = 0$ の規準に従って暗視野法で調べた. bcc 構造の転位の b として幾何学的に可能なもの*は一応 $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$, $a \langle 100 \rangle$ および $a \langle 110 \rangle$ である.

表 3 DINGLEY-HALE¹⁵⁾が b.c.c.格子中の b の決定に用いた g と, それに対する $g \cdot b$ の値.

$g \backslash b$	$\frac{1}{a} \{321\}$	$\frac{1}{a} \{310\}$	$\frac{1}{a} \{222\}$
$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$	$\pm 3, 2, 1, 0$	$\pm 2, 1$	$\pm 3, 1$
$a \langle 100 \rangle$	$\pm 3, 2, 1$	$\pm 3, 1, 0$	± 2
$a \langle 110 \rangle$	$\pm 5, 4, 3, 2, 1$	$\pm 4, 3, 2, 1$	$\pm 4, 0$

この三者を区別できる g ベクトルを調べると, 表 3 に示すような高指数となる. たとえば $\{321\}$ の反射を用いると $a \langle 100 \rangle$ と $a \langle 110 \rangle$ の b をもつ転位は $g \cdot b = 0$ を満足しないが, $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ では満足するものがある, したがって $\{321\}$ 暗視野像で見えない転位があれば, それは $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ 転位である. こうして判定された転位の b は, 加工歪, 加工温度, さらには加工状態か焼なまし状態かによらず, $a \langle 110 \rangle$, $a \langle 100 \rangle$ 転位がそれぞれ 20% ずつも存在する, この結果は「常識」に反するので, DINGLEY ら自身も当惑したが, 現在では次に述べるようにあやまりであつて, 事実は常識どおり 99% 以上は $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ 転位であると信じられている.

DINGLEY らがなぜこのような結果になつたかを考えてみると, 第一に $g \cdot b = 0$ でなくても転位が見えないことは多く, とくに s_g が大きいとそうなること, 第二に 2 波条件が良く満たされていないのに, 暗視野法を用

* 幾何学的には可能であつても弾性エネルギーが高く, 存在できないものおよび Peierls 力が大きく働きそうもないものなどについて考慮しなければ.

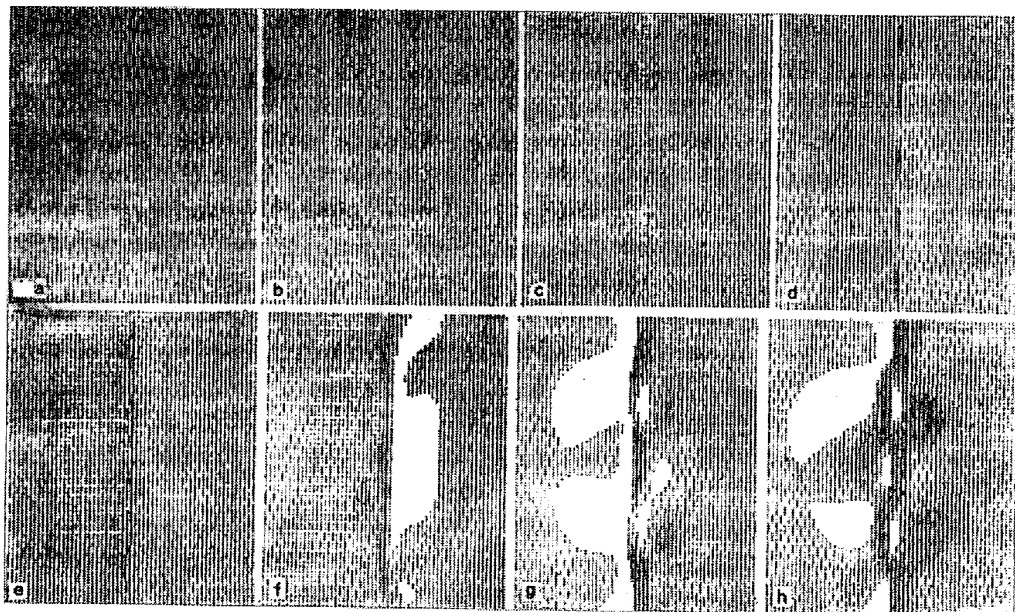


図 17 コンピューターによる転位像のコントラストに及ぼす s_g の効果の表示例¹⁶⁾. bcc 格子のらせん転位, $b = \frac{a}{2} [1\bar{1}1]$, $g = \bar{3}01$; (a) $w_g = 3.5$, (b) $w_g = 3.0$, (c) $w_g = 2.5$, (d) $w_g = 2.0$, (e) $w_g = 1.5$, (f) $w_g = 1.0$, (g) $w_g = 0.5$, (h) $w_g = 0.0$

いると、まったく別の反射が多重反射によつて像にきいてくる可能性があることで、とくにコントラストの弱い状態では無視できない。

5.2.2 HEAD, LORETTO, HUMBLE and FRANCE^{16)~18)}の方法

HEAD らは同じく bcc の β 黄銅や α 鉄* における b を決定するのに、DINGLEY らと対照的に低指数反射 ($\{211\}$ より小さい g) と明視野像を用い、その代わりに同一場所をいろいろの角度から異なる g でたくさん写真を撮った。 b の決定は少なくとも二つの条件で転位が消失することによつて行なつた**。結果は 99% 以上の転位は $\frac{a}{2}\langle 111 \rangle$ の b を持っていた¹⁶⁾。

彼らはさらに $\{222\}$ などの高指数反射を用いると $g \cdot b$ が零でなくても小さい時は転位像がみえないことを実験的に明らかにした。図 17 は彼らの計算した (301) 反射による転位のコントラストを、 w 変えて求めた結果を示す。 w が 2 か 2.5 以上では事実上転位が見えないことがわかる。こうして彼らは「見えないという規準」より、観察像と計算像の「比較法」による b の決定を提案している。

大きな g を用いると s_g も大きくなるのが、DINGLEY らのあやまりの原因であるが、この理由を考えよう。図 18 に模式的に示すように、結晶がゆるやかに曲がつている角度範囲 $\Delta\theta$ に対して、 s_g は g とともに増大する。このことはまた転位がよく見える s_g の小さい領域が、 g の増加とともにコンターの周辺に狭く局限されることに対応する。 s_g の増加によつてコントラストが低下するのは、格子欠陥に関する情報を持つている反射面と、電子の相互作用が弱まるからである。その弱まり方は、振幅位相関形の半径すなわち s_g^{-1} に比例して変化するためである。

5.3 転位ループの性質 (b の向き)の決定)

図 15 に示したように、転位の像は $(g \cdot b)s_g$ という量の符号によつて芯の位置から反対方向へずれる。この性質を利用して b の符号を決定できる。

5.3.1 GROVES, KELLY³³⁾の方法

転位ループの大きさが ξ_g より大きい場合で、明らかに転位の像を見分けられる場合、それが interstitial 型か vacancy 型か (図 19 参照) を調べる方法を、GROVES らに従つて述べよう。これは b の向き (符号) を決定することと同じである。彼らは変形した MgO のり帯に存在するプリズマティックループの性質を判定し、それが vacancy 型であることを見出した³³⁾。

まずこれまでと同様に特定の g について 2 波動力学条件にもつてゆき、性質を判定したい転位ループがコンターの反対側の $+s_g$ および $-s_g$ の条件でそれぞれ写

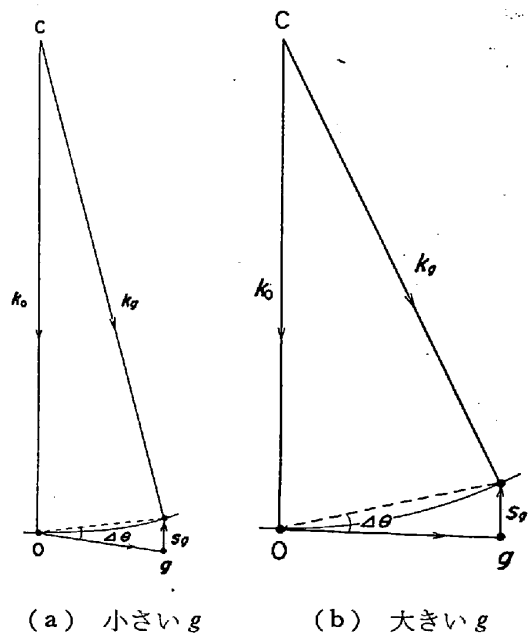


図 18 g の大きさと s_g の大きさの相関性。ペンドコンターから $\Delta\theta$ だけ格子面が曲がつた位置における s_g は g とともに増加する。

真を撮る。こうするためには図 5 の二つのコンターがかなり離れている高指数反射で、比較的薄い試料を用いなければならない。そうでない場合は次に述べる異状透過法が適している。今 $+s_g$ の場合を図 19 に従つて説明しよう。

ループの近くでの格子面の曲がり、矢印をつけた部分でちょうど s_g を零に近づける方向に局部回転している。この結果、(a)、(b)いずれの場合も実際より小さなループ像が観察される。実験手続上は $-s_g$ の条件下での大きさと比較するわけである。こうして最後に(a)と(b)を区別すれば完全にループの性質を決定できる。このために同一の回折条件を保つて*試料を大きく傾け、像の形状変化を調べる。

5.3.2 異状透過の方法³⁾

g を固定して s_g の符号を変える代わりに、 s_g を正にして g の符号を変える方法で、このほうが実際的である。これは同一視野を図 5 (a) の α と ξ とで撮ることに等しい。

プリズマティックループがビームに平行な面に乗っている場合は、 $(g \cdot b)s_g$ の符号による判定法が使えない。しかし変形によつて導入された双極子ループは外力と 45° の方向のせん断応力が最大なために活動する転位の b に特徴がある。この方法で最も決めやすい場合でも図 20 のような配置をとると考えられる。引張変形の場合は測定にかかるループは interstitial 型ばかりである可能性も起る。大角度の傾斜装置を併用する必要がある。

なおこれまで刃状転位からなるプリズマティックループ

* これは DINGLEY らから提供された同じ試料を用いて解析した。

** 一つの反射だけで $g \cdot b = 0$ であることがわかつて、 b は g に垂直な面内にあることしかわからない。

* このためには g 方向を軸として試料を傾ければよい。

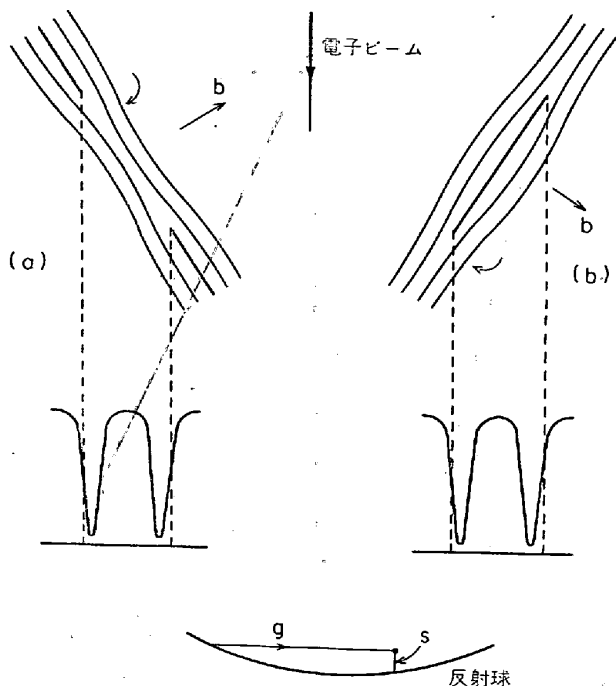


図19 像の大きさに及ぼす転位ループの性質と傾きの効果を示す模式図⁹⁾. 図は $(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})_{sg} > 0$ の場合を示す. 曲がついた矢印は s_g を零に近づく局所的格子の回転を表わす.

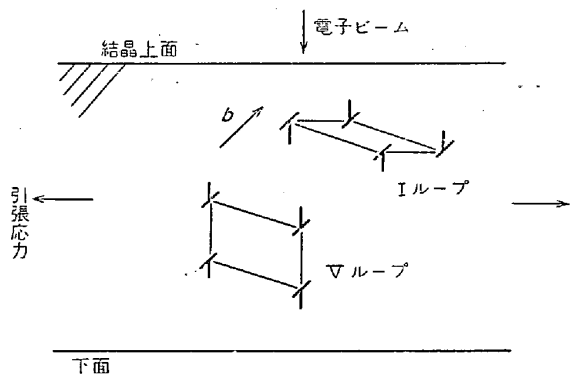


図20 引張変形によつて形成される転位ループの、弾性双極子相互作用を考慮した可能な配列. 圧縮変形では Vacancy ループと Interstitial ループが逆になる.

について考察したが、この方法は刃状転位からせん転位かによらず適用できるから、らせん成分を含む shear ループの性質 (応力によつて拡大するか減少するか) も同様に解析できる.

5.3.3 BOLLMANN¹⁴⁾の方法

BOLLMANN は転位に交わるコンターの曲がりやくいちがいから \mathbf{b} の符号を知る方法を示した. \mathbf{b} の符号は転位線の向きを指定するベクトル \mathbf{u} の符号とともに指定しなければ意味を持たない. これは結局 $(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})$ という量の符号 $\text{sgn}\{(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})\}$ を決めればよい. とここでこの符号は薄膜試料の曲がりの向きを指定するべ

反射球	
前面から	
上から	
\underline{C}	\odot \otimes
\underline{D}	\odot \otimes
$\text{sgn}(\underline{C} \cdot \underline{D})$	+
\underline{s}	
\underline{A}	
\underline{g}	
$[\underline{A} \times \underline{g}]$	\otimes \odot \otimes \otimes \odot \otimes
$\text{sgn}([\underline{A} \times \underline{g}] \cdot \underline{s})$	++

図21 転位に交叉するベンドコンターの曲がりから、 \mathbf{b} の符号を測定する方法 (本文参照)¹⁴⁾.

クトル \mathbf{C} と転位線によるコンターのずれの向き \mathbf{D} とのスカラー積の符号に等しい. すなわち

$$\text{sgn}\{(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})\} = \text{sgn}(\mathbf{C} \cdot \mathbf{D}) \dots \dots \dots (11)$$

ここで \mathbf{C} は試料面に垂直で、曲率中心に向かうベクトル、 \mathbf{D} はコンターに沿つて転位に近づくとき、コンターが転位によつて曲げられる回転の向きを表わすベクトルで、図 21 に示したように右ネジの法則に従つて向きを選ぶ. この節の解析ではすべて蛍光板上の像を上から見る場合について示してある. \mathbf{C} の向きは試料を傾けたときのコンターの動きから判定できるし、また $+\mathbf{g}$ と $-\mathbf{g}$ のコンターの相対位置からも知ることができる.

BOLLMANN はさらに $\pm \mathbf{g}$ の一対のコンターが存在する場合には、転位線に垂直で転位芯から像の位置に向かうベクトル \mathbf{A} を用いて

$$\text{sgn}\{(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})(\mathbf{g} \cdot \mathbf{u})\} = \text{sgn}([\mathbf{A} \times \mathbf{g}] \cdot \underline{s}) \dots \dots (12)$$

から求められることを示した. 図 21 にまとめて結果を示す. ただしループの場合、この方法で決定できるループの大きさはコンターの幅に比べて小さくないという条件がつくであろう.

6. 微小な弾性介在物、転位ループの性質

ASHBY と BROWN は ϵ_g より相当小さく、黒白の点

として観察される弾性介在物、すなわち析出物や介在物、転位ループなどのコントラストを、地が弾性的に歪を受けているとして計算した¹⁹⁾²⁰⁾。この介在物の大きさや形、歪の方向、地を拡張させているか縮小させているかという歪の符号を知ることがこの方法によつて可能である。しかし結論を先に述べれば、多少問題がないわけではない。それはコントラストの原因はマトリックスの歪によるもののほか、介在物の構造因子が地と異なることによるもの、格子のくいちがいによる整合歪やモアレ、異面フリンジ等々種々あり、介在物が小さい場合にそれらを区別するのはむずかしい。さらに致命的なのは試料表面からどのくらいの深さに存在するかを知らなければならない。

6.1 球状介在物

大きさ r_0 の球形の介在物が弾性的に地を歪ませている場合、Mott-Nabarro の表式

$$\left. \begin{aligned} R &= \zeta r_0^3 / r^2 & r > r_0 \\ R &= \epsilon r & r \leq r_0 \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (13)$$

を用いてコントラストを計算した¹⁹⁾。計算は $s_g = 0$ で吸収を考慮して行なつたが結果は s_g の値にあまりよらない。球状の介在物の場合の大きな特徴は、歪の方向性がないので line of no contrast (図 22) は常に g に垂直になる。

表面から ξ_g の 2 倍程度以上内部に入つた所にある介在物の像は一對または単なる黒点としてみえるが、表面に近いものでは非対称な白黒の対になる。S.F. の所で述べたと同じく、吸収の効果が少ない試料下面付近では明視野と暗視野が相補的であるが、上面近くのものとは両者が同じコントラストを持つ。暗視野像の白黒のコントラストは、上面下面にかかわらず ϵ と g の符号に依存している。したがつて ϵ の符号つまり介在物が地を拡張させている interstitial 型か、縮小させている vacancy 型かを判定する方法は次のようになる。

(1) 目的の視野に暗視野のコンターを持つてくる。

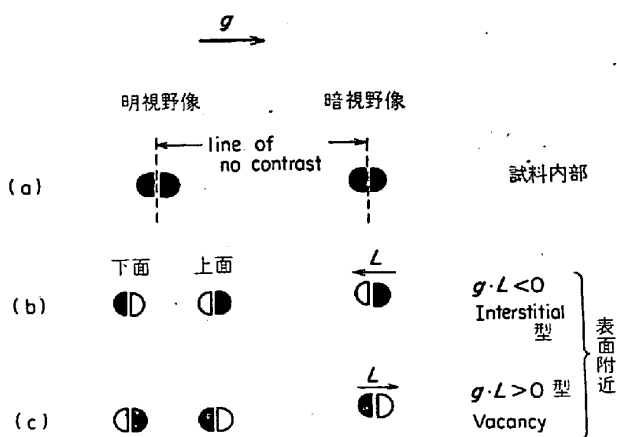


図 22 球状介在物のマトリックスの歪に基づくコントラスト¹⁹⁾ (筆者作図)。

このコンターは図 6 に示したように $s_g = 0$ の位置にある。

(2) 図 22 に示したように暗視野像上で黒白方向のベクトル L が g の方向に向けば interstitial 型、反対方向に向けば vacancy 型である。

ところが問題はそれ程単純ではない。上の結論を下させるのは、実は表面から $0.3\xi_g$ より浅い所にあるものの像についてである。それより内部では深さによつて白黒が反転する²¹⁾。この反転が起きる深さは、図 6 の消衰フリンジに対応して、ほぼ $\xi_g/4, 3\xi_g/4, 5\xi_g/4, \dots$ である²¹⁾²²⁾。この間の層状領域を図 23 に示すように L_1, L_2, \dots と名づける。図 23 は vacancy 型の場合である。実際は吸収効果のために L_1 に比べて、 L_2, L_3 と内部に入るにつれてコントラストが弱まるからコントラストの強弱から区別は可能である。

ϵ の符号を決定するために上述の非対称白黒コントラストを暗視野で調べるときは、レンズの収差によつて像が非対称になるのを防ぐ必要から、電子銃を傾ける等の方法により暗視野スポットを観察レンズ系の光軸上にもつてくる工夫を忘れてはならない。 ϵ や r_0 の大きさを求めるには表面から十分離れた内部の像を用いて定量的に解析できるが、原論文¹⁹⁾を参照されたい。

6.2 プリズマティックループとプリズマティック析出物

プリズマティック析出物とは板状の析出物で、板に垂直な方向にだけ地とのくいちがいがあるもので、 b に相当する変位ベクトルが格子のベクトルと一般に異なるほ

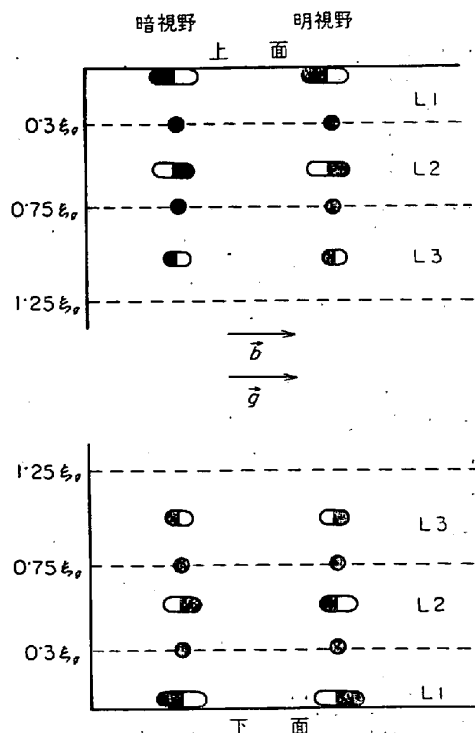


図 23 Vacancy 型介在物 (ループまたはクラスター) のコントラストと、表面からの深さによる効果²¹⁾。

かは、ループとの相異はここでは考えない。

g に垂直なループに対する ASHBY らの計算結果²⁰⁾は、第一近似では球状介在物と同様で、 g とループ法線のなす角が 30° 以下では前節の結果がそのまま適用できる。球対称の歪を持たないことから、line of no contrast と g はかならずしも垂直ではなく、ループの面の方向によつて大きく影響される点が相異点である。この場合も図 22, 23 のように $(g \cdot L)$ の符号によつて interstitial か vacancy を判定すればよい。

ループが shear 成分をもち、その大きさが、プリズマティックの成分より大きい時は line of no contrast と b は平行に近づく問題²⁰⁾を始め、具体的に計算値と比較しながら解析を進める必要がある。

7. 最近の問題

これまで述べたように格子欠陥の像は、欠陥のまわりの弾性歪によりコントラストを得ている。つまり光学的な像とは若干性質が異なるわけである。その結果、欠陥の微細構造について知ることがほとんどできない。最後にこの問題について少し考察しよう。

7.1 ウィークビーム法²⁴⁾

欠陥の像がかなりの拡がりを持つのは、欠陥を Bragg 条件の近くで観察するため、欠陥の周辺の弾性的に歪んだ広い領域が像に寄与するからである。欠陥のごく近くの歪の大きい領域だけからコントラストが生ずるようにすれば、像がずつとシャープになるはずである。このためには動力学条件からはずれた s_g の大きい状態で観察すればよい。しかも近くの他の反射が入らないように暗視野法を用いる。これがウィークビーム法である。この方法を用いると転位芯と像の位置の相対的ずれが小さくなるから、微小点欠陥クラスターの大きさ²⁵⁾、接近した部分転位²⁴⁾や超転位²⁶⁾の間隔をより正確に決定できる。やり方を以下に具体的に示すと、図 24 に示すように、たとえば $+g$ の反射条件にもつていつて、照射ビームを傾けて $-g$ の方向が観察レンズ系の軸に一致させて $-g$ で暗視野像を撮ればよい²⁴⁾。また別のやり方では、 $+g$ と $+2g$ のスポットを強い反射にもつていつて、 $+g$ で暗視野を撮る²⁷⁾。こうすることによつて、低指数反射で s_g を大きくできる。同一線上に並んだ系統反射スポットを用いるのは、 s_g を量的に推定するためと、暗視野像に対する多重反射の影響をさけるためと思われる。 s_g を大きくすれば、何もこのような方法によらなくてもよいわけであるが、不必要な反射が近くにならないことは必要である。

ウィークビームで像を撮るときはさらに吸収が問題にならないくらい薄い試料を用い、消費によるうなりが生じないように試料の厚さが一様で、転位線が膜面に平行であることが望ましい。

この方法で 20 \AA 以下の解像力は容易に得られる。

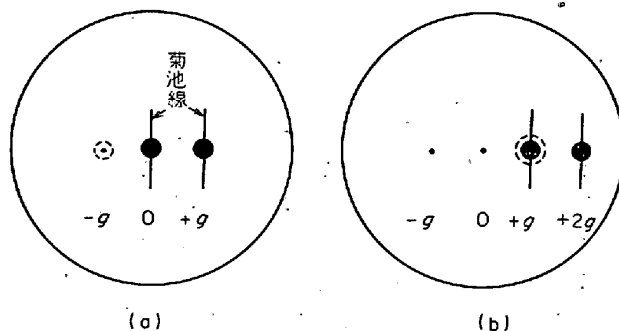


図 24 ウィークビーム法における回折パターンの中の二つの例²⁷⁾。大黒点は強い反射を起しているスポット、小黒点は弱い反射スポット、点線丸は対物絞りの位置。

7.2 原子像

それではもつと直接原子を解像できる方法があれば、格子欠陥の構造を知ることができるわけである。よく知られているように、電子顕微鏡の分解能のテストに使われる格子像は、確かに原子面の間隔をもつた像で、場合によつては 1 \AA 前後の面間隔が分解されている。格子像を撮るには数 10 \AA の一様な厚さの試料を用意し、通常の観察に用いるより相当大きな絞りをういて透過波と格子面で反射した回折波の両方を通過させ、その波の干渉によつて反射面の周期に相当した干渉縞を作つたものである。小さい面間隔を分解するには、回折波と透過波のスポットの距離が面間隔に反比例して増加するから、それだけ大きな絞りが必要である。この絞りの大きさと分解できる面間隔の関係はハイゼンベルグの不確定性原理によつて両方共小さくすることはできない。超解像²⁸⁾など特殊な工夫をしないかぎり、絞りを大きくせず解像度を上げることはできない。

電子顕微鏡のレンズはしかしながら、光学レンズに比べてきわめて球面収差が大きいので、絞りを大きく拡げることはできず、また近い将来、電子レンズの性能が著しく向上する見込みもなさそうである。それでも 1 \AA くらいの分解能が現在得られているのなら、これで十分ではないかと考える向きもあろう。ところが事はそれほど簡単ではない。それは格子像における分解能の意味は、それだけで原子面を「直接」分解しているのではないからである。

その一つ、球面収差による分解能の制限は、回折ビームの拡がりを通じて次の二つの因子が関係してくる。第一に入射ビームの拡がり、第二に結晶の幅が有限であるための不確定性による拡がり、後者の効果は分解能 2 \AA を得るためには、少なくとも 500 原子層 (1000 \AA) の結晶の幅が必要である³⁾。このことは言い換えれば、 500 原子層からの情報がレンズの収差によつて 1 本の格子像に集められていることである。格子像はこの意味で

本来の像とは言いがたい。

こう述べてくると原子の像を分解させることは大変むずかしそうである。格子像についても一つの問題は、絞りを通過する強い透過波と回折波のために、その g に相当する周期の像だけが強く現われ、それ以外のフーリエ成分に関する知見は事実上失われていることである。試料がこのような強い周期性を持たない有機化物中に含まれる金属原子では、このような効果が起こらない。橋本らはこの手法を用いてウランとトリウム原子を撮影した²⁹⁾。

以上のほかにも、原子配列に関する知識を直接得るには、電子線の可干渉性、原子の保持の方法、SN比、位相差板によるコントラストの向上などが解決されねばならない。しかし今後は格子欠陥の研究もこういう方向に進むことが考えられ、すでに若干の努力がなされている。

8. おわりに

電子顕微鏡のテクニックの最も基本的なものの一つに、回折パターンによる方位の決定がある。電子回折では一般に精度が上がらないといわれるが、それは回折スポットの配列の対称性だけから解析するからである。Laue ゾーンの傾きや菊池線を使うと、 1° またはそれ以下の精度が可能になるが、誌面の都合で文献³⁰⁾³¹⁾をあげるにとどめる。制限した領域以外から回折スポットがまわり込む問題も、ここでは省略する。

文 献

- 1) 橋本初次郎: 私信
- 2) 朝永振一郎: 量子力学; みすず
- 3) P.B. HIRSCH, et al.: *Electron Microscopy of Thin Crystals*; Butterworths (1955)
- 4) 上田良二: 電子顕微鏡像の解釈とその応用, 金属学会 (1967); 固体物理, 3(1968), p.398, p.456
- 5) S. AMELINCKX, et al.: *Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science*; North-Holland (1970)
- 6) C. KITTEL: *Introduction to Solid State Physics*, Wiley
- 7) H. HASHIMOTO, A. HOWIE, and M.J. WHELAN: Proc. Roy. Soc., A269 (1962), p. 80
- 8) H. HASHIMOTO, A. HOWIE, and M.J. WHELAN: Phil. Mag., 5 (1962), p. 967
- 9) A. HOWIE: Phil. Mag., 14 (1966), p. 223
- 10) M. J. MAKIN: Phil. Mag., 20 (1969), p.1133;

- Proc. 7th Int. Congr. Electron Microscopy, Grenoble (1970), II-213
- 11) M.J. WHELAN and P.B. HIRSCH: Phil. Mag., 2 (1957), p. 1121
 - 12) R. GEVERS, A. ART, and S. AMELINCKX: phys. stat. sol., 3 (1963), p. 1563
 - 13) A. HOWIE and M.J. WHELAN: Proc. Roy. Soc., A267 (1962), p. 206
 - 14) W. BOLLMANN: Phil. Mag., 13 (1966), p. 935
 - 15) D.J. DINGLEY and K.F. HALE: Proc. Roy. Soc., A295 (1966), p. 55
 - 16) L.K. FRANCE and M.H. LORETTO: Proc. Roy. Soc., A307 (1968), p. 83
 - 17) A.K. HEAD, M.H. LORETTO, and P. HUMBLE: phys. stat. sol., 20 (1967), p. 505; p. 521
 - 18) A.K. HEAD: Aust. J. Phys., 20 (1967), p. 557
 - 19) M.F. ASHBY and L.M. BROWN: Phil. Mag., 8 (1963), p. 1083
 - 20) M. F. ASHBY and L.M. BROWN: Phil. Mag., 8 (1963), p.1649
 - 21) M. RÜHLE: phys. stat. sol., 19 (1967), p. 263, p. 279
 - 22) M. WILKENS: *Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science* p. 233
 - 23) T. YAMASHITA and K. OJIMA: Proc. 7th Int. Congr. Electron Microscopy, Grenoble (1970), II-271
 - 24) D.J.H. COCKAYNE, I.L.F. RAY, and M.J. WHELAN: Phil. Mag., 20 (1969), p. 1265
 - 25) F. HAUSSERMANN: Proc. 7th Int. Congr. E.M., Grenoble (1970), II-225
 - 26) I.L.F. RAY, R.C. CRAWFORD, and D.G.H. COCKAYNE: Phil. Mag., 21 (1970), p. 1027
 - 27) A. HOWIE and C.H. SWORN: Phil. Mag., 22 (1970), p. 861
 - 28) 小瀬: 応用物理, 37 (1968), p. 853
 - 29) 橋本, 能尾, 比野, 四本, 小野: 物理学会予稿集 (1971, Apr.) 7a D1
 - 30) C. LAIRD, E. EICHEN, and W.R. BITLER: J. Appl. Phys., 37 (1966), p. 2225
 - 31) P.L. RYDER and W. PITSCH: Phil. Mag., 15 (1967), p. 437; 同 18(1968), p. 807
 - 32) S.L. CUNDY, A. HOWIE, and U. VALDRÈ: Phil. Mag., 20 (1969), p. 147
 - 33) G. W. GROVES and A. KELLY: Phil. Mag., 6 (1961), p. 1527; 同 7(1962), p. 892
 - 34) L.E. THOMAS, R.M. FISHER, and C.J. HUMPHREYS: Proc. 7th Int. Congr. E.M., (1970), II-215