長崎大学大学院工学研究科研究報告　第４２巻　第７８号　平成２４年１月

# 行列表示による STEM 像シミュレーション法の開発

森村　隆夫

# Simulation of Scanning transmission electron microscope image by Bloch-wave method

by

Takao MORIMURA

In a Bloch-wave-based scanning transmission electron microscope (STEM) image simulation, a framework for calculating the cross section for any incoherent scattering process was formulated by Allen et al. They simulated the HAADF, BSE, EELS and EDX STEM images from the inelastic scattering coefficients. Furthermore, a skilful approach for deriving the excitation amplitude and block diagonalization in the eigenvalue equation were employed to reduce the computing time and memory. In the present work, we extend their scheme to a layer-by-layer representation for application to inhomogeneous crystals that include precipitates and atomic displacement. Calculations for a multi-layer of Si-Sb-Si were performed by multiplying Allen et al.'s block-diagonalized matrices. Electron intensities within the sample and EDX STEM images were calculated at various conditions. From the calculations, 3-dimensional STEM analysis was considered.

***Key words :*** *Bloch wave method, STEM, Bethe equation, EDX, HAADF*

## １．はじめに

近年の走査型透過電子顕微鏡(STEM; Scanning Transmission Electron Microscope)の発展は目覚ましく、その像解釈のためのシミュレーション法の開発が切望されている。動力学的回折理論に基づく STEM シミュレーション像はマルチスライス法 [1)-3)] と Bloch 波法の２つの手法によって計算される。マルチスライス法は欠陥構造をもつ試料に対する計算に有効である。Bloch 波法は、試料の周期構造を仮定しているため、完全結晶に対しては非常に有効である。しかし、試料が欠陥構造をもつ場合には、莫大な計算時間とコンピューターの容量が必要となる。

Bloch 波法による HAADF STEM シミュレーションは、最初、Pennycook らによって行われた [4),5)]。この手法は三石ら [6)]、山崎ら [7)] によって、積層試料に適用された。彼らは、電子線入射方向に積層する試料に対して、各層における Bethe 行列の積で波動関数を計算した。

一方、Allen らは EELS、EDX、BSE、HAADF に対する STEM シミュレーションを定式化した [8),9)]。これらの検出法に対する散乱断面積の式を統一化し、式中の非弾性散乱因子のみを変えることで、各検出法による STEM 像の計算を可能にした。また、励起振幅の導出や Bethe 行列のブロック対格化等の計算手法を工夫し、計算時間や容量を飛躍的に減少させた。

本稿では、Allen らの手法を発展させ、積層試料に適用する方法 [10),11)] を確立する。この手法を Si-Sb-Si 積層試料に適用し、EDX STEM 像のシミュレーションを行う。また、計算結果より STEM による 3 次元構造解析 [12)-16)] について考察する。

## ２．計算方法

STEM 像シミュレーションにおける波動関数は、Schrödinger 方程式を行列表示した Bethe の式

平成２３年１２月２２日受理

物質科学部門（Division of Chemistry and Materials Science）

$$\mathbf{AC} = 2K\mathbf{C}(\lambda^k)_D$$

によって求めることができる。$\mathbf{C}$ は、Bethe 行列 $\mathbf{A}$ の固有ベクトル $C_g^k$ からなる行列、$(\lambda^k)_D$ は固有値からなる行列を示す。添え字 D は対格化行列を、$K$ は結晶における平均波数を示す。Findlay らは STEM シミュレーションにおける反射を次式のように仮定した[9]。

$$\mathbf{g} = \mathbf{G} + \mathbf{q}_l\,.$$

$\mathbf{G}$ は $N$ 個の逆格子ベクトル、$\mathbf{q}_l$ は Brillouin ゾーン内の $m$ 個の連続ベクトルを示す。異なった $l$ に対する波動関数は相互作用しないので、$mN\times mN$ 次元の Bethe 行列はブロック対格化できる。その結果、Bethe 行列は $m$ 個の $N\times N$ 次元の部分行列からなり、Bethe の式は

$$\begin{pmatrix} [\mathbf{A}(\mathbf{q}_1)] & [0] & \cdots & [0] \\ [0] & [\mathbf{A}(\mathbf{q}_2)] & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{A}(\mathbf{q}_m)] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} [\mathbf{C}(\mathbf{q}_1)] & [0] & \cdots & [0] \\ [0] & [\mathbf{C}(\mathbf{q}_2)] & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{C}(\mathbf{q}_m)] \end{pmatrix}$$
$$= 2K \begin{pmatrix} [\mathbf{C}(\mathbf{q}_1)] & [0] & \cdots & [0] \\ [0] & [\mathbf{C}(\mathbf{q}_2)] & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{C}(\mathbf{q}_m)] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} [\lambda(\mathbf{q}_1)]_D & [0] & \cdots & [0] \\ [0] & [\lambda(\mathbf{q}_2)]_D & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\lambda(\mathbf{q}_m)]_D \end{pmatrix}$$

のように変形できる[9]。このため問題を、次式のような $m$ 個の $N\times N$ 次元固有値方程式を解くことに簡略化できる。

$$[\mathbf{A}(\mathbf{q}_l)][\mathbf{C}(\mathbf{q}_l)] = 2K[\mathbf{C}(\mathbf{q}_l)][\lambda^k(\mathbf{q}_l)]_D\,.$$

これを解くことにより波動関数は

$$\psi(\mathbf{K},\mathbf{R},\mathbf{r}_\perp,z) = \sum_{l=1}^{m}\sum_{k=1}^{N}\alpha^{l,k}(\mathbf{R})\psi^{l,k}(\mathbf{K},\mathbf{r}_\perp,z) \qquad (1)$$

で計算できる。ここで、$z$、$\mathbf{r}_\perp$ は試料の厚さ方向とそれに垂直方向の位置を、$\mathbf{R}$ は照射ビームの中心位置を示す。励起振幅 $\alpha^{l,k}$、Bloch 波 $\psi^{l,k}$ は Allen らによって

$$\alpha^{l,k}(\mathbf{R}) = \sum_{\mathbf{G}} C_{\mathbf{G}}^{k*}(\mathbf{q}_l)\exp[-2\pi i(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l)\cdot\mathbf{R}]T(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l) \qquad (2)$$

$$\psi^{l,k}(\mathbf{K},\mathbf{r}_\perp,z) = \exp[2\pi i\lambda^k(\mathbf{q}_l)z]\sum_{\mathbf{G}=1}^{N} C_{\mathbf{G}}^{k}(\mathbf{q}_l)\exp[2\pi i(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l)\cdot\mathbf{r}_\perp] \qquad (3)$$

のように示された[8]。$T(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l)$ はコントラスト伝達関数を示し、

$$T(\mathbf{p}) = O(p)\exp[-i(\pi\Delta f\lambda p^2 + \frac{\pi}{2}C_S\lambda^3 p^4)]$$

となる。ここで $C_S$ は対物レンズの球面収差係数、波長は $\lambda = 1/K$、$\Delta f$ はデフォーカス量を示しアンダーフォーカスを負と定義する[17]。$O(p)$ はアパーチャー関数を示す。

(1)式は次式のように $\mathbf{r}_\perp$ 依存項と $z$ 依存振幅に分けられる(Darwin 表示)[18]。

$$\psi(\mathbf{K},\mathbf{R},\mathbf{r}_\perp,z) = \sum_{l=1}^{m}\sum_{\mathbf{G}=1}^{N}\varphi^{l,\mathbf{G}}(z)\exp[2\pi i(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l)\cdot\mathbf{r}_\perp]\,.$$

ここで

$$\varphi^{l,\mathbf{G}}(z) = \sum_{k=1}^{N}\alpha^{l,k}(\mathbf{R})C_{\mathbf{G}}^{k}(\mathbf{q}_l)\exp[2\pi i\lambda^k(\mathbf{q}_l)z] \qquad (4)$$

(4)式を行列表示すると

$$\boldsymbol{\varphi}(z) = \mathbf{C}\{\exp[2\pi i\lambda^k(\mathbf{q}_l)z]\}_D\,\boldsymbol{\alpha}$$

となる。行列 $\mathbf{C}$、$\{\exp[2\pi i\lambda^k(\mathbf{q}_l)z]\}_D$ の次元は $mN\times mN$、$\boldsymbol{\varphi}(z)$、$\boldsymbol{\alpha}$ の次元は $mN\times 1$ である。Fig.1 のように結晶が、異なる相の積層からなる場合、$(n\text{-}1)$番目と $n$ 番目の層間の $z$ 依存振幅の境界条件は

$$\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1}) = \boldsymbol{\varphi}_n(0) = \mathbf{C}_n\boldsymbol{\alpha}_n,\quad \boldsymbol{\alpha}_n = \mathbf{C}_n^{-1}\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})$$

となる。ここで $t_n$ は $n$ 番目の層の厚さを示す。これから、$(n\text{-}1)$番目と $n$ 番目の層間の $z$ 依存振幅の関係は

$$\boldsymbol{\varphi}_n(z_n) = \mathbf{C}_n\{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_l)z_n]\}_D\,\boldsymbol{\alpha}_n$$
$$= \mathbf{C}_n\{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_l)z_n]\}_D\,\mathbf{C}_n^{-1}\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})$$
$$= \mathbf{P}_n(z_n)\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1}) \qquad (5)$$

となる。ここで $z_n$ は Fig.1 のように $n$ 番目の層の表面からの深さ、$\mathbf{P}_n(z_n)$ は散乱行列を示す。ブロック対角化により、(5)式は

$$\begin{pmatrix} [\boldsymbol{\varphi}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_1} \\ [\boldsymbol{\varphi}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_2} \\ \vdots \\ [\boldsymbol{\varphi}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_m} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_1)] & [\mathbf{0}] & \cdots & [\mathbf{0}] \\ [\mathbf{0}] & [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_2)] & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_m)] \end{pmatrix}$$
$$\times \begin{pmatrix} \{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_1)z_n]\}_D & [\mathbf{0}] & \cdots & [\mathbf{0}] \\ [\mathbf{0}] & \{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_2)z_n]\}_D & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & \{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_m)z_m]\}_D \end{pmatrix}$$
$$\times \begin{pmatrix} [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_1)] & [\mathbf{0}] & \cdots & [\mathbf{0}] \\ [\mathbf{0}] & [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_2)] & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_m)] \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_1} \\ [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_2} \\ \vdots \\ [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_m} \end{pmatrix}$$
$$= \begin{pmatrix} [\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_1} & [\mathbf{0}] & \cdots & [\mathbf{0}] \\ [\mathbf{0}] & [\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_2} & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \ddots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & [\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_m} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_1} \\ [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_2} \\ \vdots \\ [\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_m} \end{pmatrix}$$

のように部分行列からなる式に変形できる。部分行列

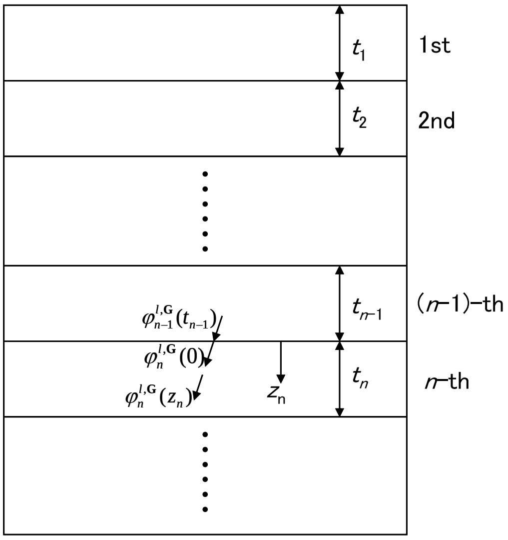


Fig.1 Scheme of the multi-layer sample. $t_n$ and $z_n$ are the $n$-th layer thickness and depth from the $n$-th layer surface, respectively [10].

$[\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]$、$\{\exp[2\pi i\lambda_n^k(\mathbf{q}_l)z_n]\}_D$、$[\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l}$ の次元は $N\times N$、$[\boldsymbol{\varphi}(z_n)]_{\mathbf{q}_l}$ の次元は $N\times 1$ である。このため問題を、$m$ 個の $N\times$N 次元行列方程式を解くことに簡略化できる。$n$ 番目の層における $z$ 依存振幅と励起誤差は

$$
\begin{aligned}
[\boldsymbol{\varphi}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l} &= [\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l}[\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_l} \\
&= [\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l}[\mathbf{P}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_l}\cdots[\mathbf{P}_2(t_2)]_{\mathbf{q}_l}[\mathbf{C}_1(\mathbf{q}_l)]\{\exp[2\pi i\lambda_1^k(\mathbf{q}_l)t_1]\}_D[\boldsymbol{\alpha}_1(\mathbf{q}_l)]
\end{aligned} \tag{6}
$$

$$
[\boldsymbol{\alpha}_n(\mathbf{q}_l)] = [\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]^{-1}[\boldsymbol{\varphi}_{n-1}(t_{n-1})]_{\mathbf{q}_l} \tag{7}
$$

となる。ここで、1 番目の層の励起振幅 $\boldsymbol{\alpha}_1(\mathbf{q}_l)$ は(2)式より求める。$n$ 番目の層における波動関数は(6)式の $z$ 依存振幅 $\varphi_n^{l,\mathbf{G}}(z_n)$ を

$$
\psi_n(\mathbf{K},\mathbf{R},\mathbf{r}_\perp,z_n) = \sum_{l=1}^{m}\sum_{\mathbf{G}=1}^{N}\varphi_n^{l,\mathbf{G}}(z_n)\exp[2\pi i(\mathbf{G}+\mathbf{q}_l)\cdot\mathbf{r}_\perp] \tag{8}
$$

に代入することによって得られる。

(6)式は一般的な式で、各層の結晶構造因子について何ら制限を必要としない。もし試料が均一成分からなり第 $n$ 層が変位 $\boldsymbol{\tau}_n$ のみを有する場合、波動関数は非常に簡単に表せる。この場合、(6)式の散乱行列 $[\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l}$ は TEM の場合 [18] と同様に

$$
[\exp[2\pi i(\mathbf{G}\cdot\boldsymbol{\tau}_n)]_D]^{-1}[\mathbf{P}_n(z_n)]_{\mathbf{q}_l}[\exp(2\pi i\mathbf{G}\cdot\boldsymbol{\tau}_n)]_D
$$

と置き換えればよい。ここで、対角化行列 $[\exp(2\pi i\mathbf{G}\cdot\boldsymbol{\tau}_n)]_D$ は第 $n$ 層の変位による結晶構造因子の位相変化を示す。

第 $n$ 層における単位体積当たりの非弾性散乱断面積は Findlay らによって

$$
\begin{aligned}
\sigma_n(\mathbf{R},t) = {}& \sum_{l=1}^{m} Tr\{[\mathbf{B}_n(\mathbf{q}_l)][\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]^{*T}[\boldsymbol{\mu}_n(\mathbf{q}_l)][\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]\} \\
&+ (1-\sum_{l=1}^{m} Tr\{[\mathbf{B}_n(\mathbf{q}_l)]^T[\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]^T[\mathbf{C}_n(\mathbf{q}_l)]^*\})\mu_{\mathbf{0},\mathbf{0},n}
\end{aligned} \tag{9}
$$

のように定式化された [9]。ここで、行列 $[\mathbf{B}_n(\mathbf{q}_l)]$ は $z$ 積分干渉項 $B^{kk'}(\mathbf{R},t_n)$ からなり

$$
B^{kk'}(\mathbf{R},t_n) = \alpha_n^k(\mathbf{R})\alpha_n^{k'*}(\mathbf{R})\frac{\exp\{2\pi i[\lambda_n^k(\mathbf{q}_l)-\lambda_n^{k'*}(\mathbf{q}_l)]t_n\}-1}{2\pi i[\lambda_n^k(\mathbf{q}_l)-\lambda_n^{k'*}(\mathbf{q}_l)]t_n}
$$

で与えられる。ここで、第 n 層の励起振幅 $\alpha_n^k(\mathbf{R})$ は(7)式より計算される。(9)式の $n$ に関する和は、試料全体にわたる散乱断面積となり、ADF, BSE, EELS, EDX による STEM 像の測定値に対応する。非弾性散乱係数 $\mu_{\mathbf{h},\mathbf{g}}$ からなる行列 $\boldsymbol{\mu}$ を変えるだけで、これらの検出法の種類を区別して計算することができる。

本研究では、Bethe 行列 $\mathbf{A}$ の非対角要素として、Doyle らによる原子散乱因子 [19] と Humphreys らによる吸収ポテンシャル [20] を用いた。計算に考慮した逆格子ベクトル $\mathbf{G}$、$\mathbf{q}_l$ の数($N$, $m$)をそれぞれ 205、53 とした。加速電圧を 200 kV とした。非弾性散乱に対する原子散乱因子として過去に報告された理論値を用いた [21)-23)].

## ３．積層試料への応用

[110]に沿って3層が積層する試料について計算を行う。第 1、第 3 層を Si、第 2 層を仮想的な Sb とする。3 層とも格子定数 5.43 Å をもつダイヤモンド構造と仮定し、層の厚さをそれぞれ 45 Å、10 Å、45 Å とする。それぞれの層間の境界は原子レベルで整合し、歪みがないと仮定する。

Fig.2 に、様々な対物レンズの球面収差係数に対して、(8)式から計算した入射電子の試料内での強度を示す。横軸 $x$ は[001]に沿った座標を、縦軸 $z$ は[110]に沿った試料表面からの深さを示す。原子コラムは $x$ = 0 と

-1.36 Å に位置し、これらはダイヤモンド格子中のダンベル構造を形成する。STEM ビームの中心を $x$ = 0 の位置においた。Si 層と Sb 層の位置を図の右側に示している。球面収差係数 $C_S$ = 0.1 mm (a)、0.01 mm (b)、0.001 mm (c)に対して計算を行った。Schrrzer フォーカスを

$$\Delta f = 1.2(\lambda C_S)^{1/2}$$

に従って-190 Å (a)、-60 Å (b)、-19 Å (c)とおき、最適絞り径を

$$p_{\max} = 1.51(\lambda^3 C_S)^{-1/4}$$

に従って 0.76 $Å^{-1}$ (a)、1.35 $Å^{-1}$ (b)、2.40 $Å^{-1}$ (c)とおいた。プローブはどの $C_S$ でも $x$ = 0 の原子コラム位置に集中している。どの $C_S$ でも入射に垂直な方向の分解能は、ダンベル構造を分離するのに十分である。電子強度は、Si 層と Sb 層の境界で滑らかにつながっている。$z$ 方向の分解能は $C_S$ が減少し、最適絞り径が大きくなるとともに向上している。$C_S$ = 0.001 mm (c)で $z$ 方向の分解能は 10 Å 程度に達している。

Fig.3 に、$C_S$ = 0.001 mm において、様々なデフォーカスに対して計算した試料内の電子強度を示す。STEM ビームの中心を $x$ = 0 Å の位置においた。デフォーカスを-100 から 0 Å へ変化させると、最大強度を示す深

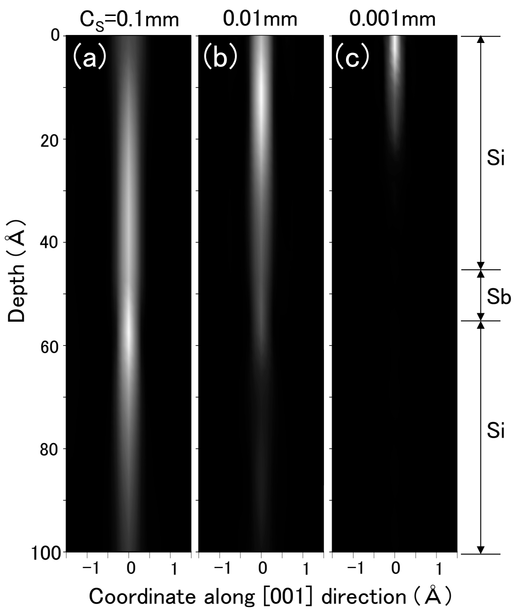


Fig.2 Calculated electron intensities in the stack composed of Si, Sb and Si layers whose thicknesses are 45, 10 and 45 Å, respectively. The calculations were performed in the spherical aberrations of 0.1 mm (a), 0.01 mm (b) and 0.001 mm (c) with Scherzer focuses and optimal cut-off apertures [10].

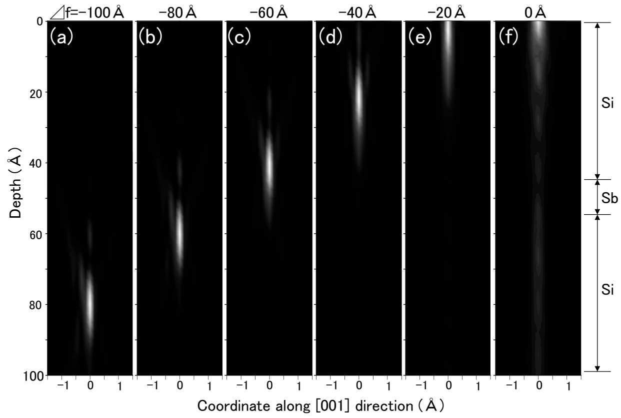


Fig.3 Calculated electron intensities in the stack composed of Si, Sb and Si layers whose thicknesses are 45, 10 and 45 Å, respectively. The calculations were performed at the defocuses of -100 Å (a), -80 Å (b), -60 Å (c), -40 Å (d), -20 Å (e) and 0 Å (f) [10].

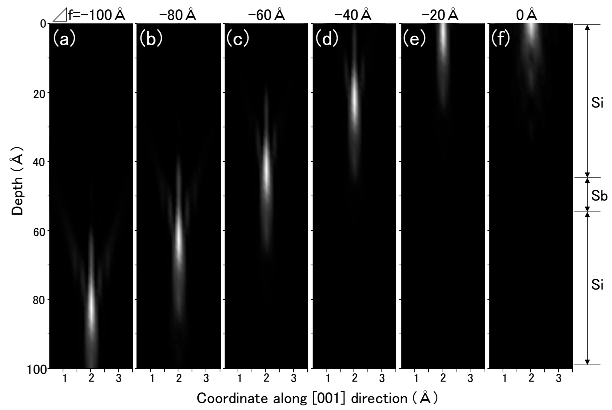


Fig.4 Calculated electron intensities in the stack composed of Si, Sb and Si layers whose thicknesses are 45, 10 and 45 Å, respectively. The calculations were performed at the defocuses of -100 Å (a), -80 Å (b), -60 Å (c), -40 Å (d), -20 Å (e) and 0 Å (f) [10].

さは減少する。理想的には、その深さはデフォーカスの絶対値に一致するが、計算結果は少し小さな値を示す。この現象はプレフォーカス効果として報告されており [24]、原子コラムにおけるポテンシャルと対物レンズの球面収差が原因である。10 Å 程度の高い $z$ 方向への分解能のため、$C_S$ = 0.001 mm では、特定の試料深さにおける断面 STEM 像を得ることが示唆される。

Fig.4 に、$C_S$ = 0.001 mm において、様々なデフォーカスに対して計算した試料内の電子強度を示す。ただし、STEM ビームの中心を、2 つの原子コラム間の中心である $x$ = 2.04 Å の位置においた。ここは原子コラムから最も離れた位置で、入射電子に対する原子ポテン

シャルの影響が最も小さい。再隣接の原子コラム位置は $x$ = 0 と 4.07 Å である。電子強度分布は Fig.3 と非常に似ている。しかし、最大強度を示す深さは、Fig.3 よりもデフォーカスの絶対値にわずかに近づいている。これは､2 つの原子コラム間の中心でのポテンシャルが原子コラム位置でのポテンシャルよりも小さいためである [24]。

Fig.5 に､球面収差係数 $C_S$ = 0.1 mm (a)､0.01 mm (b)､0.001 mm (c)に対して計算を行った SiK、SbL 特性 X 線のラインスキャンシミュレーションを示す。(9)式における $n$ = 1 から 3 までの和をとることによって計算を行った。横軸は[001]に沿ったプローブ位置を、縦軸はデフォーカスを示す。原子コラムは $x$ = 0 と-1.36 Å

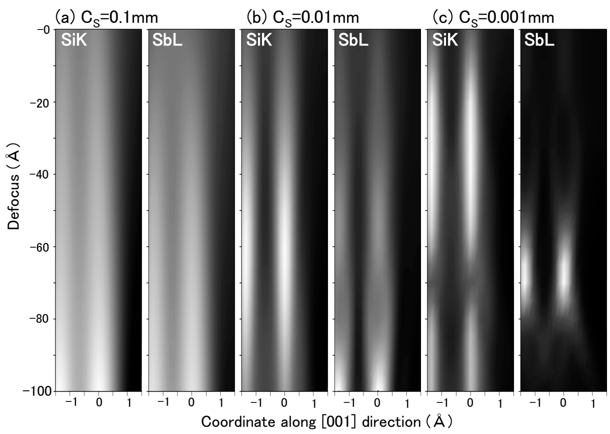


Fig.5 Probe line-scan simulation of SiK and SbL EDX signals in the stack composed of Si, Sb and Si layers whose thicknesses are 45, 10 and 45 Å, respectively [10].

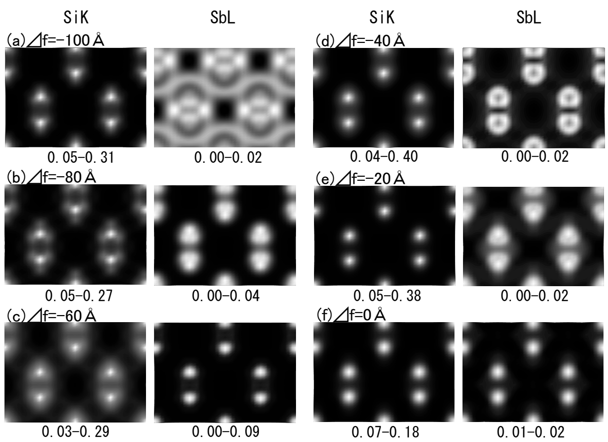


Fig.6 Calculated EDX STEM image simulations for [110] zone axis incidence at the defocuses of -100 Å (a), -80 Å (b), -60 Å (c), -40 Å (d), -20 Å (e) and 0 Å (f) with spherical aberration 0.001 mm and optimal cut-off aperture 2.40 $Å^{-1}$ [10].

に位置する。入射に垂直な方向の分解能は $C_S$ の減少とともに向上している。縦軸に沿った SbL 線の強い領域は $C_S$ の減少とともに小さくなっている。$C_S$ = 0.001 mm (c)で SbL 線の強い領域は、Sb 層の厚さである 10 Å 程度に達している。しかし､SbL 線の強い領域におけるデフォーカスの絶対値はSb層の位置する深さより大きくなっている。これは､Fig.3 と Fig.4 で示したプレフォーカス効果が原因である。$C_S$ = 0.001 mm (c)において、SbL 線の強い領域で SiK 線は減少している。

Fig.6 に、$C_S$ = 0.001 mm において、様々なデフォーカスに対して計算した[110]軸上照射 EDX STEM シミュレーション像を示す。像強度の最大値と最小値を各像の下に示している。SiK 線の像においては、どのデフォーカスでも原子コラム位置に明るいスポットが高い分解能で見られる。最も明るいスポットは Scherzer フォーカス付近の(d)、(e)で見られる。原子コラム位置での SbL 線強度は、デフォーカス量に依存する。最も明るいスポットは $\Delta f$= -60 Å で観察され､その絶対値は、Fig.5 (c)で見られるプレフォーカス効果のため、Sb 層位置よりも大きくなっている。これらの結果は、様々なデフォーカスにおけるSTEM像のシミュレーションと実験結果を比較することにより、定量的な 3 次元情報を得ることができることを示唆する。

Fig.7 に、$C_S$ = 0.001 mm で Sb 層の厚さを 40 Å (a)、10 Å (b)、2 Å (c)と仮定して計算した SiK、SbL 特性 X 線のラインスキャンシミュレーションを示す。Sb 層は $z$ 方向に沿って Si-Sb-Si 試料の中心に位置すると仮定している。縦軸に沿った SbL 線の強い領域は、(a)から

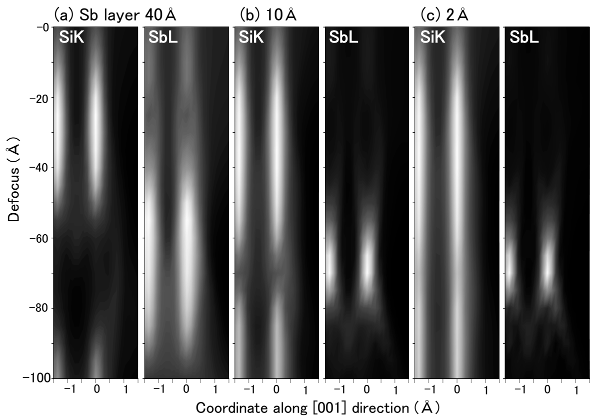


Fig.7 Probe line-scan simulation of SiK and SbL EDX signals in the stacks composed of Si, Sb and Si whose thicknesses are 30, 40 and 30 Å in (a), and 45, 10 and 45 Å in (b), and 49, 2 and 49 Å in (c), respectively. The calculations were performed for spherical aberration 0.001 mm and optimal cut-off aperture 2.40 $Å^{-1}$ [10].

(b)へ Sb 層の厚さの減少とともに小さくなっている。しかし、(c)における SbL 線の強い領域は(b)とほとんど変わらない。これは、*C*s = 0.001 mm における試料厚さ方向の分解能の限界による。SiK 線の強度は、SbL 線の強い領域付近では減少しており、その領域は Sb 層の厚さの減少とともに小さくなっている。

## ４．むすび

Allen らは、Bloch 波法による新しい EELS、EDX、BSE、HAADF の STEM 像シミュレーション法を開発した。これらの検出法に対する散乱断面積の式を統一化し、式中の非弾性散乱因子のみを変えることで、各検出法による STEM 像の計算を可能にした。本研究では、Allen らの手法を発展させ、析出物、欠陥、原子変位などの不均質な構造を含む結晶に適用する方法を確立した。この手法を Si-Sb-Si 積層試料に対して適用し、各層における対角化散乱行列の積によって計算を簡略化した。入射電子強度の分布や EDX STEM 像を様々な条件で計算した。STEM 像のシミュレーションと実験結果を比較することにより、定量的な 3 次元構造解析が可能であることを示唆した。

## 参考文献


1) Kirkland, E.J., Loane, R.F. and Silcox, J.: Simulation of annular dark field STEM images using a modified multislice method, *Ultramicroscopy*, Vol.23, pp. 77-96, 1987.

2) Anderson, S.C., Birkeland, C.R., Antist, G.R. and Cockayne, D.J.H.: An approach to quantitative compositional profiling at near-atomic resolution using high-angle annular dark field imaging, *Ultramicroscopy*, Vol.69, pp. 83-103, 1997.

3) Ishizuka, K.: A practical approach for STEM image simulation based on the FFT multislice method, *Ultramicroscopy*, Vol.90, pp. 71-83, 2002.

4) Pennycook, S.J. and Jesson, D.E.: High-resolution Z-contrast imaging of crystals, *Ultramicroscopy*, Vol.37, pp. 14-38, 1991.

5) Nellist, P.D. and Pennycook, S.J.: Incoherent imaging using dynamically scattered coherent electrons, *Ultramicroscopy*, Vol.78, pp. 111-124, 1999.

6) Mitsuishi, K., Takeguchi, M., Toda, Y. and Furuya, K.: Layer-doubling method in ADF-STEM image simulation, *Ultramicroscopy*, Vol.96: pp. 323-333, 2003.

7) Yamazaki, T., Watanabe, K., Kuramochi, K. and Hashimoto, I.: Exteded dynamical HAADF STEM image simulation using the Bloch-wave method, *Acta Cryst*. A, Vol.62, pp. 233-236, 2006.

8) Allen, L.J., Findlay, S.D., Oxley, M.P. and Rossouw, C.J.: Lattice-resolution contrast from a focused coherent electron probe. Part I, *Ultramicroscopy*, Vol.96, pp. 47-63, 2003.

9) Findlay, S.D., Allen, L.J., Oxley, M.P. and Rossouw, C.J.: Lattice-resolution contrast from a focused coherent electron probe. Part II, *Ultramicroscopy*, Vol.96, pp. 65-81, 2003.

10) Morimura, T. and Hasaka, M.: Bloch-wave-based STEM image simulation with layer-by-layer representation, *Ultramicroscopy*, Vol.109, pp. 1203-1209, 2009.

11) Morimura, T.: STEM image simulation by Bloch-wave method with layer-by-layer representation, *J. Electron Microsc.*, Vol.55, pp. 7-12, 2010.

12) van Benthem, K., Lupini, A.R., Kim, M., Baik, H.S., Doh, S., Lee, J.H., Oxley, M.P., Findlay, S.D., Allen, L.J., Luck, J.T. and Pennycook, S.J.: Three-dimensional imaging of individual hafnium atoms inside a semiconductor device, *Appl. Phys. Lett.*, Vol.87, pp. 034104-1-3, 2005.

13) Borisevich, A.Y., Lupini, A.R. and Pennycook, S.J.: Depth sectioning with the aberration-corrected scanning transmission electron microscope., *Proc. Nat. Acad. Sci.*, Vol.103, pp. 3044-3048, 2006.

14) Borisevich, A.Y., Lupini, A.R., Travaglini, S. and Pennycook, S.J.: Depth sectioning of aligned crystals with the aberration-corrected scanning transmission electron microscope, *J. Electron Microscopy*, Vol.55, pp. 7-12, 2006.

15) D'Alfonso, A.J., Findlay, S.D., Oxley, M.P., Pennycook, S.J., van Benthem, K. and Allen, L.J.: Depth sectioning in scanning transmission electron microscopy based on core-loss spectroscopy, *Ultramicroscopy*, Vol.108, pp. 17-28, 2007.

16) Xin, H.L. and Muller, D.A.: Aberration-corrected ADF-STEM depth sectioning and prospects for reliable 3D imaging in S/TEM., *J. Electron Microscopy*, Vol.58, pp. 157-165, 2009.

17) Rossouw, C.J., Allen, L.J., Findlay, S.D. and Oxley, M.P.: Channelling effects in atomic resolution STEM, *Ultramicroscopy* Vol.96, pp. 299-312, 2003.

18) Hirsch, P.B., Howie, A., Nicholson, R.B., Pashley, D.W.

and Whelan, M.J.: *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Krieger Publishing Company, Malabar, Florida., 1977.

19) Doyle, P.A. and Turner, P.S.: Relativistic Hatree-Fock X-ray and Electron Scattering Factors, *Acta Cryst*. A, Vol.24, pp. 390-397, 1968.

20) Humphreys, C.J. and Hirsch, P.B.: Absorption Parameters in Electron Diffraction Theory, *Philos*. *Mag*., Vol.18, pp. 115-122, 1968.

21) Rossouw, C.J., Forwood, C.T., Gibson, M.A. and Miller, P.R.: Generation and absorption of characteristic X-rays under dynamical electron diffraction conditions, *Micron*, Vol.28, pp. 125-137, 1997.

22) Oxley, M.P. and Allen, L.J.: Atomic scattering factors for *K*-shell and *L*-shell ionization by fast electrons, *Acta Cryst*. A, Vol.56, pp. 470-490, 2000.

23) Oxley, M.P. and Allen, L.J.: Atomic scattering factors for *K*-shell and *L*-shell electron energy-loss spectroscopy, *Acta Cryst*. A, Vol.57, pp. 713-728, 2001.

24) Cosgriff, E.C. and Nellist, P.D.: A Bloch wave analysis of optical sectioning in aberration-corrected STEM, *Ultramicroscopy*, Vol.107, pp. 626-634, 2007.