収束電子回折法と電子エネルギー損失分光法による 試料厚みの精密評価

上道良太* 池松陽一 進藤大輔

東北大学素材工学研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 65, No. 5 (2001), pp. 427-433
Special Issue on Materials Characterization by Analytical Electron Microscopy
© 2001 The Japan Institute of Metals

Precise Evaluation of Specimen Thickness by Convergent-beam Electron Diffraction Technique and Electron Energy-loss Spectroscopy

Ryota Uemichi*, Yoichi Ikematsu and Daisuke Shindo

Institute for Advanced Materials Processing, Tohoku University, Sendai 980-8577

To determine the mean free path (λ_p) for inelastic electron scattering of a silicon crystal at an accelerating voltage of 200 kV, precise measurements of the specimen thickness were carried out by convergent-beam electron diffraction (CBED) technique and electron energy-loss spectroscopy (EELS) using an analytical electron microscope. Through the evaluation of the specimen thickness by using CBED technique, it was found that precise measurements in the case of 400 reflection with convergent beam angle of 12 mrad were performed in the condition that the specimen thickness was set to be in the range of 100 to 500 nm. By subtracting the background in CBED patterns with an energy filter, minima and maxima of the intensity profile of the symmetric fringes in the diffraction disks were clearly observed. Consequently, it was clarified that the maximum thickness measurable for the 400 diffraction disks increased from 400 nm to 670 nm. Using the precise specimen thickness evaluated by CBED technique, λ_p with the collection semiangle 157 mrad was determined to be about 147 ± 5 nm through EELS.

(Received November 29, 2000; Accepted February 2, 2001)

Keywords: *transmission electron microscopy, convergent-beam electron diffraction method, electron energy-loss spectroscopy, specimen thickness, silicon crystal, imaging plate*

1. 緒 言

現在、Si 単結晶は DRAM などの半導体デバイスの基板材料として広範に利用されている。この Si 結晶では、単結晶育成時やその後の熱処理の際、結晶中に転位や積層欠陥、マイクロボイド等のいわゆる微小欠陥が形成されることが知られている。この Si 結晶中の微小欠陥は、酸化膜耐圧など半導体デバイスの電気的特性に大きな影響を及ぼすばかりでなく、デバイスの製造歩留まりの劣化を招く。従って、高品位の Si 単結晶を製造するためには、これらの微小欠陥の形成を制御する必要がある¹⁾。このため、Si 結晶における微小欠陥の密度や形態の評価は、欠陥の制御指針を提示する上において、重要な研究課題のひとつであると言える。

透過電子顕微鏡 (TEM: Transmission Electron Microscope) は、微小域の構造解析が可能なツールであり、Si 結晶中の微小欠陥をキャラクタリゼーションする有効な解析装置の一つである²⁾。特に、TEM を用いた微小欠陥のキャラクタリゼーションでは、欠陥密度が必要とされるケースが多く、その際、観察領域の正確な試料厚みが必要とされる。

TEM は、構造解析とともに観察領域の試料厚みの評価も可能であり、その代表的な評価手法として、収束電子回折 (CBED: Convergent-Beam Electron Diffraction) 法と電子エネルギー損失分光法 (EELS: Electron Energy-Loss Spectroscopy) などが挙げられる。

CBED 法は細く収束させた電子線を試料に入射し、ディスク状の回折図形を観察する手法であり、二波励起条件下の回折ディスク内に観察される縞模様を解析することにより、試料厚み t と消衰距離 ξ_g を同時に決定することができる³⁻⁶⁾。この CBED 法は、結晶性の良い物質に対してのみ適用可能な方法であるものの、2~3% 程度の誤差範囲の高い精度で試料厚みを計測することができる方法である。

一方、EELS は透過電子のエネルギー損失量を計測し、材料の微小領域における組成や化学結合状態を明らかにする手法である^{7,8)}。この EELS ではスペクトルの積分強度を解析することにより相対試料厚み t/λ_p を求めることができる。ここで、 t は試料厚みであり、 λ_p は電子の非弾性散乱平均自由行程である。 λ_p は物質固有の値であるため、一旦その値が求めれば、試料の形状や結晶性の良否、格子欠陥の有無に関係なく試料厚みの評価が可能である。しかし、Si 結晶に対する λ_p は加速電圧 100 kV における値が得られているものの、200 kV における λ_p はこれまで報告されていない。

よって、EELS と CBED 法を併用して加速電圧 200 kV に

* 東北大学大学院生、現在：石川島播磨重工業㈱ (Graduate Student, Tohoku University, Present address: Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.)

における λ_p を実験的に決定することにより、微小欠陥を含む Si 結晶に対しても EELS のみで試料厚みの測定が可能になるものと考えられる。

ところで、極最近、電子のエネルギー分別が可能な高性能なエネルギーフィルターを搭載した TEM が開発され⁹⁾、材料評価のツールとして応用されつつある¹⁰⁻¹³⁾。このエネルギーフィルター TEM (以下、EF-TEM とする) では、回折上でバックグラウンドを形成する非弾性散乱電子をエネルギー的に分別し除去することが可能なため、弾性散乱のみからなる鮮明な CBED 図形を得ることができる^{14,15)}。従って、EF-TEM を用いることにより、より精密な試料厚みの評価が可能となり、 λ_p のより高精度な評価が期待される。

そこで、本研究では、Si 結晶の試料厚みを EELS により評価する際に必要とされる加速電圧 200 kV における λ_p を CBED 法と EELS を併用することにより実験的に決定することを目的とした。特に、以下の点に着目して研究を行った。

(1) CBED 法を用いて試料厚みを精密に評価する際に、励起を行う反射の違いがその測定結果にどのような影響を及ぼすかを明らかにする。

(2) EF-TEM から得られる λ_p とこれまでに広く普及しているパラレル型の EELS (PEELS) 検出器¹⁶⁾を装着した TEM を用いて得られる λ_p とを比較することにより、エネルギーフィルターが λ_p を評価する際にどのような効果をもたらすかを明らかにする。

2. 実験方法

2.1 TEM 観察

市販の (100) の Cz-Si ウェハから約 2 mm × 2 mm の試料片を切り出し、この試料片に対して機械研磨およびアルゴンイオンを用いたイオンミリングにより薄膜試料を作製し、試料厚みの評価に供した。CBED および EELS の測定には、PEELS 検出器 (Gatan 社製 model 666) を装着した TEM (日本電子社製 JEM-2010) とインコラムタイプのオメガ方式のエネルギーフィルターを搭載した TEM (日本電子社製 JEM-2010Ω)¹⁷⁾を用い、加速電圧 200 kV にて測定を行った。

2.2 CBED 法による試料厚みの評価

Fig. 1 は、二波励起条件下で撮影された典型的な CBED 図形であり、右側の回折ディスクには試料厚みを反映した縞模様が観察される。二波励起条件における動力学的回折理論から試料厚み t と消衰距離 ξ_g との間には、以下の関係式が成り立つ⁴⁾。

$$\left(\frac{s_i}{n_k}\right)^2 = -\left(\frac{1}{\xi_g}\right)^2 \left(\frac{1}{n_k}\right)^2 + \left(\frac{1}{t}\right)^2 \quad (1)$$

$$\left(\frac{s_i}{x_k}\right)^2 = -\left(\frac{1}{\xi_g}\right)^2 \left(\frac{1}{x_k}\right)^2 + \left(\frac{1}{t}\right)^2 \quad (2)$$

ここで、 s_i は Bragg 反射が正確に満たされている位置から i 番目の強度極小値あるいは極大値の位置までの距離を表すパラメータで、次式で定義される。

$$s_i = \frac{\lambda}{d^2} \cdot \frac{\Delta \theta_i}{2\theta_g} \quad (3)$$

Fig. 1 CBED pattern taken under a two-beam condition. In the CBED pattern, the large disks of the left and right correspond to the transmitted beam and the Bragg reflection, respectively.

上式において、 λ は電子線の波長、 d は励起している反射の格子面間隔である。 θ_g は励起している反射の回折角であり、透過ディスクの中央から回折ディスクの中央までの距離として求められる。また、 $\Delta \theta_i$ 、 $\Delta \theta'_i$ はそれぞれ励起した反射の Bragg 位置から i 番目の強度極小値あるいは極大値までのずれ角であり、回折ディスクの中央から各々の暗線、明線までの距離として評価される。次の関係式のもと、

$$n_k = i + j \quad (i=1, 2, 3, \dots) \quad (j=0, 1, 2, \dots) \quad (4)$$

$$x_k = i + j' \quad (i=1, 2, 3, \dots) \quad (j'=0, 1, 2, \dots) \quad (5)$$

式 (3) から $(s_i/n_k)^2$ と $(1/n_k)^2$ または $(s_i/x_k)^2$ と $(1/x_k)^2$ との関係プロットする。整数 $j, j' (\geq 0)$ の値をパラメータとしてプロットした時、適切な値が選択された時のみ、原理的に直線が得られ、その直線の切片および傾きからそれぞれ t と ξ_g が決定できる。本研究では、この試料厚みを求める際の適切な実験条件、つまり、選択すべき回折波、あるいは測定に用いる最適な膜厚範囲などについての検討を行った。なお、異なる試料厚みから得られるデータをもとに、それぞれの厚みについて上記の関係をプロットし、同じ傾きをもつ直線を選択することにより、 t と ξ_g を決定する試みもなされている。

本研究における具体的な実験条件は、以下の通りである。二波励起に用いた反射は、電子線を Si 結晶の [001] 方向にはほぼ平行に入射した際の 220 および 400 反射である。収束角 2α は 12 mrad である。CBED 図形の撮影には、定量性の高い記録媒体であるイメージングプレート (FDL-UR-V : 25 $\mu\text{m}/\text{pixel}$)^{18,19)}を用いた。特に、EF-TEM では、エネルギーフィルターによりエネルギー損失 ΔE ($-8 \text{ eV} < \Delta E < 8 \text{ eV}$) をもつ散乱電子のみを用いて CBED 図形を得た。なお、試料厚みおよび消衰距離の実験値に対する誤差は、得られた各データの平均偏差からそれぞれ求めた。

2.3 EELS による試料厚みの評価

電子エネルギー損失スペクトルの積分強度と試料厚み t との間には、次のような関係式が成り立つ⁷⁾。

$$\frac{t}{\lambda_p} = \ln \left(\frac{I_T}{I_0} \right) \quad (6)$$

ここで、 λ_p は電子の非弾性散乱平均自由行程であり、 I_T はスペクトルの全積分強度、 I_0 はゼロロスピークの積分強度である。そこで、同一の測定位置において CBED 法により得られる試料厚み t と電子エネルギー損失スペクトルから求められる $\ln(I_T/I_0)$ を式 (6) に代入することにより λ_p を求めた。通常の TEM では、YAG シンチレーターとフォトダイオードアレイを用いた PEELS 検出器によりスペクトルの計測を行った。また、EF-TEM ではエネルギーフィルターにより得られる電子エネルギー損失スペクトルをイメージングプレートに記録し、その強度プロファイルから $\ln(I_T/I_0)$ を評価した。 λ_p は EELS 測定における取り込み角 β の値にも依存することから、通常の TEM では、157, 23.4, 16.9, 12.1, 2.1 mrad の 5 段階に、EF-TEM では 23.4, 16.9, 12.1, 2.1 mrad の 4 段階に変化させてそれぞれ測定を行った。

なお、 λ_p の実験値に対する誤差は、各取り込み角で得られるデータの平均偏差から求めた。

3. 実験結果および考察

3.1 CBED 法における励起条件の影響

Fig. 2 は、同一の測定位置から得られる 220 および 400 反射における二波励起条件下での Si 結晶の CBED 図形である。220 に比較して 400 反射の回折ディスクでは、消衰距離 ξ_g の違いを反映してディスク内に観察される縞模様の間隔がより小さくなっていることがわかる。Fig. 3 は、Fig. 2 中の回折ディスク内の縞模様の間隔から得たデータを基に $(s_i/n_k)^2$ と

Fig. 2 CBED patterns obtained from a silicon crystal with reflections of 220 (a) and 400 (b) excited.

$(1/n_k)^2$ または $(s_i/x_k)^2$ と $(1/x_k)^2$ との関係プロットしたグラフである。また、図中にはプロットした各データの直線性を示す回帰係数 R を併せて示した。Fig. 3 より、220 反射では回帰係数 R の値に明確な差が現れず、直線の選択が困難であることがわかる。一方、400 反射では R の値に明確な差が現れ、直線の選択が容易となり、一義的に t や ξ_g を決定できることがわかる。これは、220 に比べて 400 反射の方が消衰距離 ξ_g が大きいことに起因しているものと考えられる。すなわち、 j, j' の値は t/ξ_g の値に依存する整数であり⁴⁾、 ξ_g の値が大きくなると適切な ξ_g, t を示す j, j' の値が小さくなり、 $(1/n_k)^2$ あるいは $(1/x_k)^2$ に対するプロットの幅が広がったことによるものと考えられる。もうひとつの理由は ξ_g の値が大きくなることにより縞の間隔が狭くなり、その結果データ点が増えたことによるものと考えられる。なお、400 反射における $j, j'=1$ に対する直線の切片から、試料厚みは 286 ± 2 nm と求めた。さらに、試料厚みを変えて CBED 測定を行った結果、本手法により試料厚みを精密に評価するためには、以下の 2 つの条件を満たす必要があることがわかった。

(1) 透過ディスクに隣接し、二波励起条件となりやすい反射の中で、出来るだけ高次の反射を利用する。

Fig. 3 Plots of $(s_i/n_k)^2$ vs. $(1/n_k)^2$ or $(s_i/x_k)^2$ vs. $(1/x_k)^2$.

(2) 適切な ξ_g , t を与える j, j' の値が 0~2 の間となるよう、試料厚み t を励起する反射の ξ_g の 3 倍より小さい値とする。

400 反射を用いた厚み約 100 nm における評価では、 $(s_i/n_k)^2$ と $(1/n_k)^2$ または $(s_i/x_k)^2$ と $(1/x_k)^2$ との関係を表すグラフにおいて、プロットされるデータ数が各 j, j' に対して 10 個程度と相対的に少なくなるとともに、各データの回帰係数 R も、最大で 0.95~0.96 となりデータのばらつきが大きくなることがわかった。従って、試料厚みを精密評価するための最小の試料厚みは 100 nm 程度と考えられた。以上の検討から、収束角 12 mrad の条件のもと 400 反射を用いて Si 結晶の試料厚みを精密評価することが可能な試料厚みの範囲は、100~500 nm であると考えられた。なお、Si より原子番号がひとつ小さい Al について、加速電圧 200 kV での CBED 測定により、高い精度で試料厚みの計測が可能な範囲は 50~500 nm であることが報告されている³⁾。従って、本研究で得られた Si 結晶の試料厚みの精密評価が可能な厚み範囲は Al の厚み範囲と良く対応することがわかった。

3.2 CBED 法におけるエネルギーフィルターの効果

Fig. 4 は、従来の TEM と EF-TEM を用いて、同一領域（試料厚み：286±2 nm）から得られる 400 反射を用いた二波励起条件下での Si 結晶の CBED 図形である。Fig. 4 より、EF-TEM を用いて撮影した CBED 図形の方が回折ディスク内の縞模様がより鮮明であることがわかる。Fig. 5 は、Fig. 4 中の回折ディスク内の縞模様の強度プロファイルである。エネルギーフィルターを用いることにより、回折図形上の電子の非弾性散乱に基づくバックグラウンドが除去され、より正確に強度の極大点、極小点を判別することが可能となっていることがわかる。なお、Fig. 4 では、従来の TEM と EF-TEM の間でのカメラ長の違いを反映し、透過ディスク

と回折ディスクの間の距離が若干異なっている。また、Fig. 5 の縞模様の強度プロファイルにみられる形状の非対称性は、励起誤差 s_i が 0 から若干ずれていることに起因しているものと考えられた。

Fig. 6 は、各試料厚みで得られる 400 反射の回折ディスクの強度プロファイルである。Fig. 6(a) より通常の TEM を用いた測定では、試料厚みが 350±2 nm になると電子の非弾性散乱に基づくバックグラウンドの影響により、強度の極大、極小点の判別が困難となることがわかる。このことから、通常の TEM を用いた場合、CBED 測定が可能な限界厚さは 400 nm 程度と考えられる。一方、EF-TEM ではエネルギーフィルターによるバックグラウンドの除去効果より試料厚み 412±3 nm においても明確に極大、極小点を判別することができ、670 nm 程度の試料厚みにおいても、十分に CBED 測定を行うことが可能であることがわかる (Fig. 6(b))。

以上の検討から、エネルギーフィルターを用いることにより、CBED 測定が可能な厚さ範囲はより厚い領域に広がることをわかった。なお、400 の回折ディスクを用いて精密な試料厚みを測定する上での限界厚みは、前述の $t < 3\xi_{400}$ の条件から 500 nm 程度であると考えられる。

Fig. 7 は、通常の TEM と EF-TEM を用いて、CBED 図

Fig. 4 CBED patterns obtained from a silicon crystal with the 400 reflection excited using a conventional TEM (a) and an EF-TEM (b).

Fig. 5 Intensity profiles of 400 diffraction disks obtained from a silicon crystal using a conventional TEM (a) and an EF-TEM (b).

形を解析することにより得られる ξ_{400} と試料厚み t との関係を示したグラフである．また，Fig. 7 には，以下の式を用いて理論的に算出した値も合わせて示している²⁰⁾．

$$\xi_g = \frac{\pi V_c \cos \theta_g}{\lambda F_g} \quad (7)$$

ここで， V_c ：単位胞の体積， θ_g ：励起している反射の回折角， λ ：電子の波長， F_g ：構造因子である．加速電圧 100 kV，400 反射において，式(7)を用いて Hirsch らにより計算された Si の ξ_{400} は 127 nm²⁰⁾である．この値について，室温 (293 K) での Si 結晶の温度因子 (B 因子：0.45²¹⁾) を考慮し，200 kV における ξ_{400} に換算すると 182 nm となる．今回実験的に得られた ξ_{400} の平均値は，通常の TEM では 159 ± 3 nm，EF-TEM では 160 ± 4 nm であった．実験値は理論値に比較して小さな値であるものの，ほぼ一定の値となることがわかった．

3.3 Si 結晶の λ_p

Fig. 8 は，EF-TEM を用いてイメージングプレート上に記録された Si 単結晶の電子エネルギー損失スペクトル(a)とその強度プロファイル(b)である．Fig. 8(b)に示した強度プロファイルから，Si 単結晶の電子エネルギー損失スペクトルは，弾性散乱からなるゼロロスピークの他に，複数のプラズモンロスピークからなることがわかる．この複数のプラズモンロスピークは，多重散乱に伴い電子が複数回プラズモンを励起することによって由来する．なお，PEELS 検出器を用いた測定においても同様のスペクトルが得られることを確認している．

CBED 法により試料厚み t を評価した測定領域に対して，取り込み角 β を変化させながら EELS 測定を行い，式(6)を用いて λ_p を評価した．その結果を Fig. 9 に示す．また，Fig. 9 には加速電圧 100 kV で実験的に求められた Si の平均エネルギー損失(E_m)15.0 eV²²⁾から，以下の式を用いて 200 kV での λ_p を算出し，その値も併せて示した⁷⁾．

$$\lambda_p \approx \frac{106F(E_0/E_m)}{\ln(2\beta E_0/E_m)} \quad (8)$$

Fig. 6 Intensity profiles in 400 diffraction disks of a silicon crystal as a function of crystal thickness obtained by a conventional TEM (a) and an EF-TEM (b).

Fig. 7 Extinction distance ξ_{400} evaluated by CBED method at various thicknesses of a silicon crystal.

Fig. 8 Electron energy-loss spectrum of a silicon crystal obtained by an EF-TEM with an imaging plate. Intensity profile is indicated below.

Fig. 9 Graphs of t/λ_p vs. the crystal thickness t with collection angle of (a) 2.1 mrad, (b) 12.1 mrad, (c) 16.9 mrad, (d) 23.4 mrad and (e) 157 mrad.

Table 1 λ_p of a silicon crystal evaluated by EELS and CBED technique at 200 kV.

β (mrad)	2.1	12.1	16.9	23.4	157
PEELS	238 ± 6	160 ± 4	153 ± 5	149 ± 7	147 ± 5
Energy Filter	244 ± 9	151 ± 5	144 ± 10	140 ± 8	—
Cal.	217	151	146	146	146

$$F = \frac{1 + E_0/1022}{(1 + E_0/511)^2} \quad (9)$$

ここで、 F ：相対論因子、 E_0 ：入射エネルギーである。なお、式(8)は、 $\beta \ll (E/E_0)^{1/2}$ の範囲内で適用可能であり、加速電圧 200 kV ではその範囲は 10 mrad 以下となる⁷⁾。そこで、 β が 2.1 mrad あるいは 12.1 mrad では式(8)を用い、 λ_p としてそれぞれ 217 nm および 151 nm を得た。16.9, 23.4, 157 mrad の各 β に対しては 15 mrad を代入することにより得られる 146 nm を近似値として用いた。Fig. 9 からわかるように、PEELS 法、エネルギーフィルター法の双方で t/λ_p と t の間に良い比例関係が成り立っており、式(8)を用いて算出された値を基に引いた理論直線とも良い一致を示した。以上の検討から、エネルギーフィルター法は PEELS 法とともに λ_p を決定する上で有効な手法であることがわかった。

最後に、本研究で得た Si 結晶の加速電圧 200 kV におけ

る λ_p の平均値を Table 1 に示す。これらの λ_p を用いることにより、加速電圧 200 kV においても EELS 法のみで Si 結晶の試料厚みの計測が可能となった。

4. 結 論

Si 結晶の加速電圧 200 kV における λ_p の決定を目的に CBED 法および EELS により試料厚みの精密評価を行い、以下の結果を得た。

(1) 二波励起条件下の CBED 図形を解析することにより、Si 結晶の試料厚みを評価した結果、試料厚みを精密に評価するためには、透過ディスクに隣接し二波励起条件となりやすい反射の中で、出来るだけ高次の反射を利用するとともに、観察領域の試料厚みを励起する反射の ξ_g の 3 倍より小さい値となるように試料厚みと反射を選択する必要があることがわかった。特に、400 反射を用いた場合、収束角 12 mrad の条件のもと試料厚みを精密に評価する際の具体的な試料厚みの範囲は、100~500 nm であると考えられた。

(2) 400 反射を励起した二波励起条件下の CBED 測定において、通常の TEM では、CBED 法による試料厚みの測定可能な限界厚さは 400 nm 程度であったが、EF-TEM では、エネルギーフィルターによるバックグラウンドの除去効果により、670 nm 程度の試料厚みまで測定が可能となることがわかった。

(3) PEELS 法およびエネルギーフィルター法で加速電圧 200 kV における Si 結晶の λ_p を評価した結果、両者はともに理論値と良い一致を示した。このことからエネルギーフィルター法は PEELS 法とともに、 λ_p を評価する上で有効な手法であることがわかった。

文 献

- 1) F. Shimura: *Semiconductor Silicon Crystal Technology*, (Academic Press, 1989).
- 2) D. Shindo and K. Hiraga: *High-Resolution Electron Microscopy for Materials Science*, (Springer-Verlag, 1998).
- 3) P. M. Kelly, A. Jostsons, R. G. Blake and J. G. Napier: *Phys. Status Solidi* (a) **31**(1975) 771-780.
- 4) S. M. Allen: *Philos. Mag.* **A43**(1981) 325-335.
- 5) M. Tanaka, R. Saito and H. Sekii: *Acta Cryst.* **A39**(1983) 357-368.
- 6) Y. Tomokiyo: *Bulletin of the Japan Institute of Metals* **25**(1986) 1000-1008.
- 7) R. F. Egerton: *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*, 2nd Ed., (Plenum Press, New York and London, 1996).
- 8) D. Shindo and T. Oikawa: *Advanced Analytical Electron Microscopy for Materials Characterization* (in Japanese), (Kyoritsu Press, Tokyo, 1999).
- 9) K. Tsuno, T. Kaneyama, T. Honda, K. Tsuda, M. Terauchi and M. Tanaka: *J. Electron Microsc.* **46**(1997) 357-368.
- 10) L. Reimer (ed.): *Energy-Filtering Transmission Electron Microscopy*, (Springer-Verlag, 1995).
- 11) Y. Murakami and D. Shindo: *Mater. Trans., JIM* **40**(1999) 1092-1097.
- 12) Y. Ikematsu, D. Shindo and T. Oikawa: *Mater. Trans., JIM* **41**(2000) 238-241.
- 13) T. Shibata, Y. Ikematsu and D. Shindo: *J. Electron Microsc.* **50**(2001) 29-31.
- 14) C. Deininger, G. Necker and J. Mayer: *Ultramicroscopy* **54**(1994) 15-30.
- 15) Y. Tomokiyo and S. Matsumura: *Materia Japan* **37**(1998) 403-

- 405.
- 16) O. L. Krivanek, C. C. Ahn and R. B. Keeney: *Ultramicroscopy* **22**(1988) 103–116.
- 17) D. Shindo, Y. Ikematsu and Y. Murakami: *JEOL news* **35E**(2000) 10–13.
- 18) T. Oikawa, N. Mori, N. Takano, Y. Harada and M. Ohnishi: *J. Electron Microsc.* **39**(1990) 437–443.
- 19) D. Shindo, T. Oku, J. Kudoh and T. Oikawa: *Ultramicroscopy* **54**(1994) 221–228.
- 20) P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley and M. J. Whelan: *Electron Microscopy of Thin Crystals*, (London Butterworths, 1965) pp. 100–103.
- 21) N. M. Butt, J. Bashir, B. T. M. Willis and G. Heger: *Acta Cryst.* **A44**(1988) 396–398.
- 22) R. F. Egerton and S. C. Cheng: *Ultramicroscopy* **21**(1987) 231–244.