

HU-11D 形 日立電子顕微鏡の諸特性

Several Characteristics of Model HU-11D Hitachi Electron Microscope

赤堀 宏* 浅井 孝行**
Hiroshi Akahori Takayuki Asai
片桐 信二郎*** 小 笹 進****
Shinjiro Katagiri Susumu Ozasa

要 旨

保証分解能の向上，操作性の向上，応用分野の拡大など市場の要求に応じて，従来発売されていた HU-11B 形を改良し，HU-11D 形を完成した。おもな改良点は，(1) 照射系の軸調整に電磁方式を採用したこと，(2) 暗視野像観察用に 3° ビーム偏向装置を開発したこと，(3) コンデンサ，対物両レンズに電磁式スチグマトールを採用して操作性と性能を向上したこと，(4) 電子銃のバイアス電圧を連続可変とし，最適条件でのポイントフィラメントの使用を可能にしたこと。(5) 新たに焦点合せ用，軸調整用，視野選択用など目的に応じた蛍光板を設けたこと，(6) 高圧基準抵抗の温度制御，水銀電池の採用などにより高圧安定度，および各レンズ励磁電流の安定度を向上させたことである。以上の改良により 3.8 Å の分解能保証が可能になり，最高性能としては金の (111) 結晶格子像 1.18 Å (世界記録) の撮影に成功した。

1. 緒 言

日立製作所が 1939 年以来的研究結果をまとめて電子顕微鏡(以下電顕と略す)を工場生産に移したのは 1949 年である。日立製作所中央研究所では引続き電子レンズの収差に関する実験的研究と電子レンズ用磁性材料の開発研究が行なわれ^{(1)~(5)}，研究結果は逐次製品に取り入れられてきた。電子レンズに関する基礎研究は HU-9 形の完成で一応の完結をみ，世界水準の電顕として 1957 年より海外に進出した。HU-10 形以降は研究結果を満足する磁気回路の構造的な研究，操作性の向上，ならびに応用分野の拡大を図る付属装置の開発研究に向けられた。このようにして電子像を結像させる鏡体関係は HU-11P 形においてほぼ完全なものとなったが，一方電顕の応用分野においては試料の作製技術が進歩し，分解能の向上が期待された。HU-11P 形の分解能を限定していたのは主として加速電圧の変動に基づく色収差であることが判明したので，新回路方式の電源を開発した⁽⁶⁾。これは出力電圧の変動分を負帰還させるものであるが，その変動分を検出すべき基準抵抗を他の回路素子から熱的，電気的に分離することによって長周期変動 (drift)，短周期変動 (fluctuation) を飛躍的に改良させることができた。合わせて各電子レンズの励磁電流安定回路にも同様な思想を取り入れることにより，電源の総合安定度は $1 \times 10^{-5}/\text{min}$ を保証できるようになった。この電源を採用して HU-11A としたが⁽⁷⁾，中央研究所における性能試験の結果，金の (111) 結晶格子 2.35 Å の撮影に成功し，世界最高の分解能を認められるに至った⁽⁸⁾。この高分解能を効率よく撮影できるように若干の改良を加えたものが HU-11B である。

HU-11B の性能は次々と得られた分解能記録によって証明されたが⁽⁹⁾，性能面にのみ改良の重点がおかれたため操作性においてやや不十分な点が目だってきた。特に照射系調節や対物レンズスチグマトールは安定性に重点が置かれ機械的に行なうように設計されているため，最高性能を得るには多少の熟練を必要とし，HU-11B 固有の性能を十分発揮できないきらいがあった。今回これを改良して，機械的には工場にて調整のうえ固定し，観察操作上必要な調節はすべて電磁的に行なうようにして操作の簡便化をはかった。この電磁

的調節は安定回路，調節回路の増設という欠点はあるが，動作の円滑と，操作要素の単純化が行なえるという利点がある。また，この電磁軸調整の動作範囲を拡大することにより，試料に入射する電子線の方法を傾け，絞りによって直進電子線をさえぎり，試料中での回折電子線，または散乱電子線のみによる軸上色収差のない暗視野像も観察可能にした。この電磁的軸調整は複数個のプリズムを組み合わせて電子線の進路を曲げるものであるから，電子線束は必然的にひずみ作用を受けるので，ひずみ補正装置を必要とする。本装置では電磁的ひずみ補正装置を第 2 収束レンズに設置した。対物レンズにもこのひずみ補正装置が必要であるが，これは電子レンズの軸非対称による焦点位置の差(非点収差)を補正するもので，一般にスチグマトールと呼ばれている。HU-11B は機械的なスチグマトールを採用していたが，本装置では照射系用のものと同一方式を採用した。電顕の分解能を左右する一要因として，試料に入射する電子線の干渉性が問題とされている。この可干渉性電子線としては点光源より発射される微小断面の電子線束が要求される。点光源としてはヘアピン形フィラメントの先端に着けられた鋭いチップの先端を利用するが，この先端から発射される電子線を一点に集中させるためには電子銃のグリッド(ウエネルトシリンダ)に印加されるバイアス電圧を細かく調節することが必要であるので，本装置ではバイアス電圧を 0 から 1,000 V まで連続可変にした。

ポイントフィラメントを使用した場合は，試料面上の電子流密度をきわめて高くできることから直接 50 万倍以上の像を観察することも可能になる。このような高倍率では蛍光板上に数 Å の像を見分けることも可能となるから電源の安定度はいっそう高度のものが要求される。本装置では基準抵抗タンクを温度制御することによって熱的飽和に達する時間を短縮させた。また，差動増幅器の基準電池も従来のマンガン電池を水銀電池に変更して室温変動および経年変化に基づく出力変動を改善した。このほか，蛍光板も従来の視野選択用のほかに軸調整用，焦点合せ用，広視野観察用を加えて，それぞれの目的に適した使用を可能にした。

以上の改良により，工場試験による保証分解能を 3.8 Å に向上させることができた。なお，中央研究所における分解能限界試験にては金(111)の結晶格子の 1/2 格子 1.18 Å の撮影に成功している(本誌「電子顕微鏡の位相差コントラスト像と分解能」参照のこと)。

図 1 は HU-11D 形の外觀である。

* 日立製作所那珂工場 工学博士

** 日立製作所那珂工場

*** 日立製作所中央研究所那珂分室 工学博士

**** 日立製作所中央研究所那珂分室

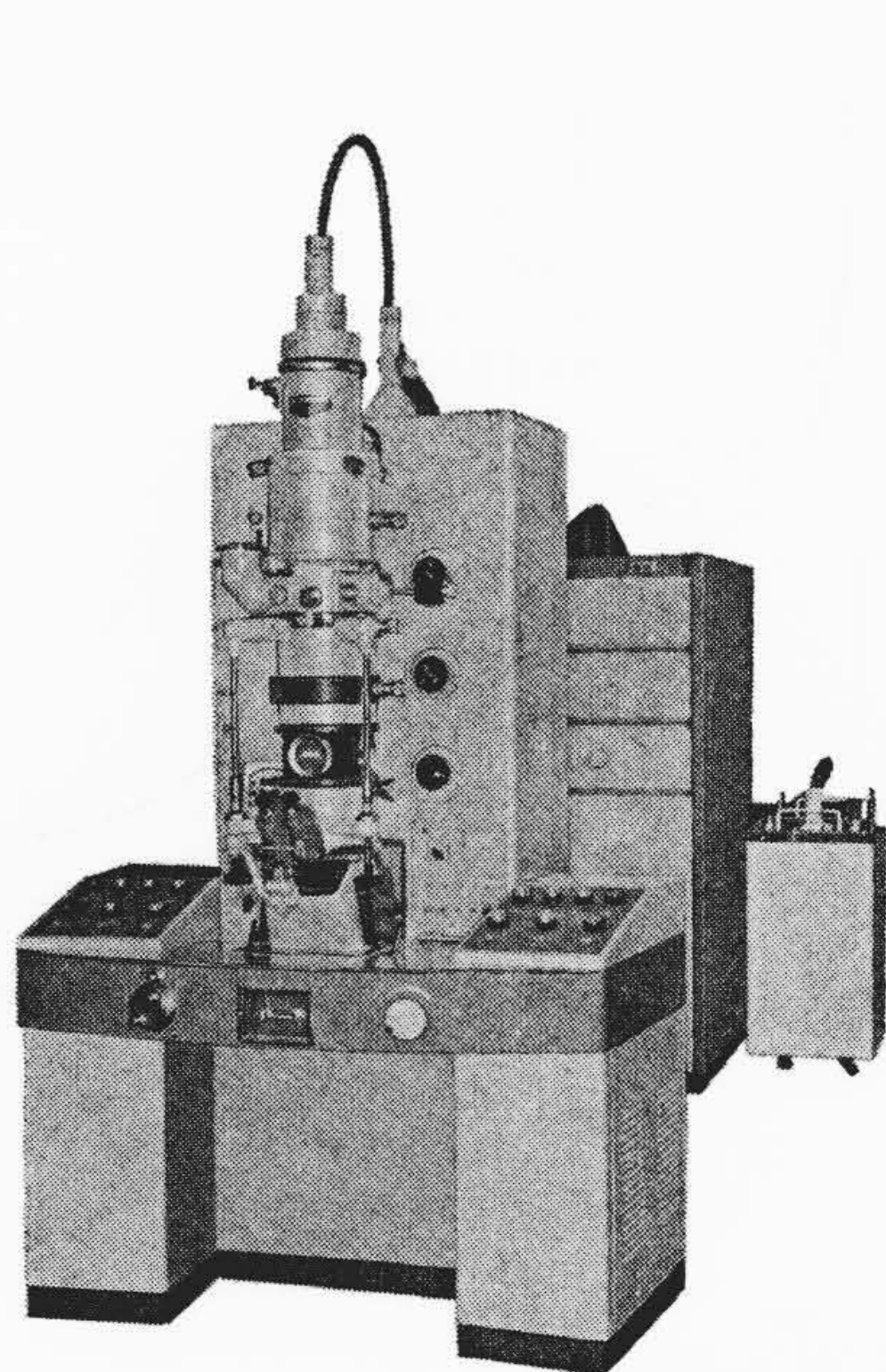


図1 HU-11D 形電子顕微鏡

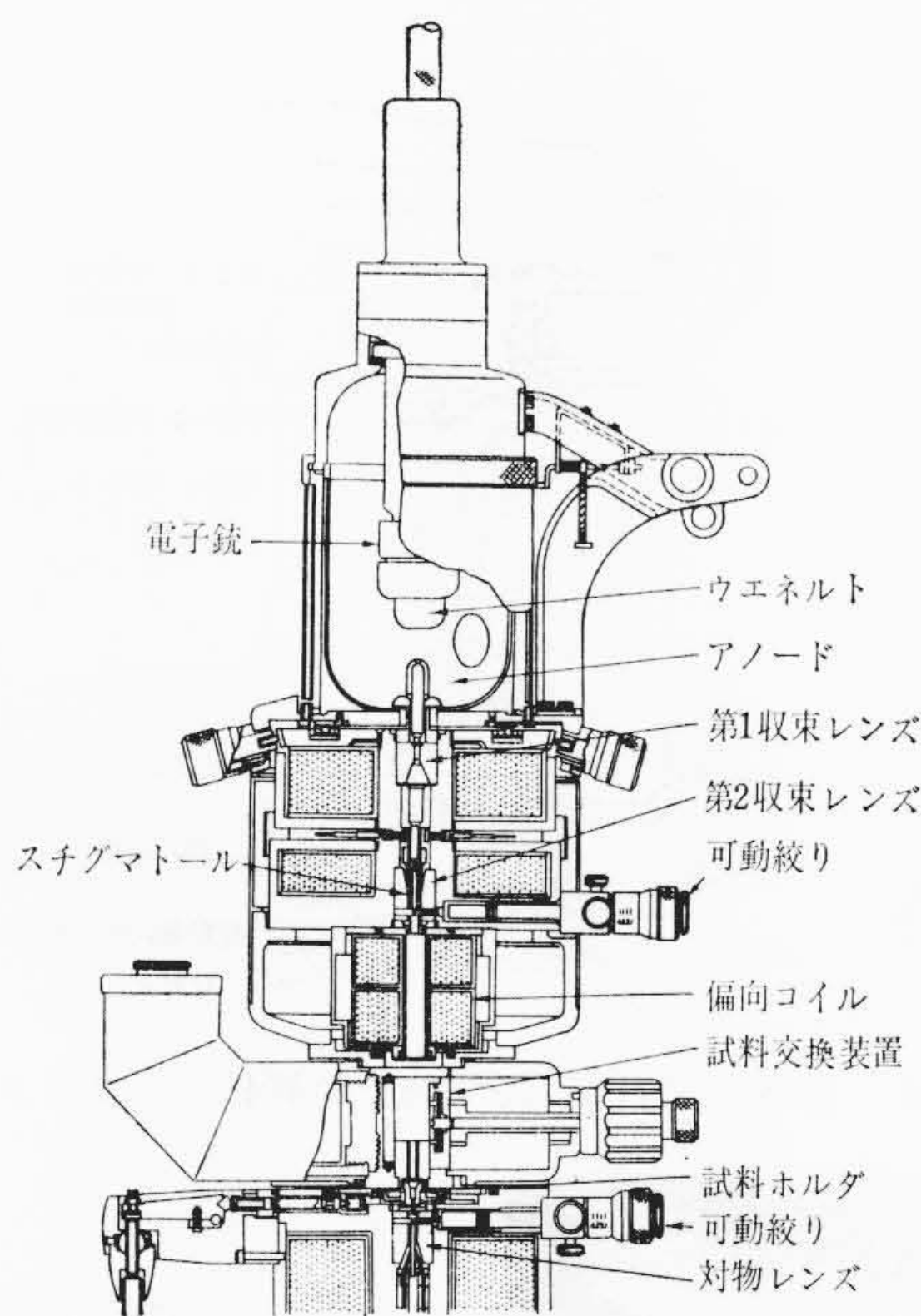


図2 照射系と試料室の構造

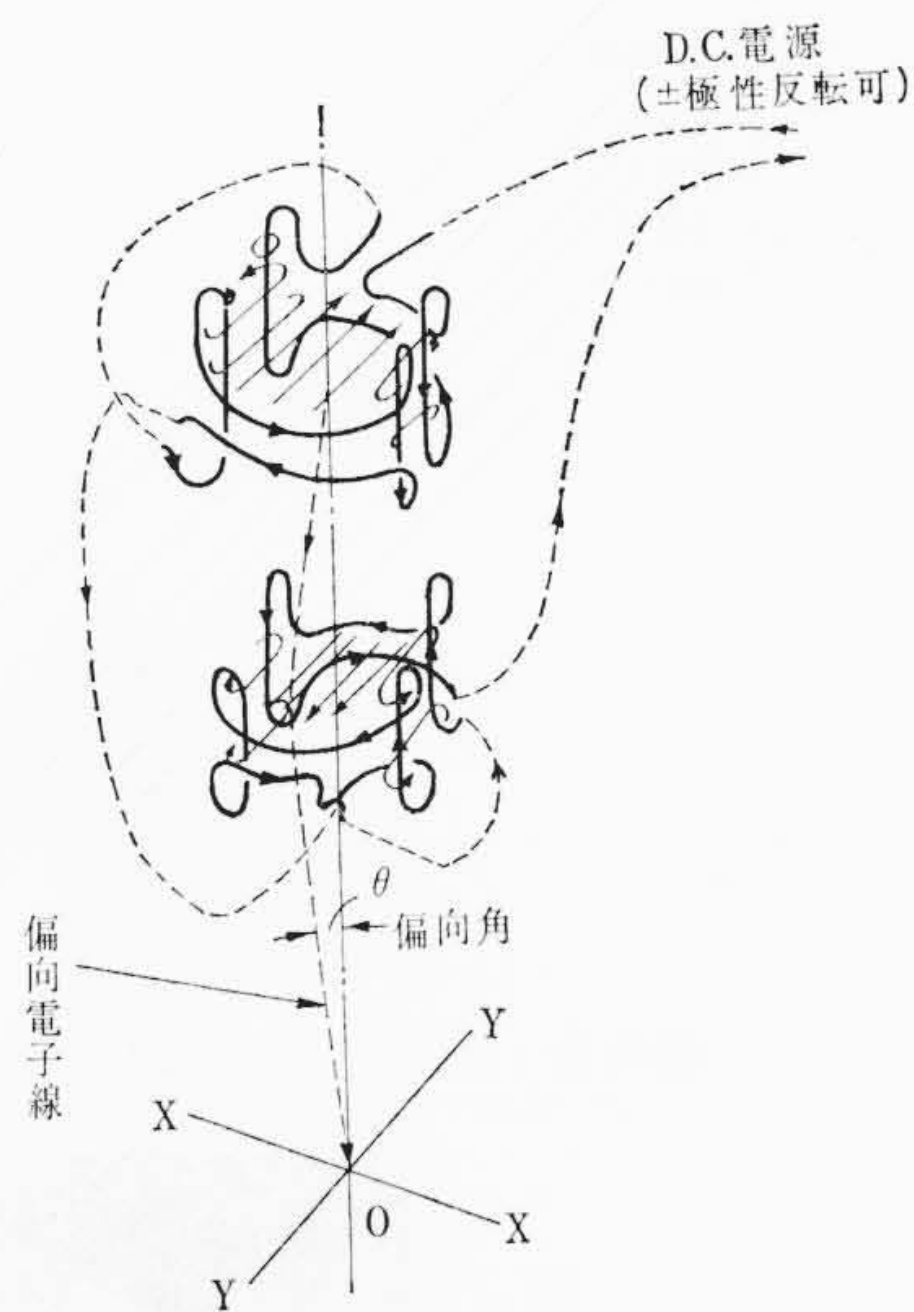


図3 偏向コイル結線図

2. 各 論

2.1 鏡体の構造と諸特性

鏡体は一段加速電子銃とダブルコンデンサレンズおよび軸調整用偏向コイルよりなる照射系と、対物、中間、投射による3段レンズ結像系、および観察室、カメラ室よりなる記録系の三つに大別できる。

2.1.1 照射系と試料室

図2は照射系と試料室の構造を示したものである。電子銃室は二重円筒になっていて外筒は真空室を形成する。内筒は薄肉のアルミニウムを成形加工して作られ、その形状と内面の鏡面仕上げによって電子銃に対する電界を平均化し、アノードとウエネルトの作るレンズ効果を助長している。この内筒は軽金属製であるから、X線の放射を少なくし、外筒の鉛遮へいとの相乗効果により電子銃部からの漏えいX線を防止している。外筒は上方がフリップトップ式に開閉するので、フィラメント交換が容易である。ウエネルトは電子放出孔近辺を小さなりエントラント形とし、ウエネルト全体の球状とアノードの形状によって電子線を強く収れんし、 $30\mu\phi$ 以下のクロスオーバを得ている。

HU-11Dの収束レンズには二重収束方式を採用している。第1収束レンズは強励磁レンズとして収差を小さくし、電子銃でのクロスオーバを第1収束レンズ後方の第2クロスオーバポイントに導いて $1\mu\phi$, $2.5\mu\phi$, $5\mu\phi$ のスポットサイズに縮小する。第1収束レンズの縮小率は加速電圧と連動して常に一定になるようにレンズ電流が切り換えられる。第2収束レンズと第1収束レンズ、および試料との距離の比は1:2にあるので、第2収束レンズで作る試料面でのクロスオーバの大きさは $2\mu\phi$, $5\mu\phi$, $10\mu\phi$ となる。この切換は操作盤上の第1収束レンズ調整ツマミで行なわれる。第1収束レンズと第2収束レンズとは機械的に同軸加工してあるので調整の必要がない。フィラメント交換による電子銃の位置のズレは電子銃全体を水平に移動して第1収束レンズの中心に電子線を投入するようにしてやればよい。照射系全体は試料室に対し機械的に固定されているので、収束レンズ系と対物レンズの光学的中心とは必ずしも一致しているとは限らない。この機械的なズレを1mmとしても角度に換算すると 5×10^{-3} radに過ぎないが、電子線の発射方向の傾きも考慮して 2×10^{-2} radまで電子線を曲げることのできる偏向コイルを第2収束レンズと試料との間に設

けた。コイルはテレビのブラウン管などに使用されているくら形コイルを2段に組み合わせたもので電子線に対し一様な水平方向の磁界を作るのに適している。図3はX軸コイルのみを取出し、コイルを1本の線で表わしてその結線と電流の方向、および磁界の方向を説明したものである。上のコイルと下のコイルの作る磁界の向きを反対方向とし、磁界の強さの比を1:1にしておけば電子線は光学軸と平行のまま水平稼動する。上下コイル間の距離と、下部コイル—試料間の距離との比に逆比例した分だけ下部コイルの磁界を強くすれば、電子線は試料の一点を照射したまま試料への入射角 θ を自由に変えることができる。このXコイルに対し、Yコイルを 90° ずらして組み合わせれば、電子線は偏向コイルの作る磁界のベクトル和に従って偏向される方向を変えるから、試料上を自由に平行掃引させたり、入射方向を変えたりすることができる。HU-11Dには標準装備として 1° までの偏向装置を組み込んであるが、コイルをそのままにして電源のみを追加することにより 3° 偏向として使用することができる。この角度は金の回折リングにして(440)に相当する。図4は偏向角(回折角 2θ)と、面間隔 d の関係を示すグラフである。この偏向装置は回折電子線や散乱電子線のみによって結像させる暗視野観察に有用である。暗視野像を得る簡便法として対物絞りの移動により透過電子線を遮断する方法があるが、像を結ばせるべき回折電子線、あるいは散乱電子線はレンズの軸外にあるため軸上色収差の影響を受けて良い像を結ばない。入射電子線を傾斜する方法は、結像のための電子線のみをレンズの中心を通すようにするため、分解能の高い良質の像を結ばせることができる。図5は暗視野像の一例である。 a は通常の透過電子線像、 b は電子線を傾けて散乱電子線のみをレンズの中心に導いて結像させた暗視野像、 c は a の透過像の状態から対物絞りを動かして透過電子線を遮断し、対物絞りの穴を透過した散乱電子線によって結像させた暗視野像で、 b と c の像の差は著しい。結晶試料などの回折線による暗視野像観察にはさらに効果を発揮する。

この偏向装置は一種のプリズムであるから、電子線は一方向に強く偏向作用を受けるためスポットの形状が真円でなくなる。これを補正するためにいっそう効果のよい場所として第2収束レンズ内にひずみ補正装置(スチグマトール)を設置してある。これにより最大 3° 偏向させるスポットでも真円に補正することがで

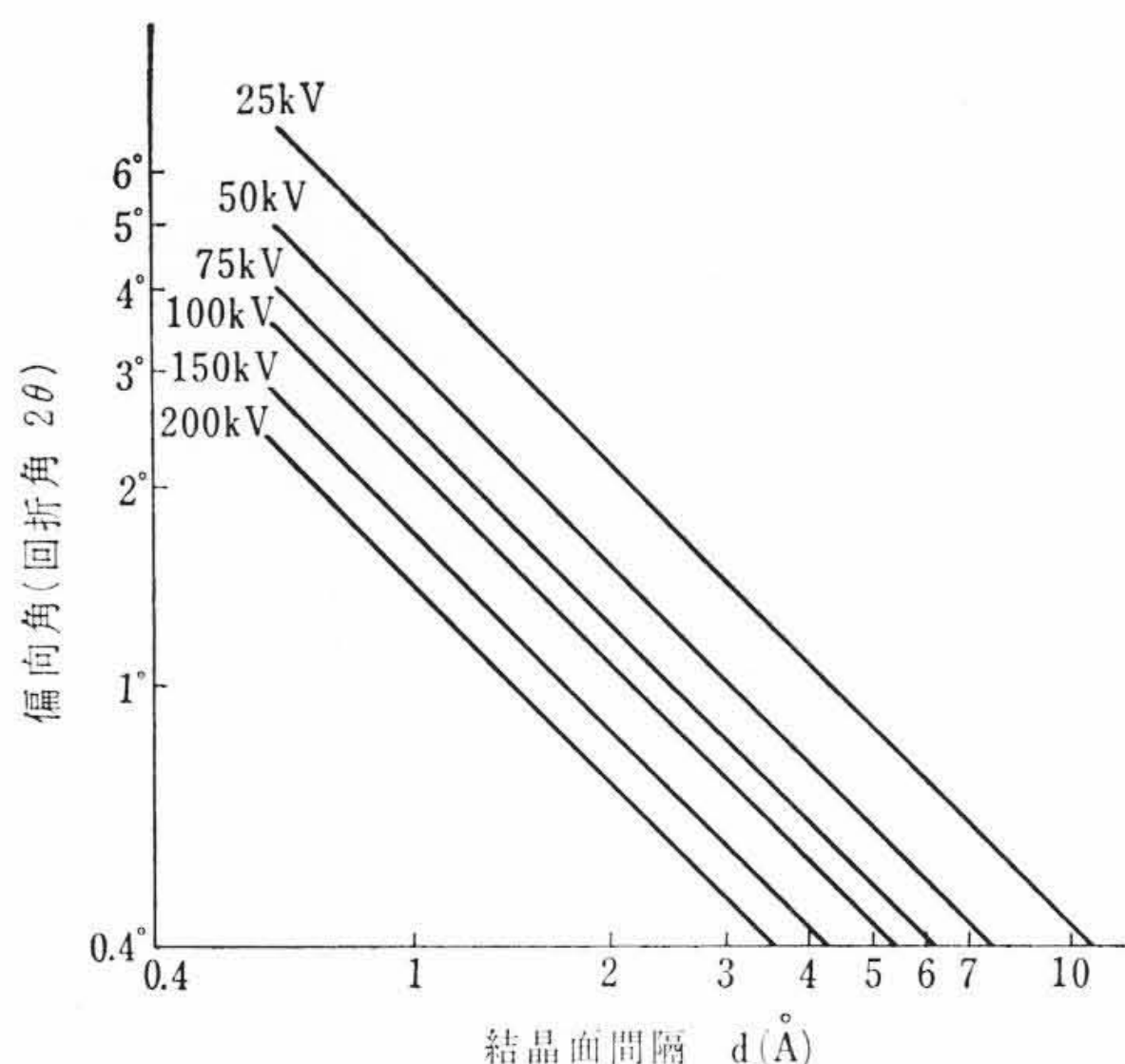


図 4 偏向角 (回折角 2θ) と面間隔 (d) の関係

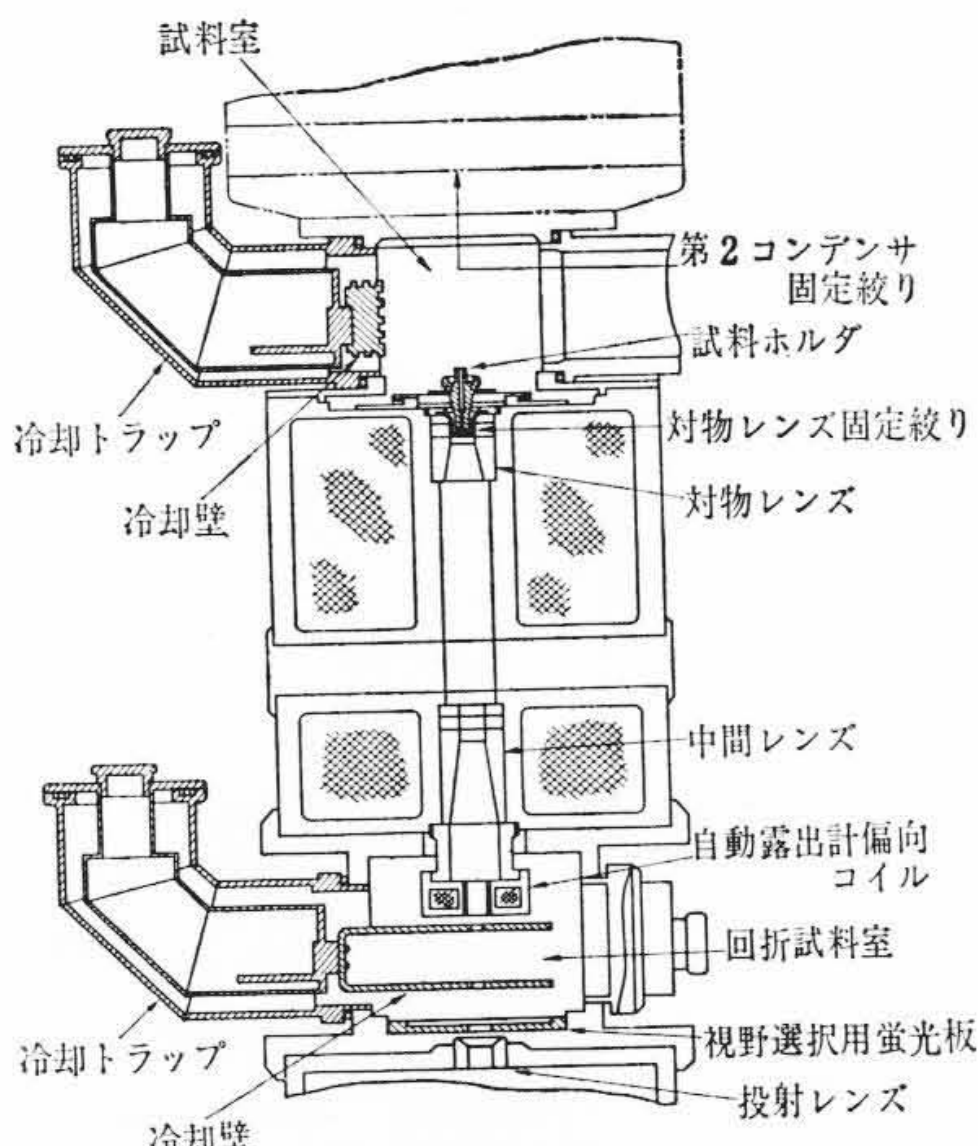


図 6 試料室 (汚染防止装置付) と結像系

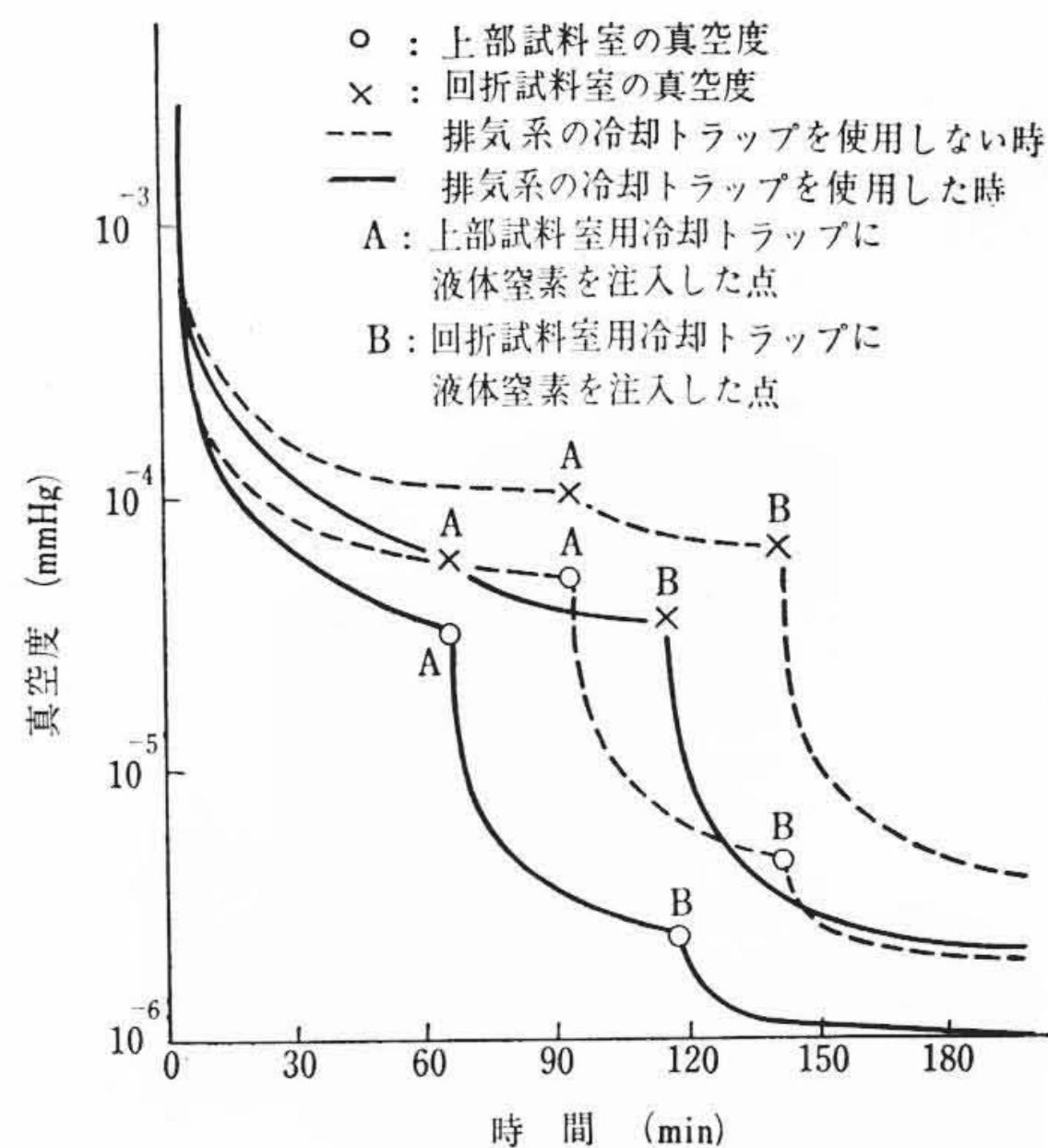
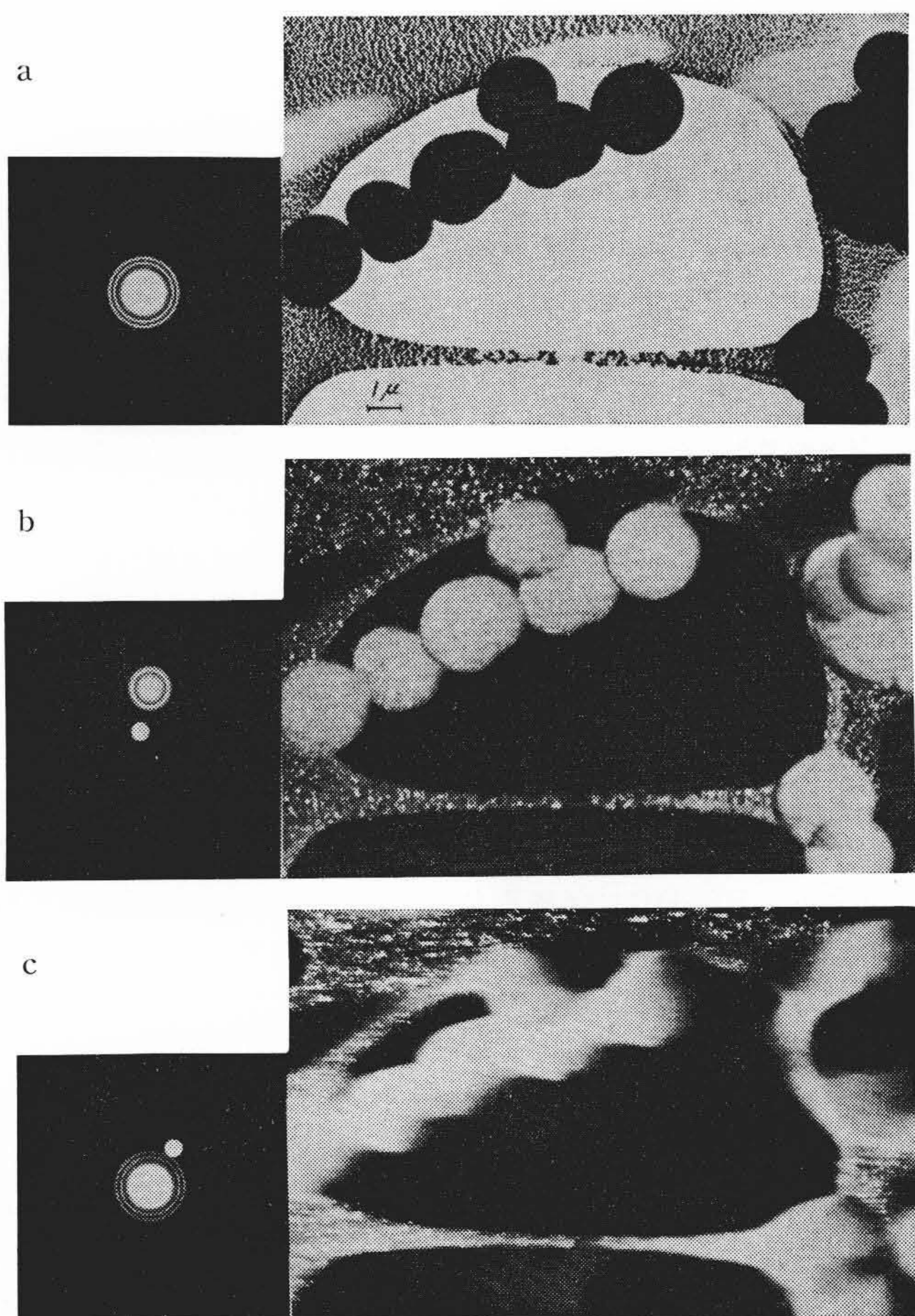


図 7 試料室の真空度
注：時間 0 は予備排気を開始した時点



a : 明視野像と金の回折像
b : 電子線偏向による暗視野像 偏向角 2.3° 対物絞り位置 0°
c : 対物絞りの移動による暗視野像 偏向角 0° 対物絞り位置 2.3°

図 5 金を蒸着したカーボンブラックの電子顕微鏡像と金の回折像 (加速電圧 100 kV)

きる。その構造原理は対物レンズの項で説明する。

試料室には図 6 にあるように冷却トラップが取り付けられている。このトラップの一端には表面積を大きくした冷却壁が取り付けられていて、トラップに液体窒素を注入すると約 10 分でその表面は -150°C 以下になり、試料室内の有機ガスを吸着する。試料室内は真空度が上昇するばかりでなく、きれいな真空となるから試料への有機ガスの沈着がなくなり、汚染が防止される。最近写真乾板としてフィルムが使用されるようになったので、写真乳剤からの放出ガスによる汚染が問題になってきたが、図 6 のように

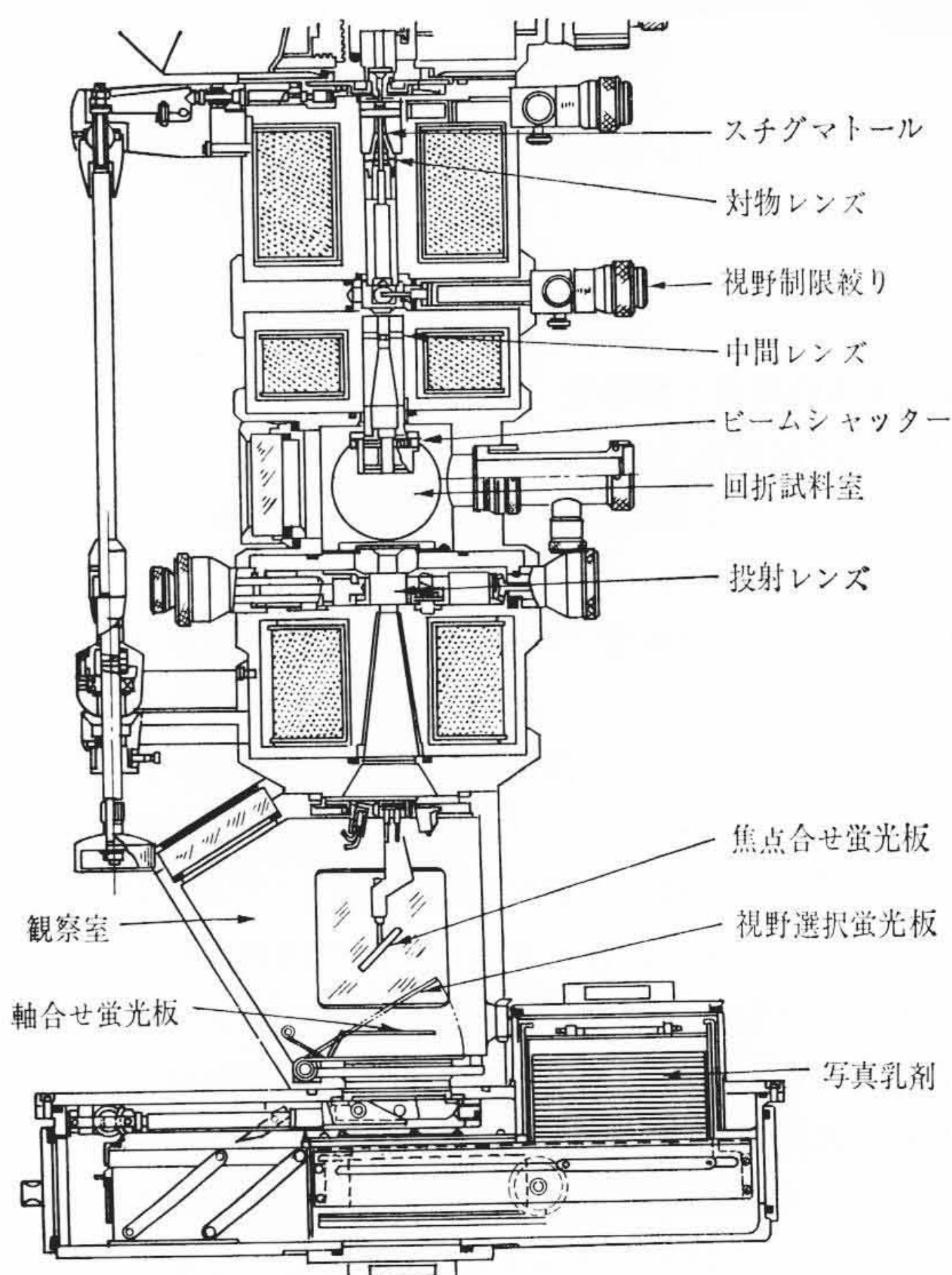


図 8 結像系と記録系

回折試料室にも同じ構造の冷却トラップを使用することによりきわめて効果的に汚染を防止することができる。図 7 は試料室の真空度とトラップの効果を示すものである。

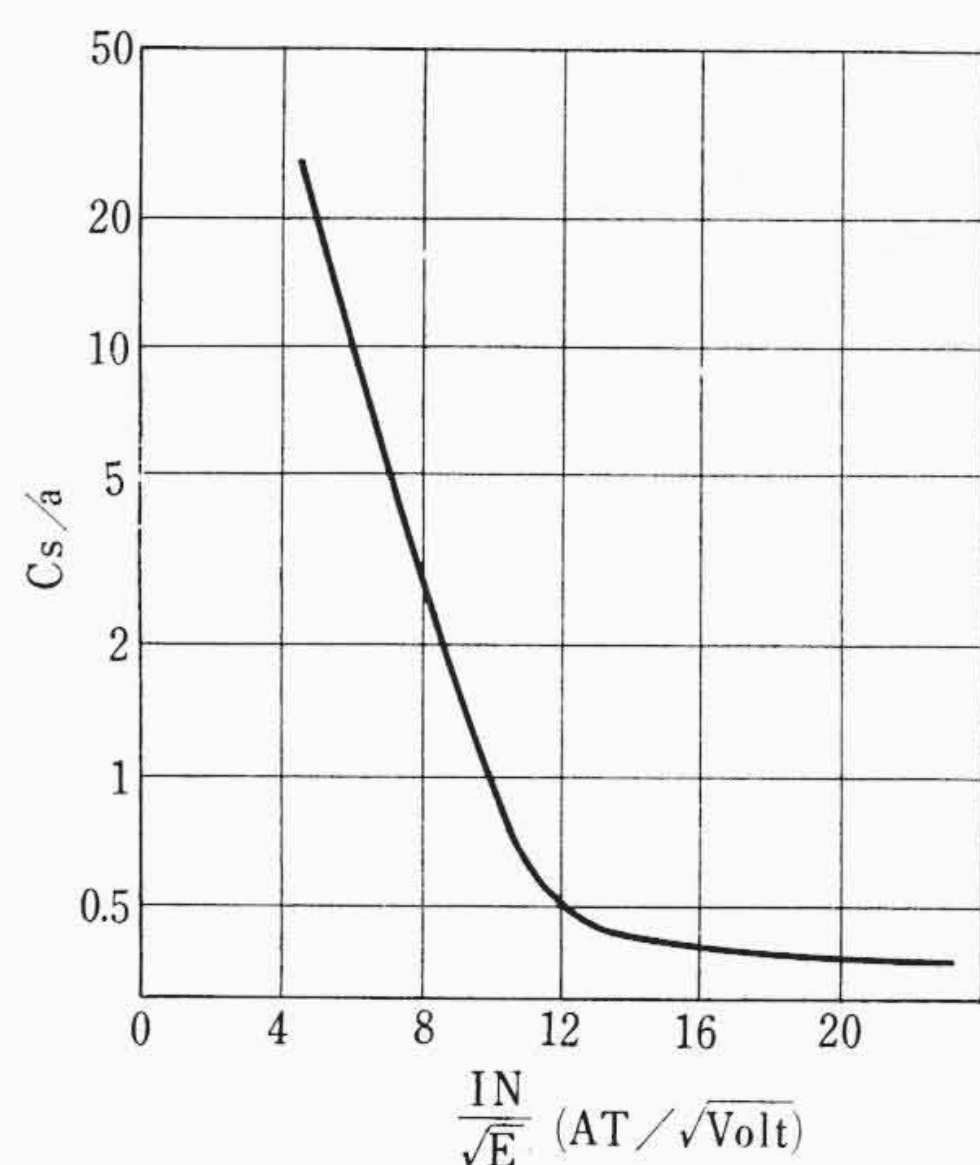
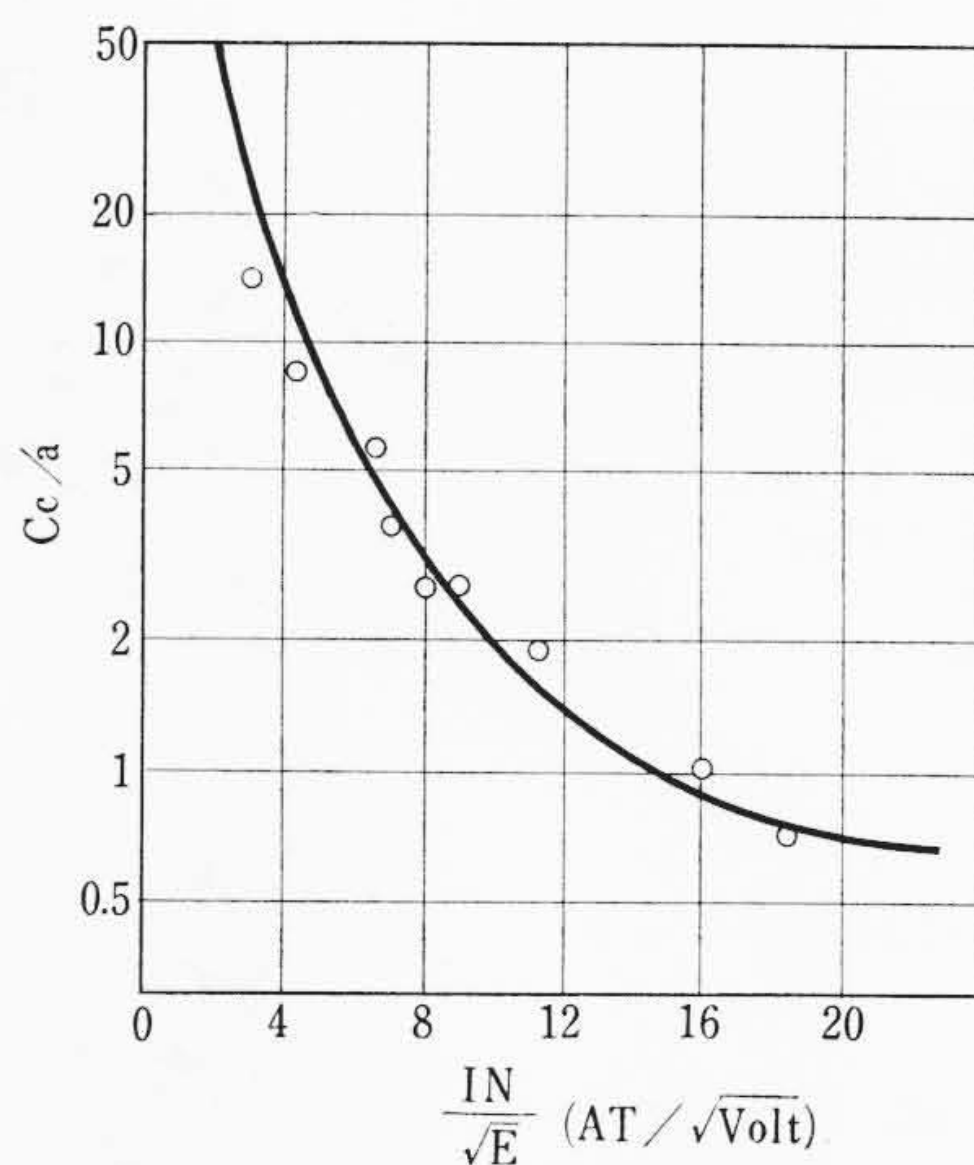
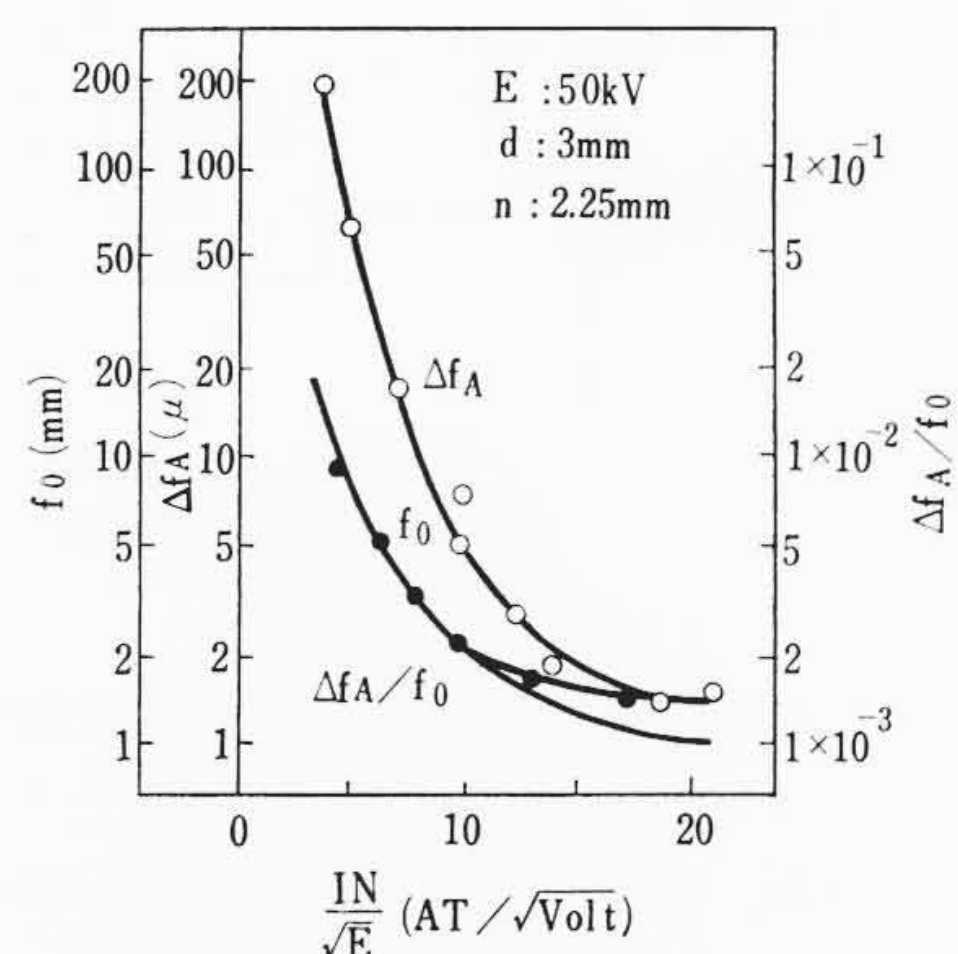
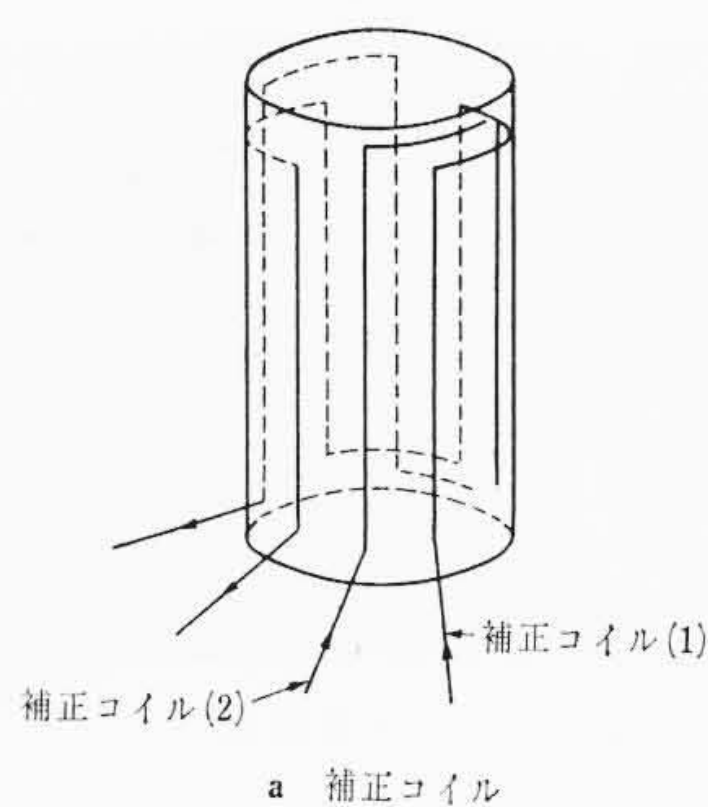
2.1.2 結像系と観察記録系

図 8 は対物、中間、投射レンズよりなる結像系と、観察室、カメラ室を示すものである。結像系の中で最も重要な部分是对物レンズであって、分解能の基本となる球面収差、色収差、非点収差は通常対物レンズのものが代表される。これら収差は電子レンズの励磁力を強めるほど小さくなる^{(1)~(5)}。図 9~11 は上記 3 収差と励磁力の関係を示したものである。色収差には電源の変動によって生ずる像の回転と倍率の変化も含まれる。これを軸外色収差と呼ぶ。対物レンズと投射レンズの励磁条件をある特定の条件下にあればこの軸外色収差による像の乱れをきわめて小さくすることができる。これを軸外色収差補償と呼ぶ⁽²⁾。

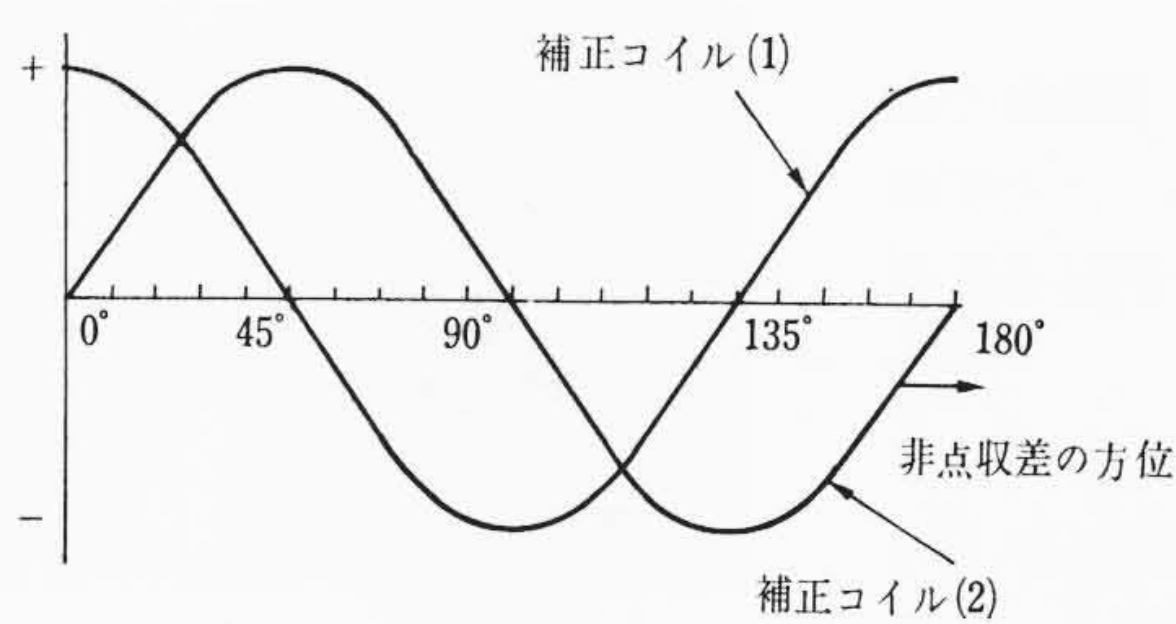
HU-11D 形の理論分解能 $d_{\min}$ は、次式

$$d_{\min} = 0.43 C_s^{1/4} \lambda^{3/4} \dots \dots \dots (1)$$

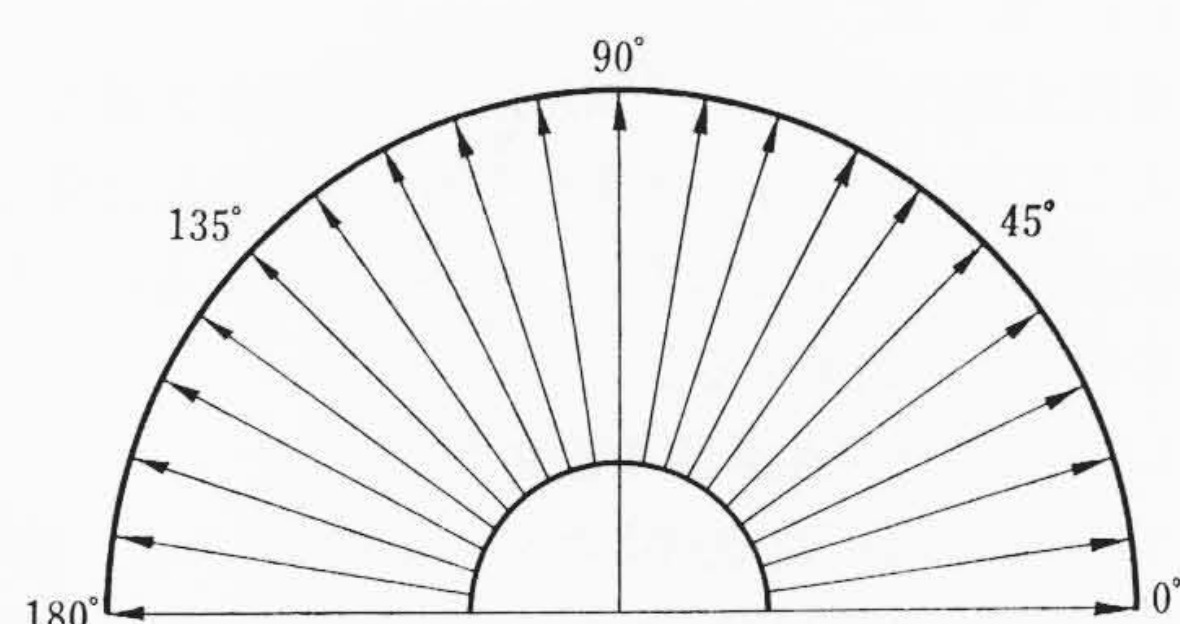
$$\alpha_{\text{opt}} = 1.4 C_s^{-1/4} \lambda^{1/4} \dots \dots \dots (2)$$

図9 球面収差係数 (C_s) と励磁力の関係図10 軸上色収差係数 (C_c) と励磁力の関係図11 非点収差 (Δf_A), 焦点距離 (f_0) と励磁力の関係

a 補正コイル



b 各コイル電流の変化模様



c 合成非点収差の方位変化の模様

図12 スチグマトールの原理図

によれば、約 $2.3 \text{ \AA}$ となる。 λ は電子線の波長で 100 kV の場合 $3.7 \times 10^{-2} \text{ \AA}$, C_s は対物レンズの球面収差係数で 1.6 mm , α_{opt} は対物レンズの最適開口角で $9.7 \times 10^{-3} \text{ rad}$ である。

HU-11D の三段拡大レンズ系において、中間レンズは倍率変換の役目を果たす。中間レンズの励磁電流を変えることにより対物レンズによってできる任意の拡大像を投射レンズの物面に投影する。このとき、対物レンズの後方焦点面に中間レンズの焦点を合わせると倍率は零となるが、このとき試料が結晶であればこの後焦点面にはその結晶の回折斑点ができています。この回折斑点を投影レンズで拡大すればその結晶の微小部の回折像が観察できる。これを制限視野回折と呼ぶが球面収差を考慮した制限視野の下限範囲 R (半径) は

$$R = C_s \cdot \left(\frac{\lambda}{d} \right)^3 \dots\dots\dots (3)$$

で求められる。 C_s は対物レンズの球面収差係数、 λ は電子線の波長、 d は回折斑点に対応する網平面の面間隔で、 d を $0.8 \text{ \AA}$ までとすると、 100 kV の場合、

$$R \approx 1,550 \text{ \AA}$$

となり、制限視野半径は試料面で約 $1,500 \text{ \AA}$ が限度となる。 100 kV の場合はこの辺が限界であり、さらに微小部を制限したい場合は加速電圧を上げなければならない。

対物レンズには非点補正装置が組み込まれているが、これは2組の長方形コイルを組み合わせた電磁式スチグマトールである。その原理図を図12に示す。2組のコイルはaのように互いに 45° ずらして組合せでありこれにbのように 90° 位相のずれた $\sin$, $\cos$ の電流を流すとこのコイル群の作る非点収差は、非点量一定のまま、その方向はCのように回転する。非点の大きさは電流によって連続的に自由に変わられ、方向は60ステップ切換式であるからこのスチグマトールでの最小補正量は固有非点の $1/20$ まで

表1 倍率表

投射レンズ 加速電圧	投射レンズ No. 1	投射レンズ No. 2	投射レンズ No. 3
50 kV	1,000~500,000	600~200,000	400~85,000
75 kV	1,000~340,000	600~150,000	400~60,000
100 kV	1,000~250,000	600~100,000	400~45,000

可能である。

回折試料室は照射系で作る電子線の微小スポットを利用して高分解能電子回折が行なえる。固定のカメラ長は約 450 mm であるが、回折試料室の下には投射レンズがあるので、このレンズを働かせれば最大 10 m までカメラ長を延ばすことができるので高分散回折や面間隔の大きい高分子結晶などの回折に適している。

HU-11D の投射レンズは3個のポールピースを真空外より交換するターゲット方式である。これは励磁条件を対物レンズの励磁条件と組合わせて軸外色収差を最小にするため、それぞれのポールピースによってカバーする倍率の可変範囲が異なる。表1は倍率範囲を示す表で、観察目的に応じた倍率範囲のポールピースを使用すれば、その間是一个の調節ツマミで連続に行なわれる。

観察室は三方から終像を観察することができる。視野選択蛍光板は撮影前の視野選択と細部の観察を行なうために強い電子線照射を避けねばならないので、軸調整など電子線を強く照射するための小さい蛍光板を新たに取り付けた。また、双眼ルーペでの焦点合せ用として微粒子、高コントラストの小蛍光板を設けた。これら小蛍光板は不要のときは視野の外にのけておくことができる。観察室の窓ガラスの内面には透明導体処理を施してある。これはスクリーンなどから反射した電子線による帯電によって終像がひずむことを防止するため、高分解能回折には特に重要である。

カメラ室は電子線像を写真に記録するためのもので、36枚の写

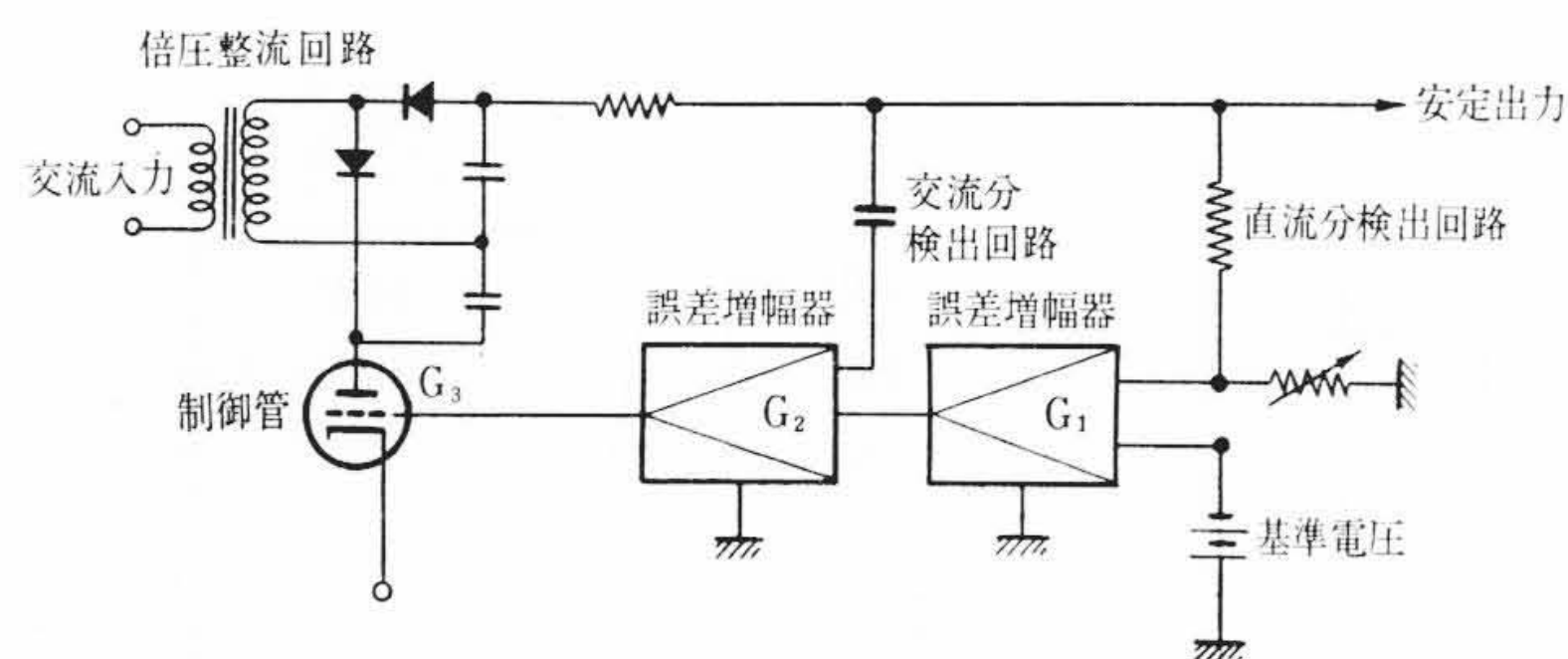


図13 高圧安定回路ブロック図

真が連続に撮影できる。写真乳剤の装てん、取出しはエアロックによって鏡体に切離し随時行なうことができる。

なお、電子線通路を高真空に保つ排気系は電子銃、結像系を油拡散ポンプを通した2系統で、また、試料室、カメラ室、フィルム乾燥室は予備排気を回転ポンプ一系統で排気するようになっている。

2.2 電源装置

電源装置の中心は電子加速用の高圧発生装置とレンズ励磁用の電流安定装置で、電頭のパフォーマンスを左右する重要な部分である。この電源部分についてはすでに本誌に発表されているので⁽⁶⁾、今回は改良部分のみ簡単に説明する。

2.2.1 高圧発生装置の改良点

図13は高圧安定回路のブロック図である。高圧出力は50, 75, 100 kVの3段切換式であるが、その安定法は出力の変動分を基準抵抗によって検出し、誤差増幅器により増幅して制御管にフィードバックさせている。問題は、この基準抵抗の温度変化による抵抗変化であるが、本装置では基準抵抗タンクに水冷パイプを巻き、一定温度の水を流して温度飽和時間を短縮させた。また、比較電圧用の基準電池に水銀電池を採用した。水銀電池はマンガン電池に比べて温度係数が1/10であるから、基準抵抗の改良と相まって出力電圧の変動を 3×10^{-6} に向上させることができた。

2.2.2 レンズ電流安定装置

電流安定装置も基本回路は高圧発生装置に等しい。レンズ回路の中で特に重要なのは対物レンズの電流制御であって、高い安定度とともに、微小ステップによる正確な電流のステップ変換が要求される。対物レンズは焦点合せに用いられるが、微小物体の焦点合せは肉眼のみでは不可能なので、正焦点の付近で段階的に焦点を変化させ数枚の連続露出写真の中から最も正焦点に近いものを選ぶ方法がとられる。本装置ではその変化幅を、流している電流値の 3×10^{-6} , 1.3×10^{-5} , 2.4×10^{-4} , 4.5×10^{-3} の変化幅で22段に切り換えられる4種類の変換器を設けている。これは焦点変化に換算すると1スラップ当たりそれぞれ、120 Å, 500 Å, 9,000 Å, 1.7μ になっている。図14はステップ変換による撮影例を示したものである。

この写真で示すように、焦点の位置で粒子の形状が変わっているから単に1枚の写真から微細構造を論ずることは危険であり、ステップフォーカスの有用性が認められる。

本装置では回路はすべてプリント配線で点検保守は容易である。全回路を鏡体と別キャビネットに収容して別室への設置を可能にしてある。電源の操作はすべて鏡体側の操作盤上よりリモートコントロールされる。

2.3 性能

本装置の性能については本誌「電子顕微鏡の位相差コントラスト像と分解能」に孤田氏が執筆しているのでこれを省略する。保証分解能は4.5 Åである。

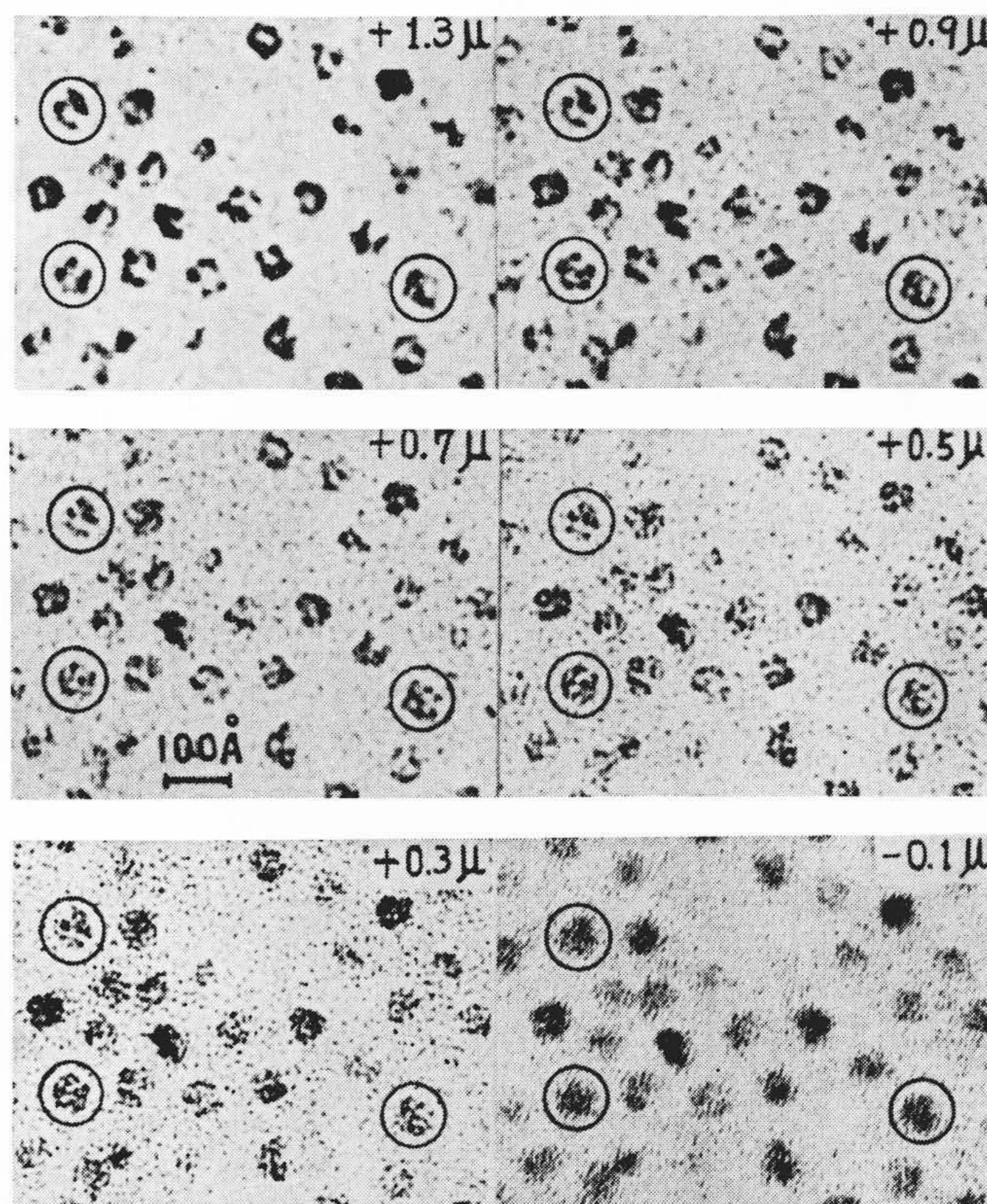


図14 ステップ変換によるフェリチンの撮影例

3. 結 言

電頭の使用が広くなるに従い、試料をいろいろな状態に保持する特別付属装置が要求され、試料加熱装置、試料冷却装置など多くの付属装置が用意されているが、最近開発されたものに加熱傾斜装置(HK-2B形)がある。これは試料を800°C付近まで加熱しながら傾斜して行くもので結晶試料の熱変化の観察に有効である。電頭の微小電子線を利用した微小部X線分析装置(HXA-1形)も開発されている⁽¹⁰⁾。これは分光結晶としてマイカを用いMgからUまでの分析ができる。結晶をKAPに交換することも可能で、特にNa, Mg, Alなど軽金属の分析に有効である。

以上、HU-11D形の特性について改良点を中心に述べたが、今後の課題としてさらに電源の安定化を行なって分解能を向上させること、真空排気操作の自動化などが進められねばならない。

最後に本装置の完成に当たり、ご指導ご協力をいただいた、日立製作所中央研究所只野技師長、木村部長、孤田研究員、日立製作所那珂工場の大沼部長、野口課長、小沼課長はじめ設計、製作関係の諸氏に厚くお礼申し上げます。

参 考 文 献

- (1) N. Morito: J. Appl. Phys. Vol. 25, 986, 1954
- (2) S. Katagiri: Rev. Scie. Inst. Vol. 26, 1955
- (3) S. Katagiri: J. Japan Electronmicroscopy Vol. 1, No. 1, 1953
- (4) N. Morito et al: J. Japan Electronmicroscopy No. 5, 143, 1957
- (5) S. Katagiri: J. Japan Electronmicroscopy Vol. 8, No. 3, 1960
- (6) Y. Utsumi et al: Hitachi Review Vol. 11, No. 6, 1962
- (7) Y. Ohnuma et al: Hitachi Review, S.I. No. 10, 1964
- (8) T. Komoda: J. Japan Electronmicroscopy Vol. 13, No. 1, 1964
- (9) T. Komoda: J. Appl. Phys. Vol. 5, No. 7, pp. 603~607, July, 1966
- (10) S. Ozasa et al: Hitachi Review Vol. 15, No. 7, 1966