

# 超高電圧電子顕微鏡の金属学への応用

Application of High Voltage Electron Microscopy to the Studies of Metals

井 村 徹\*  
Tōru Imura

## 要 旨

従来の電子顕微鏡法における難点が、超高電圧電子顕微鏡の出現によってどの程度緩和されたか、その緩和(特に試料厚の制約に関するもの)が金属研究上どのような面で生かされつつあるのか、またその学問的意義はどうかといったようなことについてまず話が進められ、次には、超高電圧電子顕微鏡の活用の度を一段と高めるため、装置や実験技術上さしあたり改良してゆくべき問題点について、金属研究者の立場から、意見が述べられている。

## 1. 緒 言

1956年、P. B. Hirsch氏、W. Bollmann氏らによって、金属を薄くしてその内部を電子顕微鏡で直接観察する道が開かれてから、この方法は、金属の研究に広く利用され、その多くの分野の研究に画期的な進歩をもたらしてきた。

この間、装置的には分解能の向上や、鏡体内で種々の操作が行なわれる部品の開発が進み、また一方試料作成技術や回折理論をもとにした像の解釈などに関しても経験と知識が積み上げられて、利用者としては、たいがいのことにはことかかないまでになってきた。

しかし、このように方法的に一応確立され、また応用面で多くの成果があげられてきたものの、その反面では、これまでのような改良や精密化では解決されないような方法としての欠点ないし限界が改めて大きくクローズアップされることともなった。なかでも金属研究者にとって最も大きい欠点と思われたものは、電子線の物質透過能の弱さに帰因する試料厚におけるきびしい制約である。これはバルクな結晶での内部構造ないし現象の究明を心がける一般研究者には、最も大きな悩みであったといつてよい。

加速電圧が100 kV程度の従来の電子顕微鏡では、用い得られる試料の厚さは、電子線を比較的良好に透過するAlにおいてすらたかだか1ミクロン程度であったから、こういった極端に薄い膜試料による従来の実験結果は、薄膜特有の構造や現象を多分に含んだものになっているのではなからうかという懸念が付きまとい、それについての論議がしばしばなされてきた。特にそれは、薄膜にする過程で変化しやすいといわれるものが観察対象となったり、あるいは、寸法効果をうけやすいような現象を鏡体内で現出させて(鏡体内で薄膜試料を引張ったり加熱したりして)観察しようとするような場合にはことさらである。その前者としては、たとえば転位の分布や拡張の度合、後者としては、転位の運動、再結晶、析出、変態などに関する実験があげられよう。

したがって、金属研究者のいできてきた願いは、なんとかして試料厚の制約を緩和し、できるだけバルクに近い状態でものを観察して、信頼度の高い結果を得たいということであった。

ところで、厚い試料を電子線で透してみようとする、それには、電子線の加速電圧をあげるしかうまい手がない。しかも電圧を上げることによって付随的に、試料での電子線の吸収による色収差、回折像をうるための微小介在物の寸法の下限、あるいはものにもよるが観察状態での試料の変化などに関する従来の限界の緩和が期待される。

こうした願いや期待は、広く結晶での電子線の回折現象を取扱う理論、実験両面での研究者に共通したものであったわけで、そのよ

\* 名古屋大学工学部 理学博士(前東京大学物性研究所)

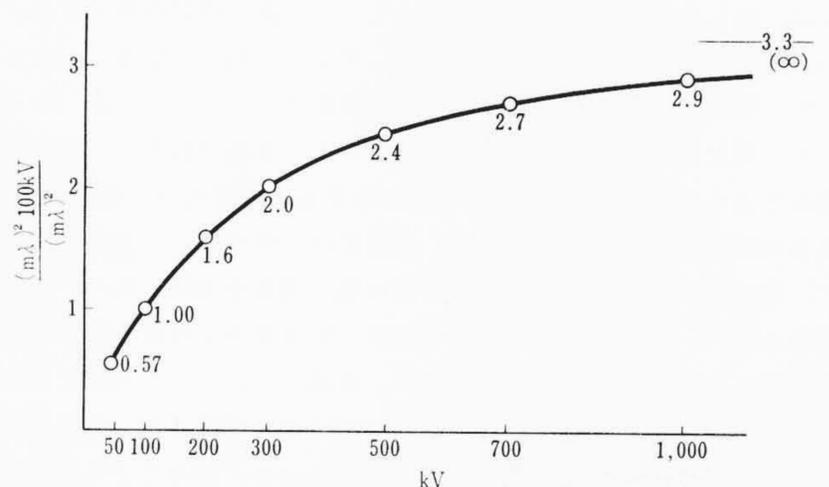


図1 加速電圧と透過能の関係

うな人達の願いが国内では総合研究班(代表者、名大榊教授)の組織を契機として結集し、新しく超高電圧電子顕微鏡といった有力な装置の開発を促すこととなり、この三、四年来の数グループの人達の異常な熱意と努力がそれを実現させた。そして今では、国外のものも合わせると、加速電圧が500 kV(名大、東大……日立製、金材技研、京大……島津製)、750 kV(ケンブリッジ大)1,000 kV(日立、日本電子)、1,500 kV(フランス電子光学研)などの電顕で実験が進められた。またアメリカUSスチール研、バージニア大では1,000 kVが、西ドイツマックスプランク研では650 kVのもの建設計画が進められるようになってきている。

そこで、ここではこのような超高電圧電子顕微鏡の出現により、従来の電子顕微鏡の性能上の限界がどの程度とり払われ、それが研究上の難点をどのように緩和したか、またその緩和が研究上どのように重要な意味をもつか、といったようなことを、私どもを含め最近国内数グループで行なわれてきた実験結果を主として引用しながら論じ、さらに進んで、この種高圧電顕が効果的に利用されるであろうと思われる将来の二、三の研究課題をあげて、それを遂行してゆくために装置上あるいは実験技術上どのような改良や工夫がなされるとよいかを述べてみたい。

## 2. 超高電圧電子顕微鏡の長所

### 2.1 試料厚の増大

図1は、電子線の透過能と加速電圧の関係をHirsch氏の理論計算の結果に従い図示したものである。ここでいう透過能とは、吸収係数の逆数に相当するような量であり、吸収係数 $\mu$ が加速された電子の質量 $m$ と波長 $\lambda$ の積の二乗に比例するところから、種々の加速電圧に対する $1/(m\lambda)^2$ の値を計算し( $m$ および $\lambda$ のそれぞれに相対論的

\* 電子線の吸収に関する厳密な話は、上田教授の解説<sup>(1)</sup>を参照されたい。

補正を施したうえで、それと加速電圧 100 kV における  $1/(m\lambda)^2$  の値との比を求めて、それを電圧に対し図示したものである。この関係はその後実験によりチェックされ、500 kV 程度まではほぼ満足されている模様である。それより高い電圧では、かなりの食違いを示す結果も出ているようであるが、実験的にまだおちついた値が示せる段階でもなさそうであるから、現状では上記の関係を一応の足掛かりとすることとして、500 kV の電顕では、従来の 100 kV の場合よりも、約 2.4 倍厚い試料が、1,000 kV では約 3 倍の厚さの試料が透過するというようにしておこう。ところで、この関係は、透過あるいは反射電子線の強度が(言い換えれば像の明るさが)同一になる試料厚の電圧依存性を近似的に与えているに過ぎない。実際、われわれが何かの像を観察するという場合には、明るさがえられればそれでよいというものではない。コントラストと分解能が十分ともなっていないければならないことは自明のことであって、それらが十分であれば、むしろ明るさの若干の不足はたとえば露出時間を長くするとか、輝度増装置で明るさをおぎなってもよいわけである。したがって、実際の観察に対しては、先記の関係は、この点だけからいっても不満足なものとなる。後述するように、各種の収差は、電圧の増加とともに減少するので、これを加味すると高圧にゆくほど、事情はさらに好転する可能性がある。上田氏は、すでにこの点に注目して、菊池線の出現状態と拡大像の質の間の関係を  $\text{MoS}_2$  について系統的に調べ、観察可能な試料厚の上限の加速電圧依存性を像の質をも加味したうえで実験的に求めた<sup>(2)</sup>。金属についてのこの線に従った実験がいまだ十分行なわれていないのは残念であるが、結果の傾向からみて Hirsch 氏の関係が与える傾向より、少なくとも悪くはなっていないようである。この種実験で得られる結果は、像の観察が可能な厚さそのものに対する知識を与えるので、応用研究者にとって貴重な基礎的資料を提供するという意味で、きわめて重要である。

## 2.2 分解能の向上

電圧増加により、電子線の波長が短くなり、またそれに伴って回折角が小さくなって(それに依存する球面収差や回折収差などは減少することとなって)、理論的には分解能が向上するはずである。ところで、高圧電顕の実際の分解能<sup>xx</sup>を議論しようとするときには、それら光学的好都合因子以外の因子、たとえば、光学系の仕上り精度やレンズ自体の性能、加速電圧やレンズ励磁電流の安定度などのような装置的なものが、すでに高水準にある 100 kV 電顕に比べてどうであるかということ、いま一つは試料内での電子線の吸収による色収差がどの程度少なくなるかということが問題となる。しかし前者は、国産の 500 kV 超高電圧電顕では、100 kV に比べてあまり遜色はなさそうであるから、むしろ厚い金属試料をみようとするわれわれには、後者が実際上最も重要な因子となるようである。さて、試料内での電子線の吸収によるエネルギーロス  $\Delta E$  (幅をもつ)に帰因する色収差  $\delta_c$  の割合は、 $\Delta E/E$  に比例するから、同一厚さの試料を対象とする限り加速電子のエネルギー  $E (=eV)$  を増加するほど減少し、結果的に分解能の向上をもたらすことになる(写真 1 比較的厚い試料中の転位の観察, 参照)。(スケールは  $1\mu$ , 以後の写真も同様)

## 2.3 暗視野像の解像度向上

加速電圧の増加とともに、回折角  $\alpha$  は減少するので、 $\alpha^3$  に比例する球面収差は急速に小さくなるとともに、先項のように色収差も小さくなる。したがって超高電圧電顕では従来より質の良い暗視野像がえられることとなる(写真 2 参照)。従来の 100 kV 電顕の場合、対物絞りを光軸からずらして回折波のほうに合わせる手法では一般に暗視野像に流れが出やすく、入射電子線を傾けて、光軸上の絞り

にさそい込むことにより質の良い像をえるようにしていたが、すでに 500 kV の電顕においてこの難点は大幅に緩和され、絞りをずらす手法でも低次の反射に対しては、明視野像と遜色のない十分使用に耐える暗視野像がとれるようになった<sup>(3)</sup>。暗視野像の有用性がますます高まりつつある現在、質のよい暗視野像がとれ、しかも容易にとることもできるということになると、利用の度はますますふえてゆくことであろう。

## 2.4 回折像をうるための最小制限視野半径の減少

電子顕微鏡では、中間レンズを調整することにより、限られた試料の視野(対物レンズの像面に視野絞りを入れて)と対応する電子回折像をうることができる。この場合、対応の信頼度は、対物レンズの球面収差によって決まる。すなわち、球面収差係数を  $C_s$ 、回折角を  $\alpha$  とすると、球面収差によるボケ  $\delta_s$  は、 $\delta_s = C_s \cdot \alpha^3$  で表わされ、この  $\delta_s$  が最小制限視野半径となるものである。したがって、加速電圧が高くなり、波長が減少して回折角が小さくなると、上記  $\delta_s$  も急激に小さくなる。たとえば、1,000 kV における最小制限視野径は、100 kV のそれに比べて約 1/40 になる<sup>(4)</sup>。この最小制限視野径の小さいことは、視野を小さく限っても、見えている領域以外からのまわり込み反射が少ないことを意味し、その意味で対応の信頼度が向上したといえる。つまり、電圧を高くすると、視野絞りを従来より小さくしても、信頼度の高い回折像がとれるようになるという利点がある。これまで 100 kV の電顕においては、回折像をうるために有効な最小制限視野径は 1 ミクロン程度であったが、500 kV 電顕では実験的に 0.1 ミクロン以下の領域から十分な強度と信頼度もつ回折像がえられており<sup>(5)</sup>、今まで困難であった微小析出物や異相の解析が行なえるようになったといえる。

## 2.5 電子線による損傷および試料汚染の減少

小林氏らがポリエチレンのような高分子試料の観察において得た実験結果<sup>(6)</sup>では、電子線照射による試料の損傷は、電圧が高くなるほどその割合が減少している。金属については今のところ詳細な実験が行なわれていないので、定性的なことしか言えないが、厚さが同じ試料で同程度の明るさの像を観察するとき、熱的变化と思われるものは少ないようである。しかし一方では、加速電圧の上昇に伴い、多くの試料で、それを構成する原子の変位に要する最小エネルギーすなわち閾エネルギー以上のエネルギーを入射電子がもつようになるので放射線損傷が生じる結晶種がふえてくる<sup>xxx</sup>。しかし筆者が 500 kV 電顕で、通常の観察状態下の照射電流密度を測定した結果では、その値は  $0.5 \text{ A/cm}^2$  以下であることが確かめられたので、損傷の発生があるにしてもそのひん度は観察中は無視しうる程度であることがわかり、この面の危惧はないといってよさそうである。これとは別に、電圧上昇の必要上鏡体内を高真空とし、かつコールドトラップを常用しているためか、試料の汚染が従来よりは著しく少ないようで、同一物の長時間観察が行なわれようになったことは金属研究者にはありがたいことである。

## 3. 試料膜厚増大の効用<sup>xxxx</sup>

### 3.1 寸法効果を受けやすい対象物の観察

バルクな結晶で処理をすませたものから薄膜試料を作り観察する際、金属研究者がしばしば取り扱う寸法効果を受けやすい二、三の対象物について、500 kV 程度の電顕がどの程度有効であるかを述べよう。

<sup>xxx</sup> したがって、積極的に強い電子線をあてて、損傷の研究を多くのもので行なえるようになる。

<sup>xxxx</sup> 試料作成を容易にし、試料種が多くなることも看過しえないことである。

<sup>xx</sup> われわれの場合ぎりぎりの分解能は実験的にまだ調べられていない。塩化白金カリの  $6.9 \text{ \AA}$  の格子縞をわれわれはみているが、さらにいいところまでいく見込みは十分ある。

### 3.1.1 転位の分布

結晶を薄くしてゆく過程で、実質が取り去られるに伴い、内部ひずみの解放とか自由表面の影響が強くなり現われてくるため、転位は表面より逃げたり、内部で再配列を起こすということが今まで問題となってきた。たとえば、バルクで存在したはずの転位の60%程度が、薄膜にする過程ないし直後表面に逃げたり相互消滅を起こしてしまうとする報告<sup>(7)</sup>があることでもわかるように、電顕法による転位密度の測定は、従来よく行なわれてきたものの、そういった意味でしばしば論議の対象となるものの一つであった<sup>(8)(9)</sup>。ところで、その測定結果の信頼度を確かめるには、バルク結晶中にできるだけ転位分布が一様な状態を現出させたいという、試料厚と転位の数との間の関係を調べ、その間に直線関係が成り立つ範囲を調べるのも一つの方法である。500 kV 電顕により、川崎氏らが Al および Fe について調べた結果<sup>(10)</sup>によると、純 Al では、4,000 Å 以下の厚さの場合はいずれにしても直線関係からはずれ、安心なのは 8,000 Å 以上の場合ということであったし、炭素を 20 ppm 含む鉄では、脱炭して炭素量が 5 ppm となった後でも転位密度は厚さに関係なくバルク中のそれを与えることが示されている。18-8 ステンレス鋼についての筆者らの結果は Al の場合に類似しており、3,000 Å 以下の厚さでは直線性があやしくなるものであった。これらは金属種と転位自体の性質以外にも、純度や加工の仕方、加工の度合にもよることであって一概に言えないが、従来の転位分布や密度に関する実験結果の中には再吟味の必要なものが多分にあること、500 kV 電顕を用いることによって結果の信頼度を高めうることを示すものと解してよい。転位の分布に関するものとして、多くのもので、加工硬化状態において転位は数ミクロン程度のセルを作ることが知られている。試料厚の関係で、従来平面的にしかとらえられなかったものが、500 kV 電顕のおかげで 2~3 ミクロン以上の厚さの Al 中のそれをとらえるようになり、その三次元的構造やセル壁での転位配列が詳細に観察されることとなった<sup>(11)</sup>(写真3参照)。

### 3.1.2 拡張転位と積層欠陥エネルギーの測定

面心立方金属および合金中の転位は、一般に拡張して两部分転位の間に積層欠陥をもってつり合っている。そうした転位が作る網目の会合点は、積層欠陥エネルギーを測定するうえで従来よく用いられてきた。しかし、100 kV 程度の電顕でこれまで観察してきた転位網は、1 ミクロン以下の厚さの薄膜に斜めにはいった状態のものが多く、形のうえで幾何学的補正が必要なばかりでなく、転位間のつり合いに自由表面の影響がかなりきいていると考えられる状態下のものであった。理想的状態つまり厚い試料で、寸法の大きい転位網が表面に並行に存在する場合を取り扱うことが望まれ、それを試みているが、500 kV 電顕によりかなりそれに近い状態下での観察が行なわれるようになってきた(写真4参照)<sup>xxxxx</sup>。まだ十分なところまで実験は進んでいないが、期待のもてる応用例の一つである。

## 3.2 寸法効果を受けやすい諸現象の研究

電子線を透過しうる薄膜を試料とし、これを鏡体内で処理してそこにバルク結晶での現象を再現して観察しようとするとき、とくに寸法効果を受けやすい諸現象が、500 kV 程度の電顕でどの程度バルクのそれを再現しうるかについて簡単にふれてみよう。

### 3.2.1 転位の運動と相互作用

鏡体内で試料を引張ったり、強い電子線の照射による熱応力で転位を動かして観察する実験がある。これは、転位の増殖や相互作用の直接観察によって、特に金属、合金の降伏現象や加工硬化現象の解明への手がかりを得ようとするもので興味深いものであ

<sup>xxxxx</sup> 以後の写真はいずれも未発表

る。最近藤田氏<sup>(12)</sup>は、500 kV 電顕の強い透過力を利用し、従来よりも厚い Al を試料として、鏡体内で引張り変形し、転位の切り合いによるくびれやループの発生と、それをもとにした転位のもつれ合いや転位のセル構造形成の膜厚依存性を調べ、この面の実験に一つの指針を与えた。結果的には、1.5 ミクロンより厚い領域ではセルの形成がみられることを示すとともに転位のもつれ合いの起こる過程について興味深い情報を引き出すことに成功した。ここでは、まだ従来の実験と同様 wedge-shaped section をもった薄膜が試料となっているため、動く転位に作用している応力が不明であって(欲をいえば、応力-ひずみ関係との対応がいくらかでもつけられるとよいが)、結果がいま一つ生かされてこないのは残念である。しかし、従来は、観察されうる試料部分が薄すぎたため、特殊状態での転位源、転位反応、運動抵抗などに関する定性的情報が引き出されていたのに比べれば、今後試料や部品に工夫と改良を施すことにより、この種の実験から、量的な情報をも含んだより有用な結果がえられる可能性も十分あると言ってよいであろう。

### 3.2.2 析出現象と格子欠陥

従来析出現象の研究は、バルク結晶で熱処理をすませた後、それから薄膜試料を作って観察するのが一般であった。こういった原子や空孔の拡散が主役となる現象は、寸法効果を受けやすいものの一つであるから、従来のように極端に薄い膜ではバルクでの現象を追跡することはほとんど望み薄であった。この点についてはこれまで、バルクで熱処理をして析出させたものを薄膜にして見た場合と、焼入れて薄膜にしてから加熱をして析出させた場合とでは、析出物の模様がはなはだしく異なるという報告<sup>(13)</sup>があったし、薄膜での現象の追跡は意味をなさなかったといつてよい。筆者は最近 Al-0.6at% Mg-0.3at% Si 合金の板を焼入れて後、薄膜を作り、これを直ちに 500 kV 電顕の鏡体内で徐々に加熱することにより、析出過程を追跡した。その結果、バルク結晶で処理したもので言われてきた析出過程の各段階の生成物を認めるとともに、これまで見すごされていた溶質原子と転位の相互作用について興味ある観察に成功した。すなわち、過程のごく初期において、溶質原子が転位線のまわりに集り、転位線の形態がしだいに変化するとともに、そこに強い特異なコントラストが現われてくることや(写真5参照)転位線上から優先的に中間相が生成されていくことなどで、これまで、この合金系では、Al-Cu 合金と異なって転位が析出過程に関与していないとされていたことに修正が加えられねばならなくなった(写真6参照)。また析出相を作るものではないが、Al-5at% Mg 合金において、焼入れ直後の観察ではほぼ直線状に見える転位が、加熱とともに climb を起こし helical dislocations を形成してゆく過程が 500 kV 電顕での厚い膜部分で追跡されること(写真7参照)、ミクロン程度より薄い部分では転位が逃げてしまってそれが十分追跡し得ないことを認めている(写真8参照)。これらは、析出現象の鏡体内での再現、あるいは、点欠陥の拡散による二次欠陥の形成や転位の体積非保存運動に関連する現象の膜試料での直接観察が、超高電圧電子顕微鏡の出現により望み得られるようになったことを示し、今後この面でも研究に大いに活用され成果をあげるものと期待される。

### 3.2.3 再結晶

再結晶現象に及ぼす膜厚効果を古林氏は最近調べた<sup>(14)</sup>。これでは、80% 冷間圧延した純度 99.99% の Al と、72% 冷間圧延した Fe-3% Si の {111} <112> 単結晶が試料として用いられ、wedge-shaped section をもったそれらの薄膜が鏡体内で加熱され調べられた。その結果によると、膜厚効果はだいたい両者とも同程度で、0.4~1 ミクロン程度の厚さのところでは、バルクに対応する

ような回復、再結晶はなんとか起こるが、再結晶粒の成長はほとんど見られず、厚さが約1ミクロン以上になると、再結晶粒の成長はもちろんのこと、結晶粒の粗大化など通常バルクで見られている現象はすべて電顕内で再現されるようである。筆者の知らされている限りでは、実験はいまだ予備的段階のようであるが、このような厚い膜による再結晶機構の研究が、どのように発展するかは今後の楽しみである。

### 3.2.4 同素変態

かつて E. Votava 氏は、Co の薄膜試料を加熱し、それを冷却しながら 100 kV の電子顕微鏡で観察したことがある<sup>(15)</sup>。その際高温相 (f. c. c.) の低温への (低温相 c. p. h.) 著しい凍結を認め、それを Seeger 氏の提案による変態の伝播機構をかりて、次のように理解した。すなわち、その機構というのは、双晶成長の機構と類似して、適当なラセン成分をもった転位 (pole dislocation) のまわりで、一組の部分転位が回転することによって変態が進むというもので、変態がゆきわたるためには、そういった転位が十分に存在する必要があることとなる。しかし従来のものでは、あまりにも試料が薄いため、一つにはそういった機構を可能にする pole dislocation の長さないし存在が限られてきて、変態が十分完了しえないのであろうと考えられた。その解釈の当否はともかくとして、高温相が凍結されやすいことは実験事実であるから、従来は、バルクな結晶での変態を鏡体内でそのまま再現することは期待しがたいことと考えられていた。いまだバルクな結晶での変態をそのまま鏡体内で再現して追跡したという実験には乏しいが、最近 Cu-Al 合金のマルテンサイト変態での実験が、500 kV 電顕を用いて行なわれ、二、三この面で興味のある結果が出ている<sup>(16)</sup>。すなわち冷却時に起こる変態と、加熱時の逆変態について調べた結果では、両変態とも試料の厚さが薄くなるほど起こりにくくなり、変態量も少なくなるとともに、変態点もバルクの場合の 380°C にくらべ、冷却時の変態では 200°C くらいまで、また逆変態では 470°C 程度まで変化することがわかった。なおそれ以上に注目すべきは、100 kV で観察できる程度の薄いところに、バルクではほとんど現われない結晶系の相がかなりのひん度で現われてくることで、これらは、100 kV 程度の電顕で追跡するとき、変態の様相がバルクのものとかかなり相異なることを意味し、超高電圧電顕の出現がかなり事情を好転して、この面の研究に成果をもたらすであろうことを予測させる。

## 4. これからの利用と二、三の提言

これまで1年半余、500 kV 電顕を運転し、利用してきた者のひとりとして、こうあってほしいと感じた点や、筆者の興味をもつこれからの研究課題に関連して開発ないし改良を希望している装置上の問題点をあげてみようと思う。もっともそのうちには、利用者側が主体となって解決してゆかねばならないものもあることは承知してのことである。

### 4.1 観察記録法に関して

まず蛍光板用の材料に関してであるが、当初 X 線発生量が比較的少ないとして用い始めた BeZnSiO 系蛍光剤は、X 線放射に関しては従来 100 kV 電顕で筆者らが常用してきた T4YI 蛍光剤<sup>\*\*\*\*\*</sup>にくらべていくらか弱い、明るさがかなり犠牲になるようであった。通常の写真用露出計を観察窓に密着して測ったラフな測定結果では、後者を用いるほうが明るさは約 2.5 倍くらい大で、像の直視には都合がよい。X 線発生量を押えてかつ明るい視野を与える蛍光剤が得られればと思うが最良のものを見いだすまでに至っていない。なおこれに関しては塗布量に適当な値があるはずで、従来程度の薄さ

\*\*\*\*\* 主成分：カドミウム、亜鉛硫化物、銀

では塗布膜の局所的厚さの不同や下地金属板の平滑度を敏感に反映してむらが出やすいので、少しく厚く塗って使っているが、それでは、焦点合せがあまくなりがちである。また、軸合せに際して蛍光板の中心部がやけやすいので、蛍光板としては、上に軸合せ用、下に像観察用と二段がまえであることが必要である。次に記録に関してであるが、通常の電子顕微鏡用乾板を用いてきて特に不都合はない。ただし第一視野をとり、次に第二視野を選んでいる間に蛍光膜で発生した X 線がわざわざするものと考えられる地のカブリ (一枚の乾板に二視野記録できるようになっているが、両コマのフチの重なる乾板中央の帯状部分がいくぶん感光している。一コマ撮りではあまり顕著ではない) がいくらかあることがわかる。蛍光板の塗布面は黄銅板でもよいが、その下に鉛合金板でも重ねて X 線のわざわざを最小に押えておきたい。これとは別に SS 級のフィルムを試みに用いた例 (高野、小島氏) があり、それでは露出時間は乾板の約十分の一となりよい面もあるが、コントラストや拡大によわい点がある。高速電子線に対しては、対可視光線の場合と当然異なる面も出てくるので、感光度、乳剤膜厚、粒子寸法などを総合的に検討してみる必要がある。もっとも後述するような利用面もあるので、輝度増倍装置とビデオコーダの組合せで解決してゆく手もあるものと考えられる。

### 4.2 試料汚染の抑制に関して

500 kV 電顕では、従来のものに比べて鏡体内の真空度が高くなっていることと、試料室のコールドトラップを常用しているためか試料汚染は少ない。しかし今後、金属関係の実験では、観察される格子欠陥のキャラクターとか、鏡体内処理 (加工、熱処理など) に伴う格子欠陥の変化を追跡するような使い方がふえると考えられるので、同一視野での長時間観察がますます要求されるだろう。したがって試料の汚染を極度に押えるため鏡体内の真空度をさらに高める (超高真空装置の使用) なり、油蒸気による試料汚染を防ぐ (油拡散ポンプを使う限りはコールドトラップの働きをより有効な形にもってゆく) ようにしたいものである。さらに少しでも試料の電子線照射に伴う損傷 (熱および放射線損傷) を押えるため、低電流密度での観察や短時間記録が可能ないように配慮すること (輝度増倍装置の利用に限ったことではない) が必要となる。

### 4.3 各種アクセサリの開発

電顕自体の性能向上はもちろん望ましいことであるが、現状での水準を考えるとむしろ利用者としては研究上必要な各種部品 (特に基本的と思われるもの) の開発のほうを強く望みたい。単能的な部品はこれまでも種類が多くよく利用されているが、さしあたり、次のようなものが整備されてゆくことを期待したい。

#### 4.3.1 傾斜装置と組合せた液体ヘリウム温度試料冷却装置

極低温での粒子線照射 (鏡体内での電子線あるいはイオン照射、場合によっては鏡体外で中性子線やプロトンなどを照射したもの) や変形で導入された点欠陥の二次欠陥形成と消滅過程の直接観察といったような実験は、従来の間接的諸方法による追跡でかたづいていない現状の打開のためやってみようという実験の一つである。液体ヘリウム温度への試料冷却<sup>\*\*\*\*\*</sup>のみであれば、最近各所で試作され類例もいくつかあるが、単能的なものが多く、それでは、一般に観察できる視野範囲が狭いことと、観察中における回折条件の変化を補正してゆくことが十分できない欠点があるようである。低温で薄膜に導入された点欠陥が常温ないし 200°C くらいまでにもたらされる間、二次的欠陥 (void や転位ループ) を形成したり消滅してゆく過程を追うわけであるから、温度の測定と制御ができること、対象物が見え始めてから回折条件の制御がで

\*\*\*\*\* 試料の保持の仕方、電子線照射による温度上昇、温度測定法などについてなお検討と工夫を要する面があるようである。

きることは少なくとも必要である。室温以上の加熱には、寒剤輸送管に、寒剤の代わりに適当な温度に加熱された油を流すことが考えられる。組込みを少しでも楽にしかつ視野面積を広げるため、多少分解能や拡大率を犠牲にしても（もっとも収差は少ないにこしたことはないが）より長焦点の対物レンズを試みることに、試料の電子線照射による温度上昇を少しでも押えるため、輝度倍増装置を用いることなどを考えたい。

#### 4.3.2 傾斜装置と組み合わせた試料引張り装置に関して

このような部品の開発に先立って、均一な膜厚試料の作成技術と、その応力一ひずみ測定法の考案がなければならない。Alではすでに6ミクロンくらいのはくは圧延できるし、マイクローム切片（超高真空焼鈍をすとして）の作成に今一工夫してみることも前者に対しむだではなかろう。後者に対しては、たとえば試料膜面にMgOの微粉（Mgを空中でもやしたときの煙を利用）を若干のせて標点の役割りをさせ、負荷開始とともに伸張の度合を連続撮影してゆけばよい。負荷には試料をはった移動端に油圧を働かせる方式を検討し、時間的に圧力を変えて同時記録をしてゆくことを考えてゆきたい。従来方式の引張り装置と傾斜装置の組合せ自体はすでに例も出てきているわけであるから、新しい負荷機構の試みと、試料作成技術の改良をまず現状では心がけ、なんとか量的測定の伴った実験を行なえるまでにしたい。薄膜での実験というわくにはいることはいなめないが、転位に働く力だけでも大略わかるようになれば（像の記録には、輝度倍増装置にビデオコーダを組み合わせたものを使うなどして、転位の運動を連続的に記録\*\*\*\*\*すると）、一段と興味深い結果がえられるであろう。

#### 4.3.3 長期間連続運転への配慮

運転と操作の容易性についての配慮はかなりよく払われているといってよいであろうが、この種装置の使用効率を高め、ベストコンディションを保持してゆくためには、長期間連続運転への配慮が十分なされていることが望ましい。それには、たとえば、トラップへの寒剤自動補給装置ないしは閉回路冷却装置の組み込み、排気系統の要所への信頼度の高い電磁バルブの採用（夜間の安全運転のため）などがまずなされるとよい。フィラメントの寿命をよりいっそう長くするための配慮も必要であろうし、フィラメント使用時間のインジケータの組込みなどとはつまらないことのようにであるが、実現されると都合のよい面がある。

\*\*\*\*\* 非常に速く運動する転位の直接記録は、これではできないかもしれないが、運動速度の測定のみを対象にすれば他に方策が考えられないでもない。

## 5. 結 言

超高電圧電子顕微鏡の最大の利点として、使用できる試料厚の増大を取り上げ、それが金属の研究にもつ意義について主として述べてみた。急な依頼で時間的余裕が得られず、十分資料の整理や咀嚼もされないまま筆をとったので、ずいぶん乱暴な記述になった面もあろうかと思う。また利用者の立場から、将来の応用研究に関連して問題となるような二、三の点をあげ、かつてな希望を述べた後半の記述については、言葉足りない点や筆者の考え及ばない面も特に多いことと思うが、いくらかでも意のあるところを汲みとっていただければ幸せである。

筆者の利用してきた電顕は、日立製500kV電顕であり、その製作から今日まで、おしめない協力と、言葉ではつくし得ないほどの厚意を与えていただいた、日立製作所、日製産業株式会社関係者の諸賢、ならびに物性研究所、名古屋大学の研究グループのかたがたに紙上をかりて厚くお礼申し上げる。また実験に終始協力された橋本辰男技官に深く感謝する。

## 参 考 文 献

- (1) 上田良二：超高電圧電子顕微鏡研究班パンフレット，Mar. (1962)，金属物理，8 (1962) 183 など
- (2) R. Uyeda and M. Nonoyama：J. Phys. Soc. Japan 投稿中  
R. Uyeda, M. Nonoyama and T. Imura：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 113
- (3) T. Imura：J. Electronmicroscopy 14 (1965) 305
- (4) R. Uyeda, G. Dupouy, F. Perrier and A. Bousquet：J. Electronmicroscopy 12 (1963) 271  
G. Dupouy and F. Perrier：J. Microscopie 3 (1964) 233
- (5) 西垣，片桐ほか：電子顕微鏡学会第21回講演会 (1965) ならびに同学会シンポジウム (1965) にて発表
- (6) 小林恵之助：電子顕微鏡学会第21回講演会 (1965) にて発表  
K. Kobayashi and M. Ohara：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 579
- (7) R. K. Ham：Phil. Mag. 7 (1962) 1177
- (8) U. Valdre and P. B. Hirsch：Phil. Mag. 8 (1963) 237
- (9) S. Mader, A. Seeger and H. Thieringer：J. Appl. Phys. 34 (1963) 3376
- (10) Y. Kawasaki and H. Fujita：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 291  
藤田広志：日本金属学会報 5 (1966) 85
- (11) 井村徹：材料科学 2 (1965) 115  
T. Imura and T. Hashimoto：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 297
- (12) H. Fujita：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 289
- (13) G. Thomas and M. J. Whelan：Phil. Mag. 6 (1961) 1103
- (14) E. Furubayashi, H. Fujita and T. Taoka：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 415
- (15) E. Votava：J. Inst. Met. 6 (1961) 129
- (16) S. Kajiwara and H. Fujita：Electron Microscopy Vol. 1, Maruzen Co., (1966) p. 457



特許第478141号(特公昭40-28985号)

柴田満男

誘導円筒形継電器

この発明は、一つの誘導円筒に二つの入力電氣量を与えて継電動作をする継電器において、いずれか一方もしくは両方の入力電氣量の消滅時に発生する磁束の急変に基づく瞬間的な不正規トルクを防止するように、外部回路定数により該回路に緩衝作用を持たせ、前記磁束の急変を緩慢ならしめるようにしたもので、図1において1は鉄心で極磁極11~14および中心極15を有し、その間に空げき2を形成し、この空げき2に回転可能に誘導円筒3が介装される。極磁極11, 13および12, 14には電流あるいは電流に比例した電圧が与えられるコイル8, 9が巻かれる。

このような構成においては高速度動作は容易となるが、可動部には特に制動効果を付加しないのが通常であるため、瞬間的に発生したパルスのトルクに対しても応動し、最悪の場合誤動作する危険がある。

この発明はこれらの点を改良するもので、電流端子6, 7の電流回路に空げき付変流器20を設け、電流を電圧に変換し、コンデンサ21を設けて振動回路を形成し、入力電流が急激に消滅しても、この振動回路の電流は回路定数にしたがって振動しつつ減衰することになり、不正規の瞬間的なトルクの発生する余地はない。

また振動回路は電源周波数に共振せしめれば、効率良く減衰電流による位相ずれなどの心配のないこと明らかである。

この発明は以上のように入力電氣量のいずれか一方もしくは両方が急激な変化を行なった場合にその変化にもとづく不正規トルクを

防止するため、外部回路において急激な変化をさけるよう緩衝作用をもたせて瞬間的に発生するトルクを防止することができる。

(西宮)

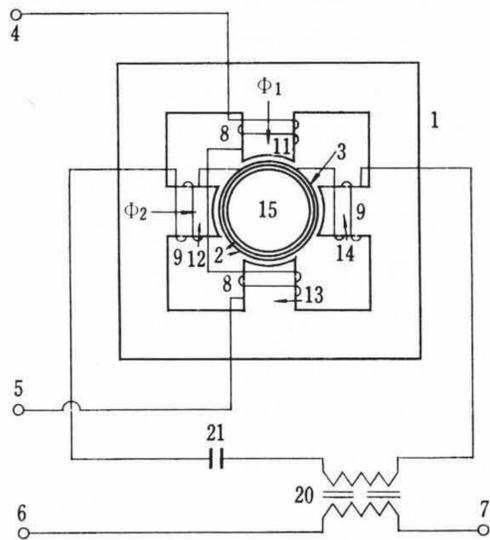


図1

特許第478117号(特公昭41-2098号)

佐々木鉄男

定電流回路の温度補償装置

この発明は定電流回路における負荷の温度変化による影響を補償するもので、図において直列抵抗1を介してツェナーダイオード2により定電圧源を作り、さらに直列抵抗3を通してツェナーダイオード2よりツェナー電圧の低いツェナーダイオード4を接続し、電源電圧の変動によるツェナーダイオード4の両端の電圧変動がないよう定電圧化する。5は定電流が流入する負荷で温度係数のきわめて小さい直列抵抗7と接続される。8は負荷抵抗5と同じ温度係数をもった抵抗でツェナーダイオード4に直列に接続され定電圧回路を形成する。すなわち負荷回路5, 7にはツェナーダイオード4のツェナー電圧と、抵抗9を流れるツェナー電流による降下電圧の和が印加される。今抵抗9の抵抗値を $R_c$ 、温度 $t_1$ におけるツェナーダイオード4のツェナー電流を $i_{z1}$ 、その電圧を $V_z$ 、温度 $t_1$ のときの負荷5の抵抗値を $R_e$ 、負荷5と抵抗7の抵抗値を $R_s$ としたとき次の条件が成立する。

$$\frac{R_c \cdot i_{z1}}{V_z} = \frac{R_e}{R_s} \dots\dots\dots (1)$$

ただし上式は $i_{z1}$ と $i_{z2}$ が等しい時であり、実際は $i_{z1} \neq i_{z2}$ であるから温度 $t_1, t_2$ のときの $i_{z1}$ と $i_{z2}$ の関係を求めると温度 $t_1$ のとき

$$(i_{t1} + i_{z1})R + i_{z1} \cdot R_c = E - V_z \dots\dots\dots (2)$$

(ただし $R$ は抵抗3の抵抗値である)

温度 $t_2$ のとき

$$(i_{t2} + i_{z2})R + i_{z2} \cdot R_c(1 + \delta) = E - V_z \dots\dots\dots (3)$$

(ただし $\delta = \alpha(t_2 - t_1)$ である)

が成立するので、上記2式を变形し、温度 $t_1$ のときの負荷電流 $i_{t1}$ と温度 $t_2$ のときの負荷電流 $i_{t2}$ とを等しいものとして前記(2), (3)式に $i_{t1} = i_{t2}$ の仮定条件を代入すると

$$i_{z2} = i_{z1} \frac{R + R_c}{R + R_c(1 + \delta)} = i_{z1} \frac{1}{1 + \frac{R_c \cdot \delta}{R + R_c}} \dots\dots\dots (4)$$

となり、上記(1)式と(4)式において $R < R_c$ とすれば(4)式は $i_{z2} \approx i_{z1}$ となり温度 $t_1$ の時のツェナーダイオード4に流れる電流 $i_{z1}$ と温度 $t_2$ のときのツェナーダイオード4に流れる電流 $i_{z2}$ とが約等しくなり、換言すればツェナーダイオード4より形成される定電流回路は温度変化に影響を受けず常に一定のツェナー電流が流れることになるゆえ、(4)式において $R > R_c$ とした場合には温度影響の小さい定電流回路を造ることができる。

この発明は以上のようにツェナーダイオード4に負荷5と同じ温度係数をもつ直列抵抗8を接続し、抵抗3の抵抗値 $R$ を温度 $t_1$ における抵抗8の抵抗値 $R_c$ より選定することにより負荷電流を温度変化に無関係な定電流にする効果を有するものである。(西宮)

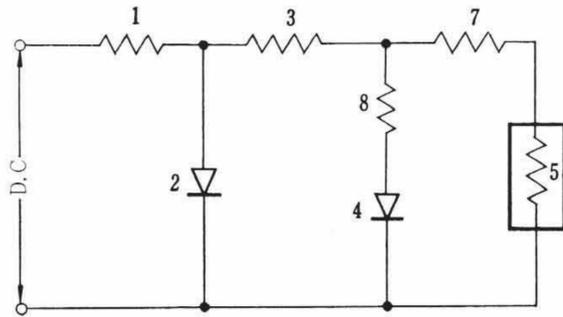
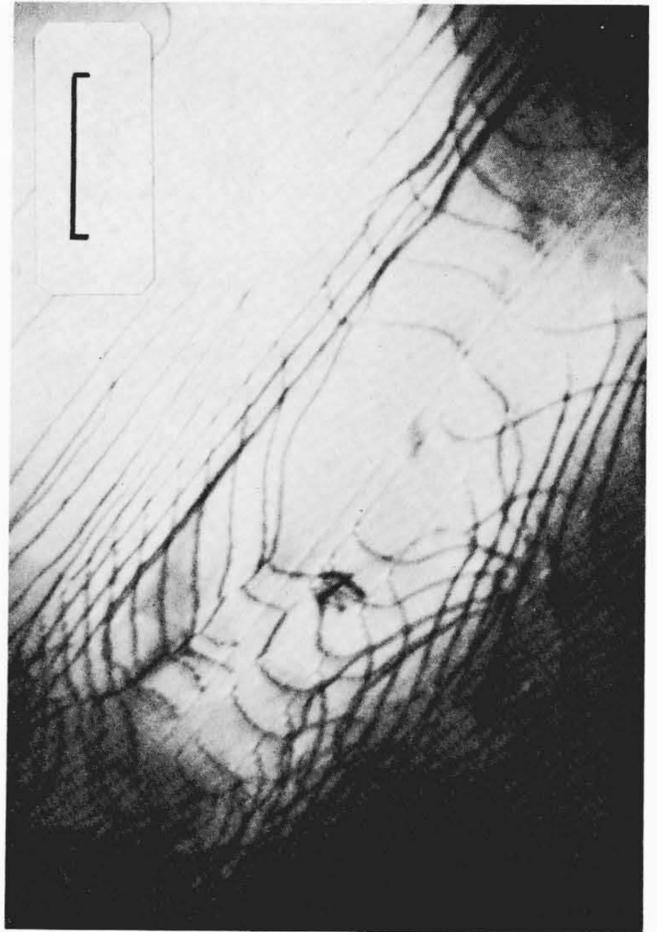


図1



(a)



(b)

写真1

厚さ  $1.05\mu$  の 18-8 ステンレス鋼中の転位を加速電圧 500 kV (a), 200 kV (b) で透過観察したもの。両者の像の質を比較するとき、吸収による色取差のみがきいているとはいえないが、それが大きい原因になっていることは間違いなさそうである。

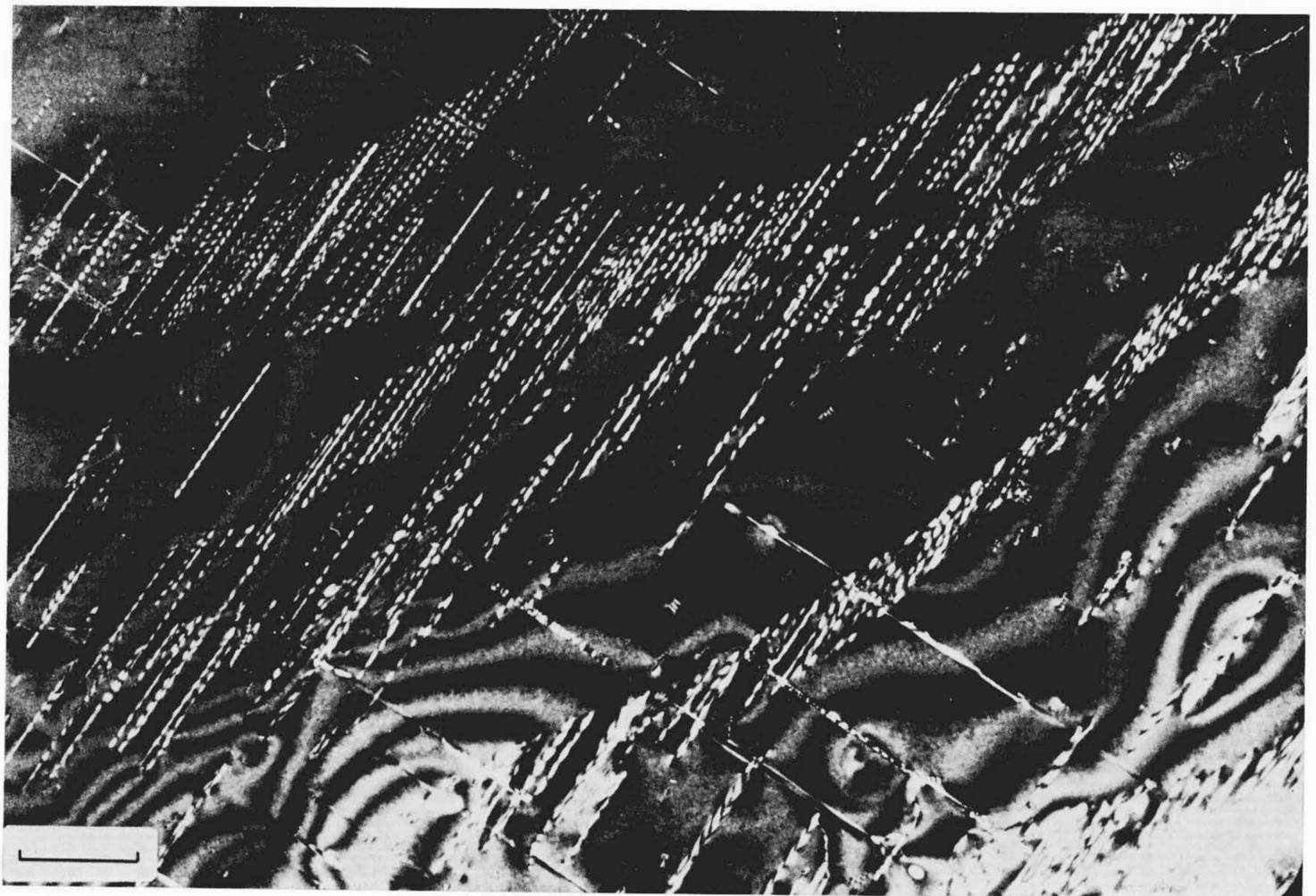


写真2 Al-Mg-Si 合金中の  $\beta'$  相の暗視野像 (500 kV)

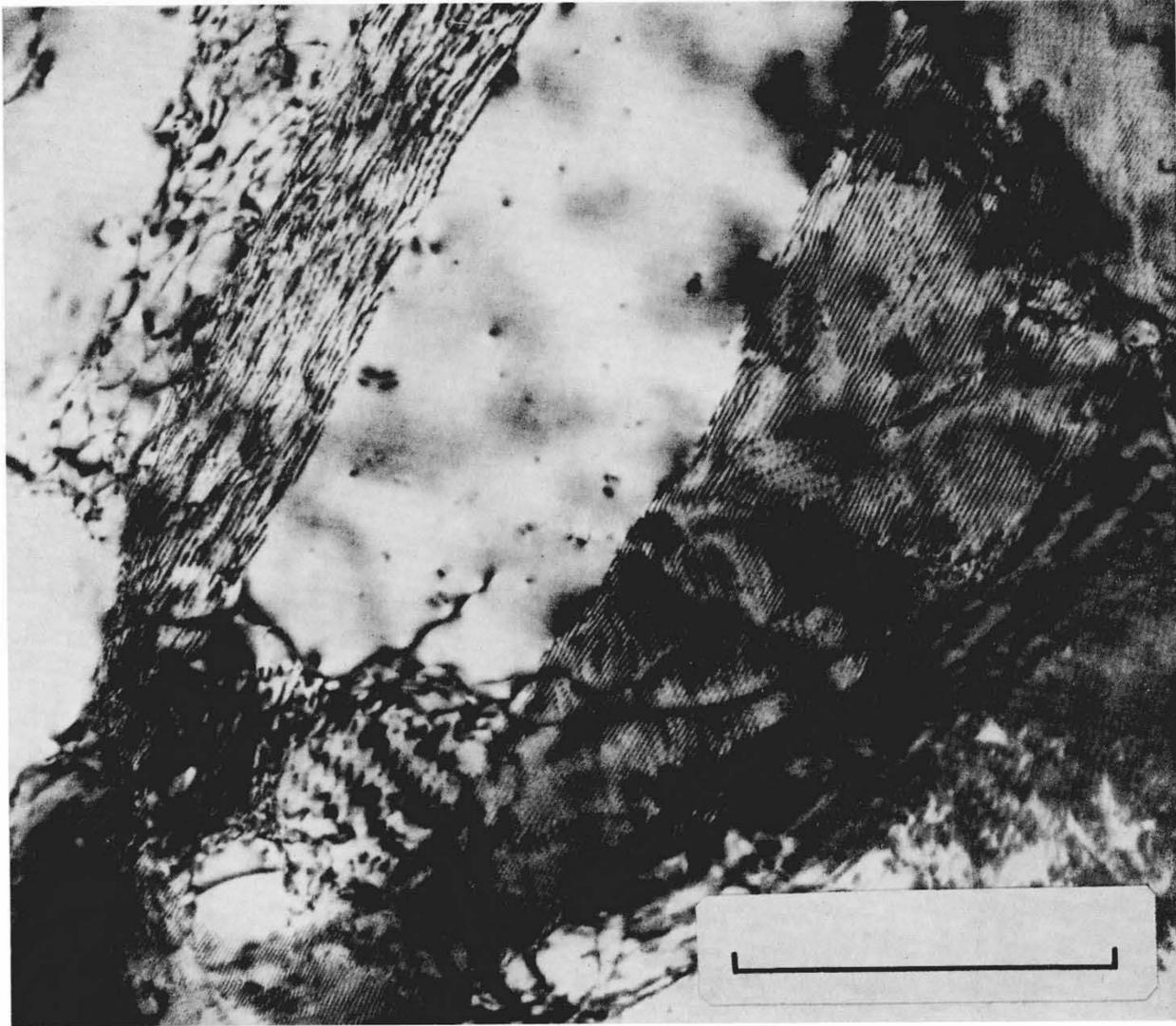


写真3 高速引張り破断した Al 中のセル構造 (500 kV) 文献(11)

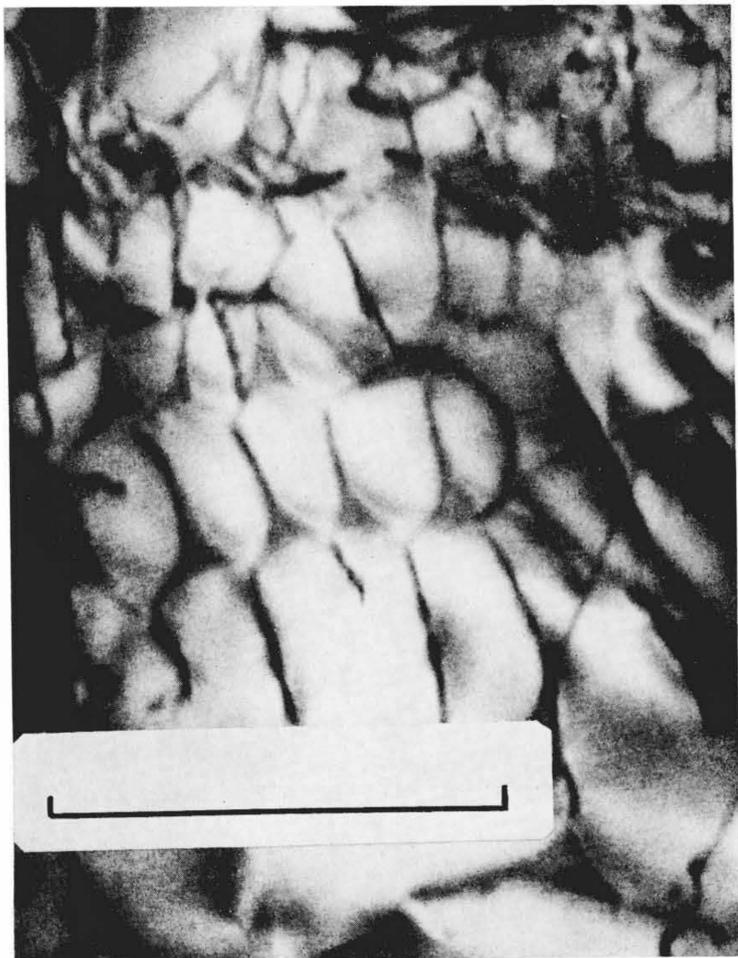


写真4 Cu-4.8 wt% Al 中の転位網 (500 kV)

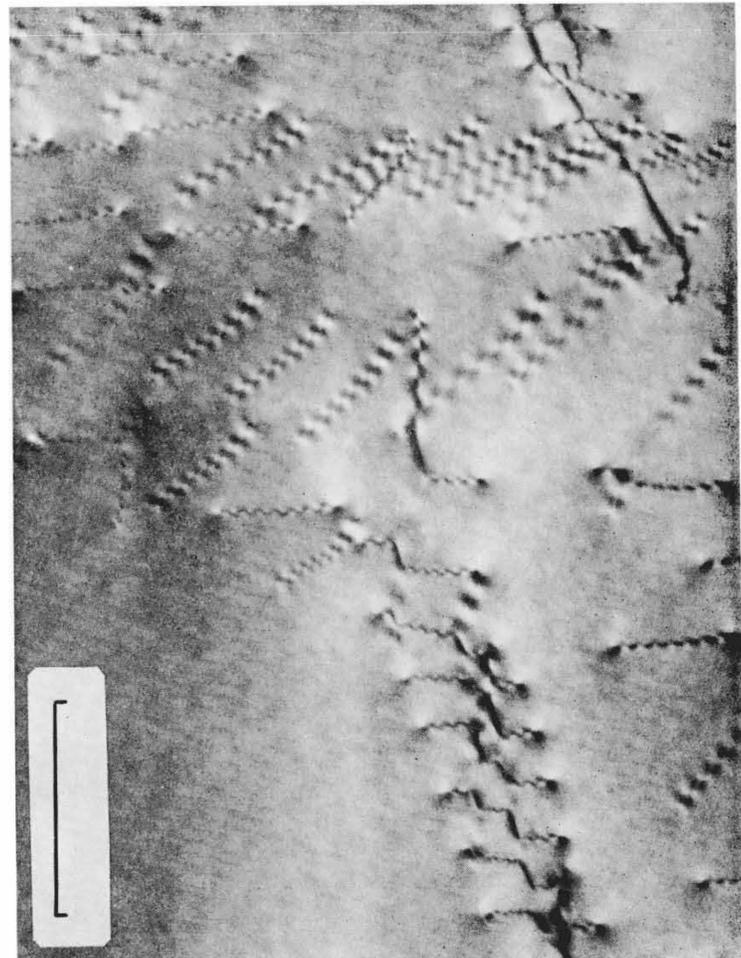


写真5 析出のごく初期に現われてくる転位の形態変化と強い波状のコントラスト (Al-Mg-Si 合金) (500 kV)  
焼入れ後薄膜にした試料を鏡体内で加熱

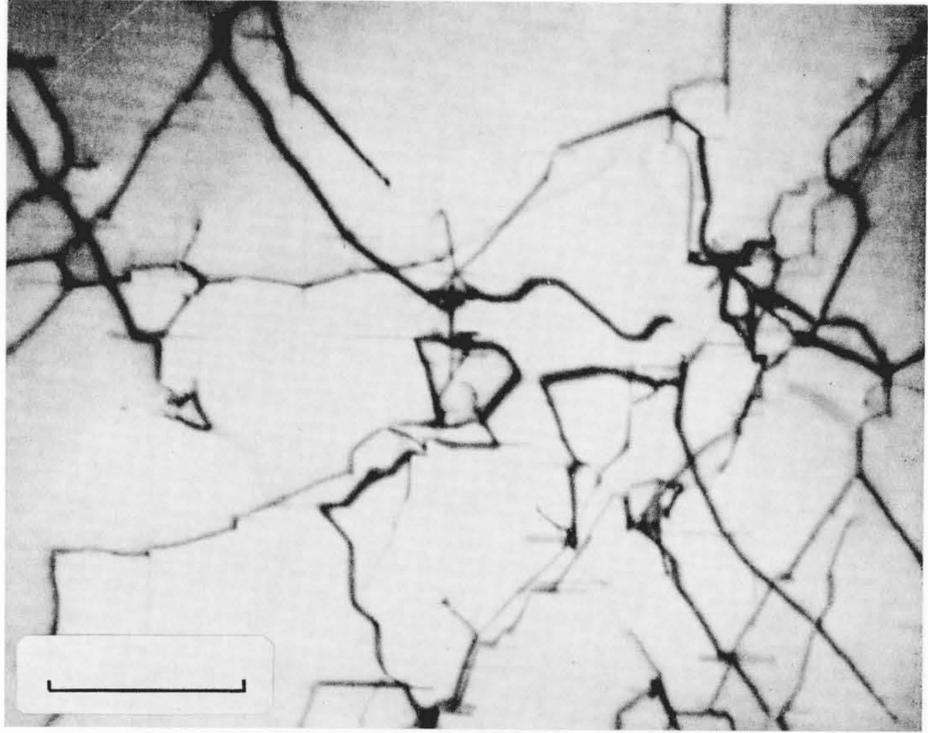
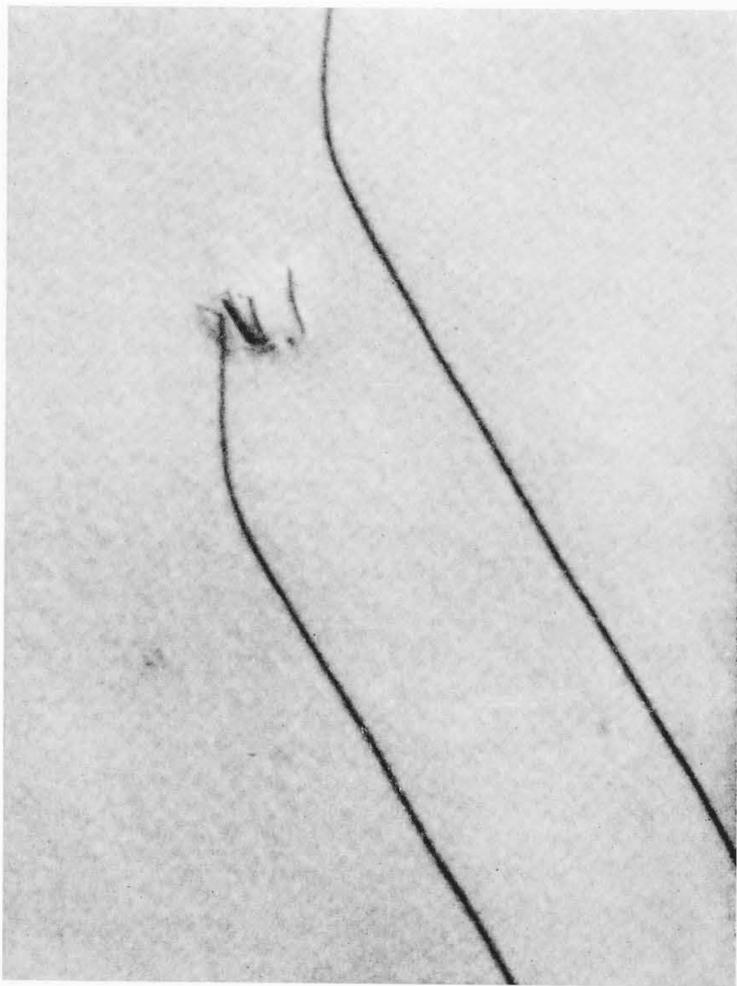
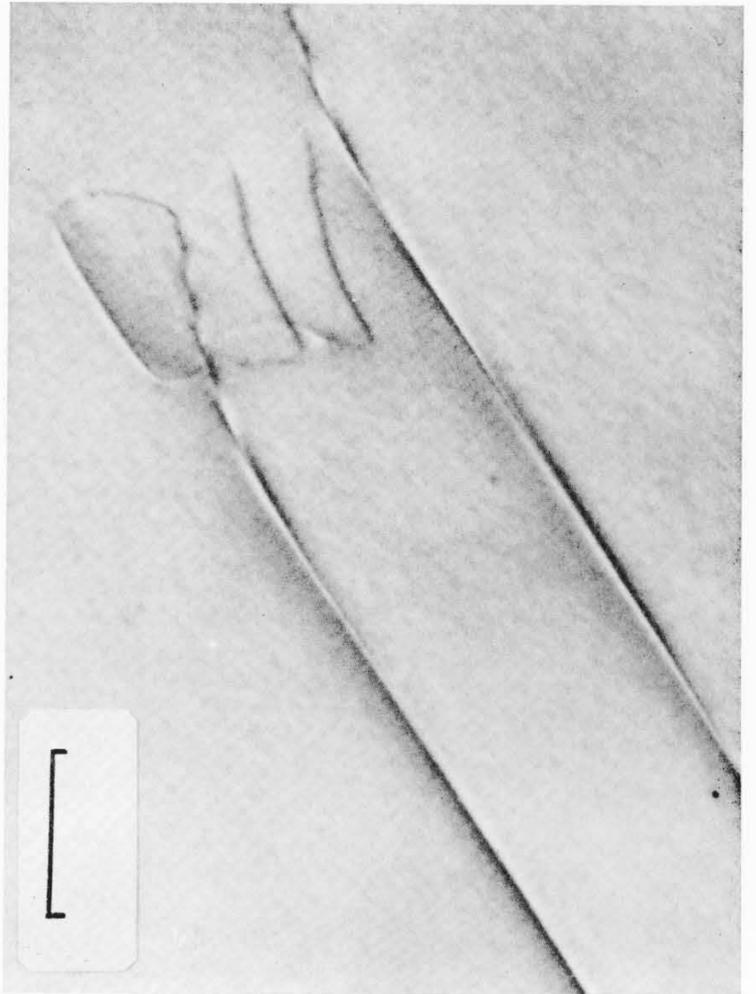


写真6 転位線上からの中間相の優先的形成 (Al-Mg-Si 合金) (500 kV)

焼入れ後薄膜にした試料を鏡体内で加熱



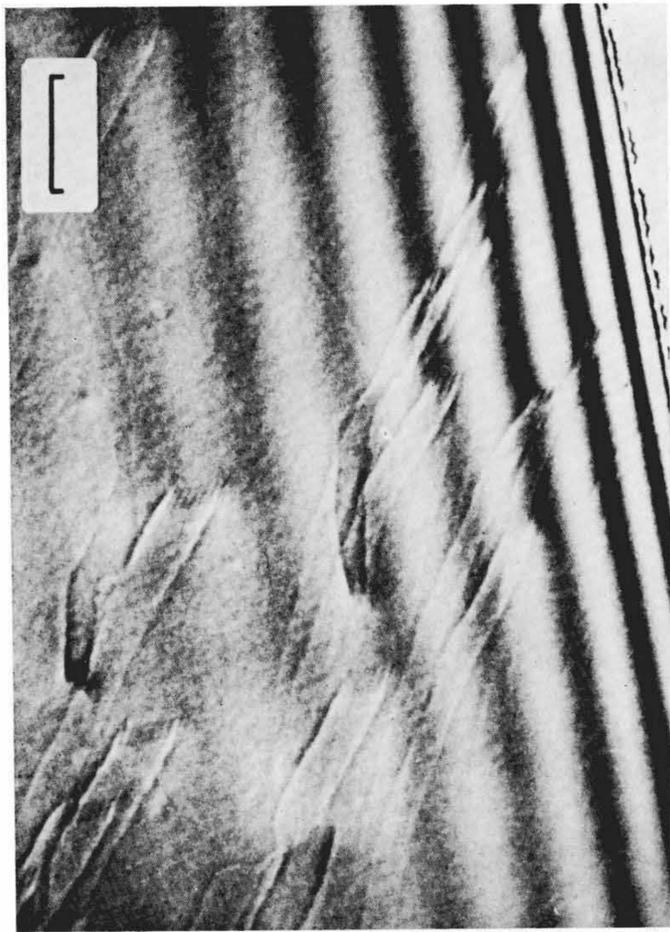
(a)



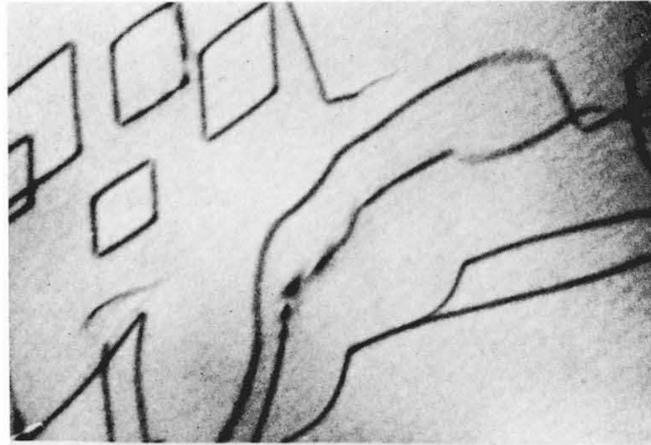
(b)

写真7 Helical dislocation 形成の一例

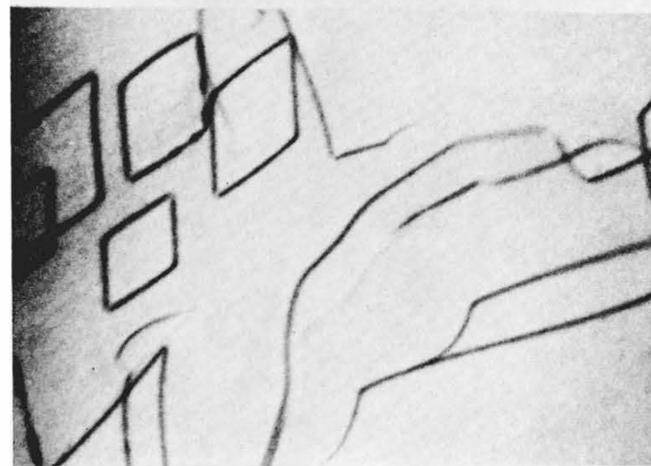
焼入れ直後は Helical dislocation はみられないが、鏡体内で加熱してゆくとラセン成分をもった部分でまきあげが始まり(a), それが成長してゆく(b), (Al-Mg 合金) (500 kV)



(a)



(b)



(c)

写真8 Helical dislocation の加熱による変化

薄い部分における移動, 消滅(a), 厚い部分における転位ループの形成(b)とその成長(c), (Al-Mg 合金) (500 kV)