

300 kV 超 高 圧 電 子 回 折 装 置

300 kV New Electron Diffraction Camera

大 沼 嘉 郎* 三 村 忠 治* 伊 藤 忠 治*
Yoshirō Ōnuma Chūji Mimura Chūji Itō

内 容 梗 概

ベルト起電機方式の 300 kV 高圧電源を用いた電子回折装置を開発し、東京大学物性研究所に納入した。電子顕微鏡における電子収束の技術を応用し、スポットを 10μ ないしそれ以下に絞って分解能指数を 1.5×10^{-5} におさえた。試料室は透過、反射、アジマス回転が可能で、標準試料との比較が容易に行える構造とした。キャビネ $1\frac{1}{2}$ 判の乾板 10 枚を装てんして連続撮影し、必要に応じて 300 rpm のセクタを併用できるようにした。最後に本装置による若干の撮影例を掲げている。

1. 緒 言

X線回折が物質内部の結晶構造を調べる手段として非常に古くより利用されているのに対し、電子回折は物質の表面構造や薄い試料の内部結晶構造を調べるために有効に利用されてきた。この場合電子の加速電圧は 50~100 kV が一般に利用されている。しかし電子回折が X 線回折ほど高い信頼度を持たれないのは、電子が X 線に比べて物質との相互作用がきわめて大きく、得られた回折像の強度に動力学的要素がはいってきて計算が面倒になるのが原因である。加速電圧を上げるとこのような影響が少なくなり、すべての回折像の強度計算が簡単になるなどの利益はあるが、技術的な製作面でいろいろな困難が伴い、世界各国でもほとんど実用化されておらず、またその資料もほとんど見うけない。最近日立製作所中央研究所において、ベルト起電機を使用して 30 秒間における電源の安定度を 300 kV に対して 10^{-4} 程度に保つことに成功したので、これを利用して超高压電子回折装置を作り、一応所期の目的を達成して東京大学物性研究所に納入した。

本稿においてはその設計構造の概要と、本装置による測定と撮影の数例について述べる。

2. 設 計 方 針

現在国内はもちろん外国における電子回折装置は透過、反射、加熱、冷却などの併用によってその利用範囲はきわめて広いが、いずれも加速電圧は 50 kV ないし 100 kV であり、そのため試料の厚さも数十ないし数百オングストロームに制限されている。しかし加速電圧を数十万ボルトに上げると試料の厚さも数千オングストロームで十分となり、応用面もまた非常に拡大される。

加速電圧を上げた場合には

(1) 弾性散乱電子線の散乱角が小さくなり、散乱電子線が増して厚い試料の内部構造がよくわかる。

(2) 電子線照射による試料の温度上昇が少なく、したがって試料の熱的負担が軽減する。

(3) 高次の回折像が現われる。

(4) 弾性散乱が規則的になり、すべての計算が簡単になる。

などの利点がある。しかし一方装置を製作する点からは

(1) 超高压直流電源の製作および高安定度の実現がむずかしい。

(2) 2 段または 3 段に電子を加速する必要上、設計ならびに構造が複雑になる。

(3) 装置が大形になるので電子照射系の調整がむずかしい。

(4) X 線の防御対策が困難である。

(5) 超高压に対して電撃そのほかの心配がないように設置場所の制限を受ける。

などの問題がある。われわれはこれらの点を考慮した上で、電源としてベルト起電機を採用し、

(1) 50~300 kV まで任意の加速電圧が得られること。

(2) 分解能指数を 10^{-5} 程度に向上させうるようなレンズ系を採用すること。

(3) 高次の回折像も十分にはいるように乾板を大きくし、また多数枚撮りカメラ室にすること。

(4) コントラストを増して強度計算を簡易化するため、セクタを使用することができて、しかも不必要のときは取りはずせること。

(5) カメラ長を長短 2 段に変えられること。

(6) 将来加熱および冷却の試料ホルダが使用できるような配慮を施すこと。

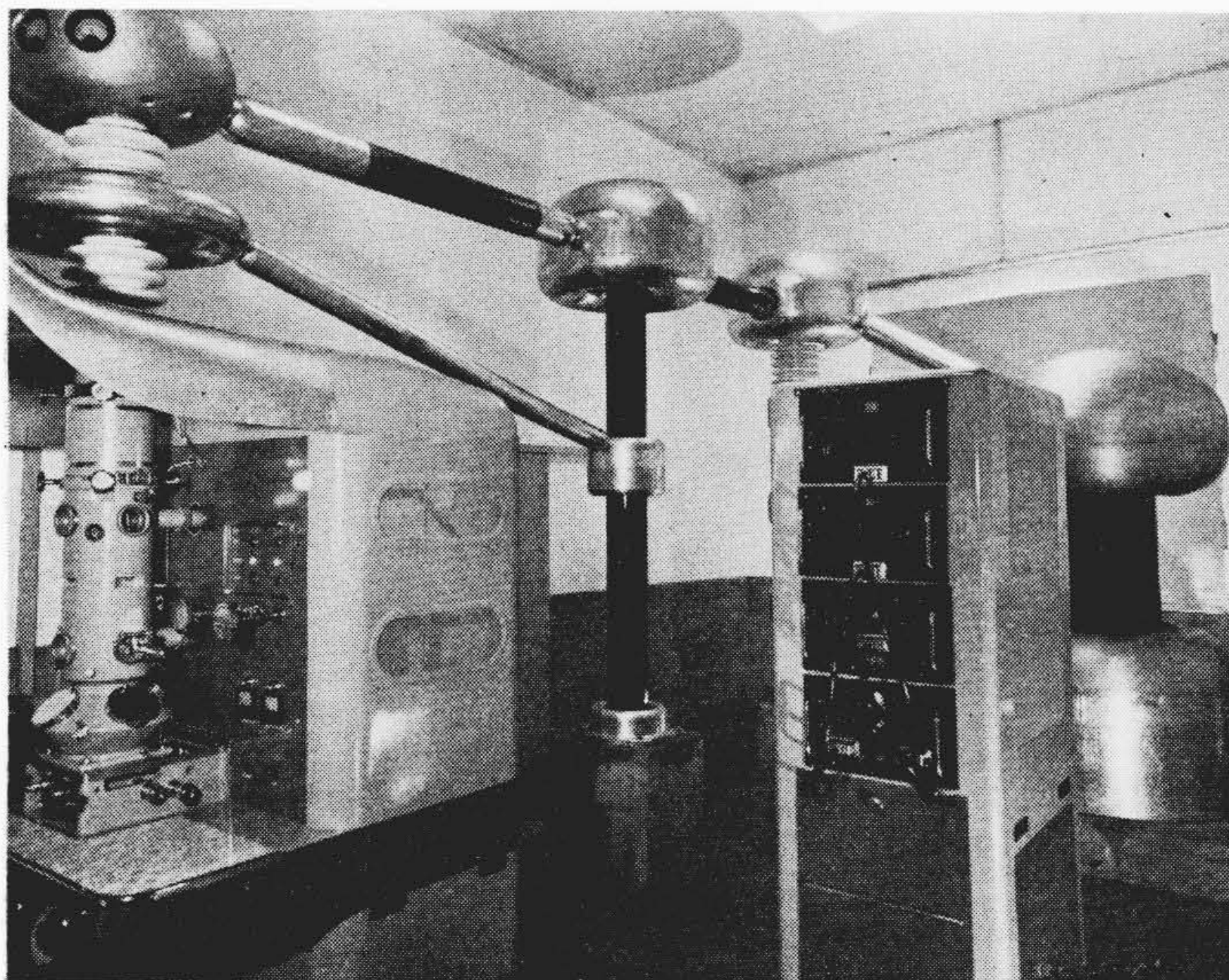
(7) X 線に対して十分に安全なこと。

(8) 高圧に対する危険なく前面にすわった位置で操作ができること。

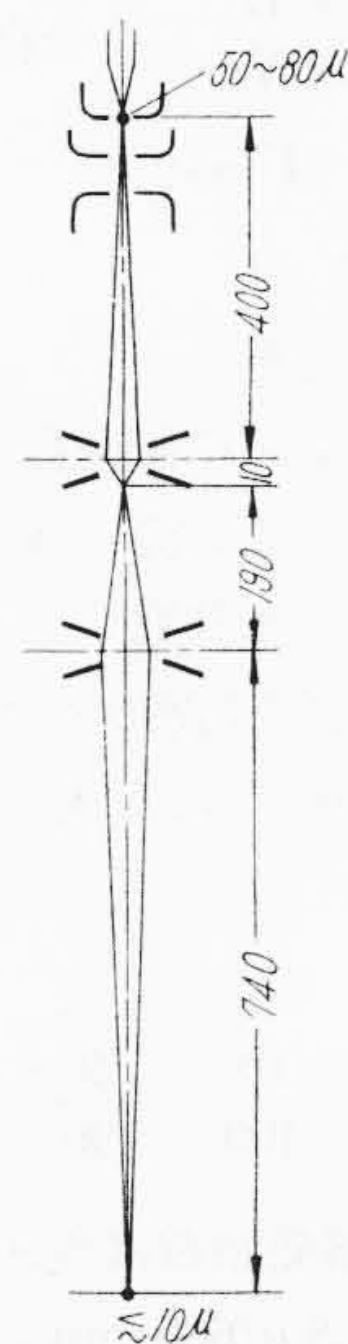
などを主眼として計画した。そのおもな仕様は下記のとおりである。

加 速 電 圧 50~300 kV

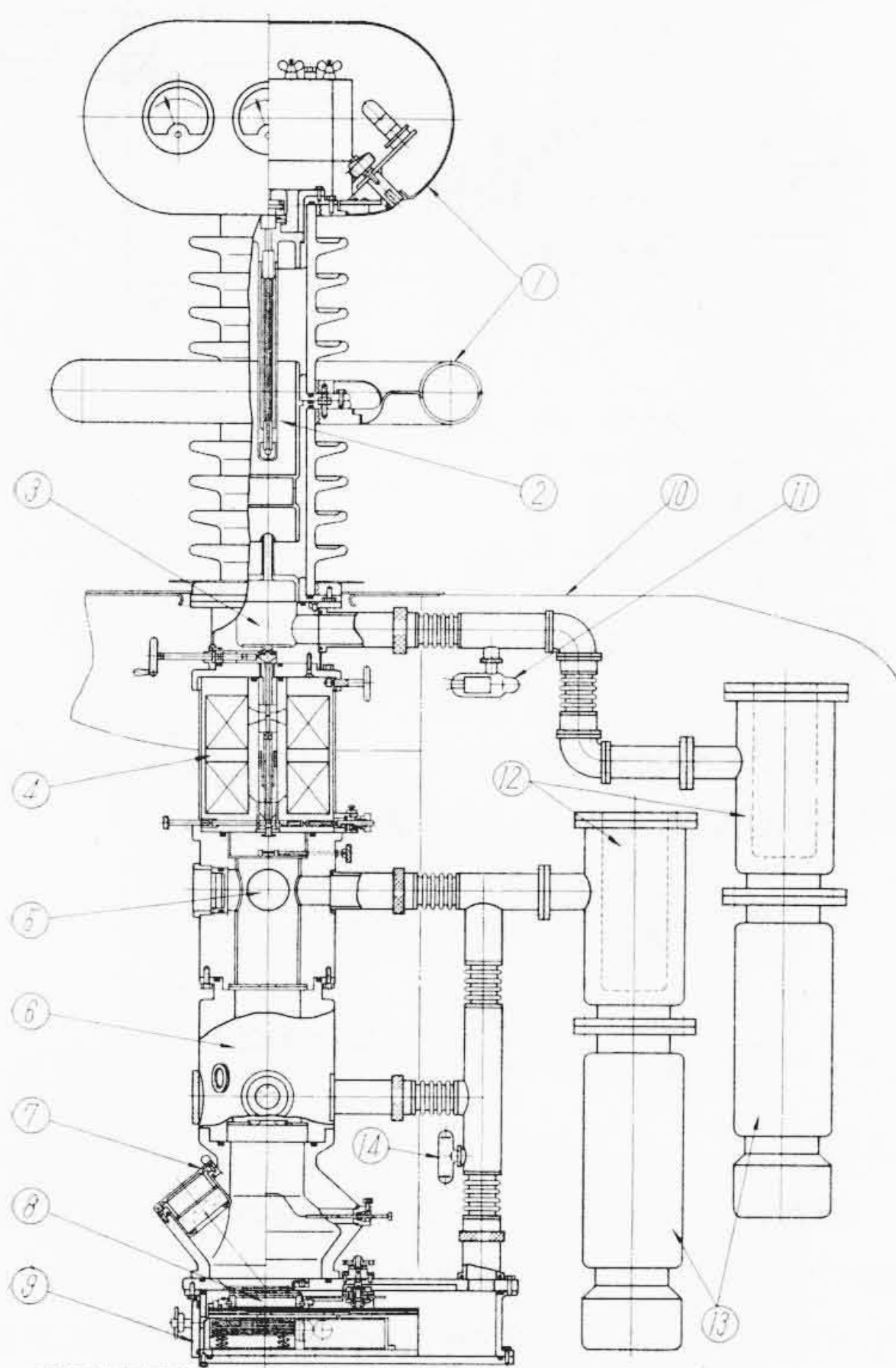
* 日立製作所多賀工場



第1図 超高圧電子回折装置の外観



第3図 電子光学系図



- | | |
|-----------|----------|
| ① コロナシールド | ⑧ セクタ |
| ② 電子銃 | ⑨ カメラ室 |
| ③ エアロック室 | ⑩ ケース |
| ④ 収束レンズ | ⑪ 電離真空計管 |
| ⑤ 第1試料室 | ⑫ 冷却トラップ |
| ⑥ 第2試料室 | ⑬ 油拡散ポンプ |
| ⑦ 観察室 | ⑭ ガイストラ管 |

第2図 鏡体断面図

カメラ長 $L_1=350$ mm, $L_2=680$ mm

乾板 キャビネ1½, 10枚, 連続撮影可能

回折像のひずみ $<0.3\%$

試料室 透過, 反射, アジマス可変可能

セクタ回転数 300 rpm

X線 300 kV のとき各所で <1 mr/h

電源 100V および 200V 50~または 60~

据付場所 相対湿度 50%以下

3. 各部の構造

本装置は鏡体, 排気系, 電気系の3部より成っている。全体の外観写真を第1図に示す。

3.1 鏡体

第2図に鏡体の断面図を示す。鏡体は照射系, 試料系, 観察系に分けられる。

3.1.1 照射系

各電極の間隔および破壊電圧から, 300 kV の電子加速を1段に行うことはかなり無理になるので, 2段に加速する方式を採用し, 高圧を常に 3:4 に分圧して印加するように, また高真空を保持するために電子銃部だけをエアロックする方式を採用した。

第3図に照射系の電子レンズ光学系統を示す。フィラメントの尖端部分にできた $50\sim 80\mu$ の電子源からの熱電子は2段に加速され, 第1コンデンサレンズで縮小され, 第2コンデンサレンズで蛍光板上に投射される。レンズの形状は HU-10 形電子顕微鏡の収束レンズの実験を基として設計した。第1コンデンサレンズの焦点距離 f_{c1} は $I_{c1}=100$ mA とすると

安定度 $<5\times 10^{-3}$

分解能指数 1.5×10^{-5}

$$f_{c1} = 49 \times \frac{VD}{I^2 N^2} \times K = 49 \times \frac{3 \times 10^5 \times 6}{0.1 \times 0.1 \times 3 \times 3 \times 10^8} \times 1.1 = 10.4 \text{ mm}$$

となる⁽¹⁾。ここに

V : 加速電圧 (V)

D : レンズの磁極孔径 (mm)

I : コイル電流 (A)

N : コイル巻数

したがって電子源の像は第1コンデンサレンズで $10/400 = 1/40$ くらいに縮小されることになり、第2コンデンサレンズで蛍光板上に投射されるスポットの径は

$$80 \mu \times \frac{10}{400} \times \frac{740}{190} = 8 \mu$$

となり、分解能指数はカメラ長を $L = 680 \text{ mm}$ として

$$a/L = 8 \mu / 680 \text{ mm} = 1.2 \times 10^{-5}$$

となるはずである。

3.1.2 試料系

第4図に試料ホルダの外観写真を示す。透過および反射両用を使用することができ、標準試料と被検試料と2個を取り付けることが可能である。反射の場合はナイフエッジを取り付け、またアジムの回転もできる。なおモータ駆動によって連続的に試料に対する入射角を変えることも可能である。また加熱および冷却装置も将来取り付けられるように考慮してある。第5図に加熱用試料ホルダ先端部の概略図を示す。

3.1.3 観察系

観察系はのぞき窓とカメラ室からできている。のぞき窓は3方向より両眼で終像を観察でき、また終像蛍光板の下側にはカメラ室がある。キャビネ $1/2$ が10枚連続撮影でき、撮影される乾板の大きさは $80 \times 80 \text{ mm}$ である。

結晶格子の面間隔を d 、電子線の入射角と波長をそれぞれ θ 、 λ とすれば Bragg の条件は次式:

$$2d \sin \theta = \lambda$$

で与えられる。カメラ長を L 、回折環の直径を D とすれば電子線入射角は

$$\tan \theta = \frac{D}{2} / L$$

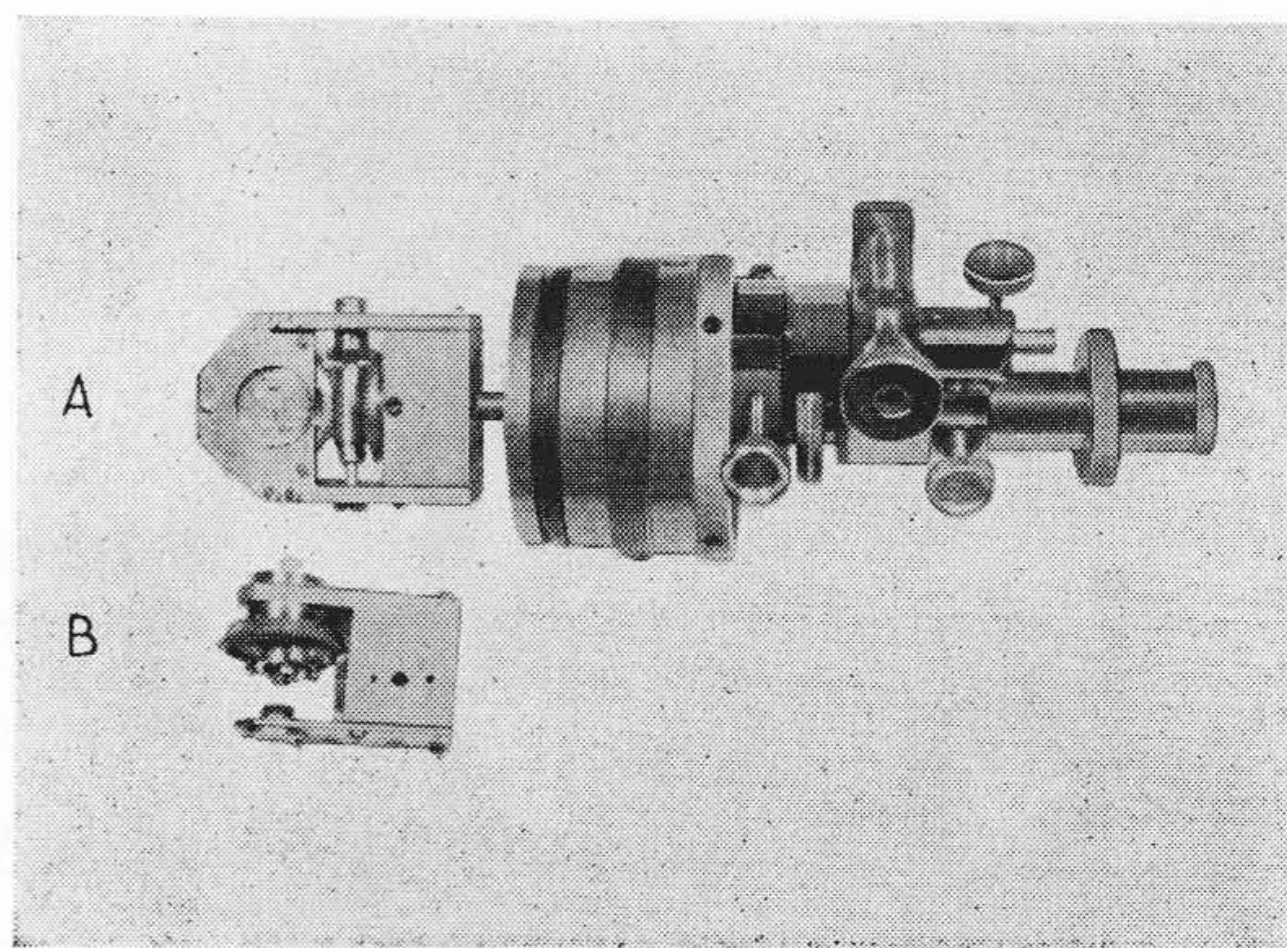
であるから、比較的小さい入射角に対しては第1近似:

$$dD = \lambda L$$

が成立する。また電子線のエネルギー (加速電圧) を V ボルトとすれば de Broglie 波長 $\lambda(\text{\AA})$ は

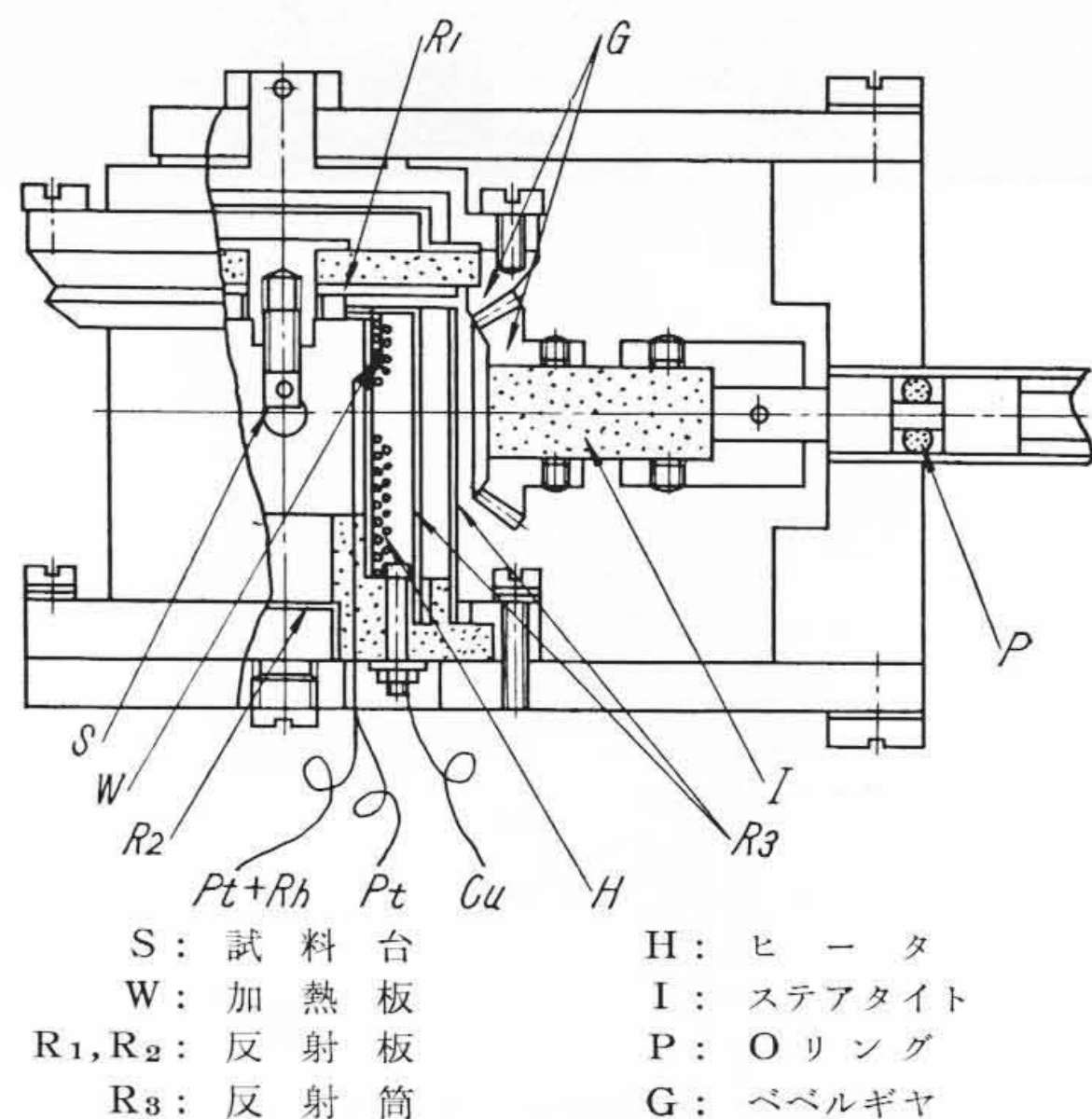
$$\lambda = \frac{12.3}{\sqrt{V}}$$

となるから、今の場合 $V = 300 \text{ kV}$ に対しては $\lambda = 0.024 \text{\AA}$ である。したがってカメラ長 $L_1 = 350 \text{ mm}$ 、 $L_2 = 680 \text{ mm}$



A 透過用 B 反射用

第4図 試料ホルダ



第5図 加熱ホルダ先端部

の場合に 80 mm 角の乾板上に撮影しうる高次回折格子の面間隔をそれぞれ d_1 、 d_2 とすると

$$d_1 = \frac{L_1}{D} \times \lambda = \frac{350}{80} \times 0.024 \div 0.1 \text{\AA}$$

$$d_2 = \frac{L_2}{D} \times \lambda = \frac{680}{80} \times 0.024 \div 0.2 \text{\AA}$$

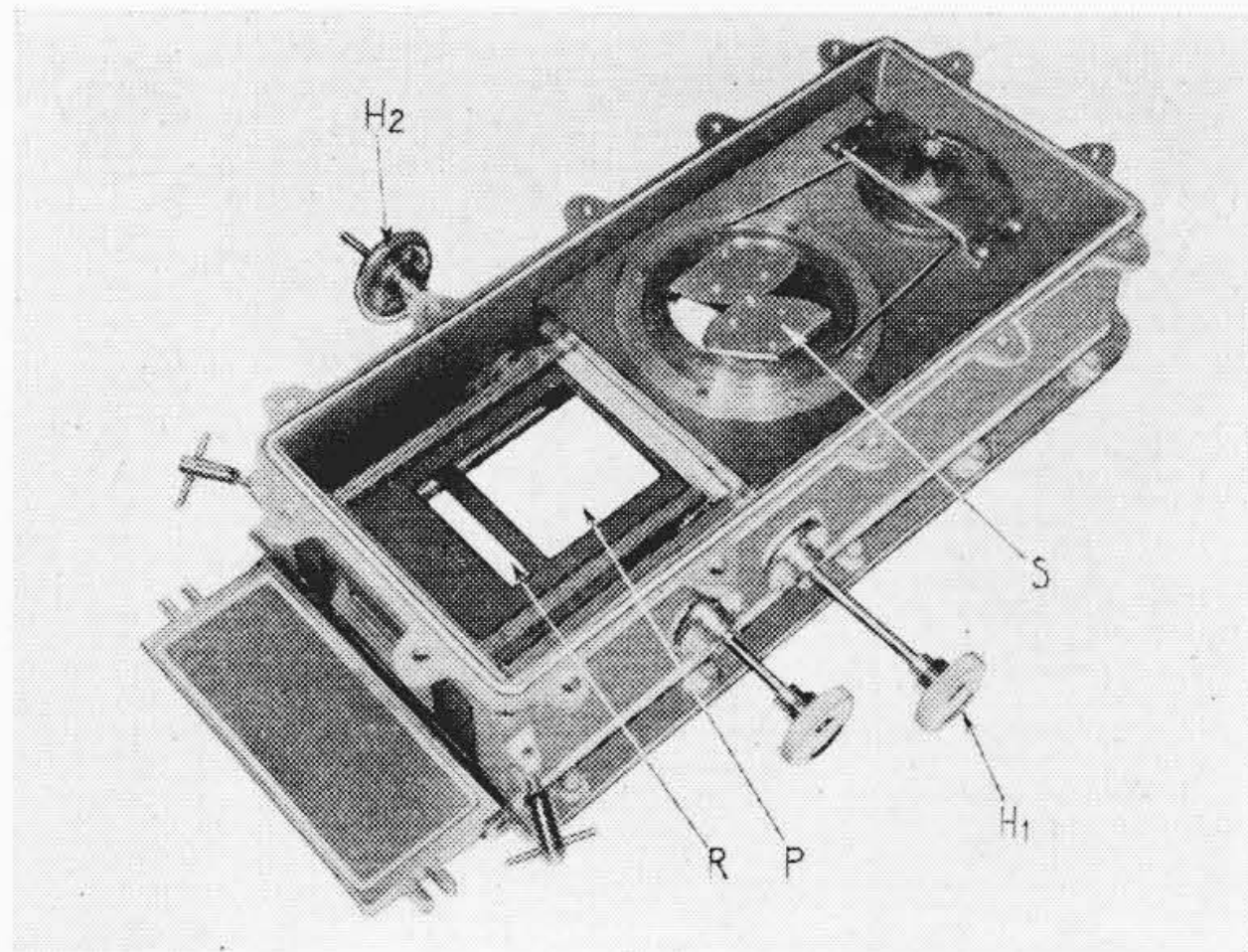
となる。

第6図にカメラ室の外観写真を示す。セクタは回折像の中央部と周辺部で乾板が露出される度合を均一にして回折波の強度計算を行いやすくする目的に使用され、不必要なときは真空外部からの操作で乾板上より取り除くことができる。

3.2 排気系

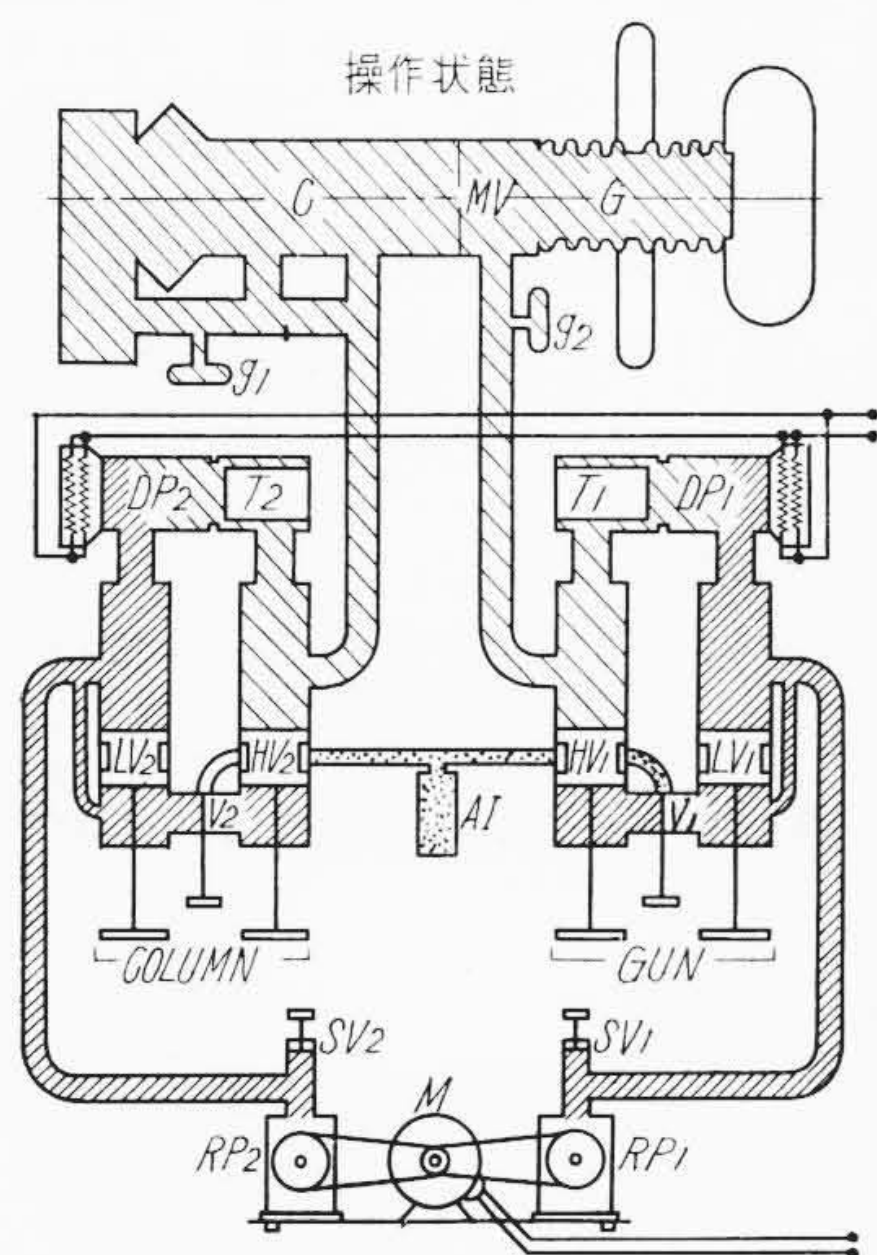
排気系は回転油ポンプ 150 l/min 2台、油拡散ポンプ 500 l/s 2台、切換バルブ、乾燥器などから成り、その系統図を第7図に示す。

真空度測定としては低真空をガイストラ管、高真空を電離真空計で測定している。電子銃と鏡体とは別個の油拡



P: 乾 板
S: セ ク タ
R: リファレンス撮影部分
H₁: 乾板送りハンドル
H₂: セクタ送りハンドル

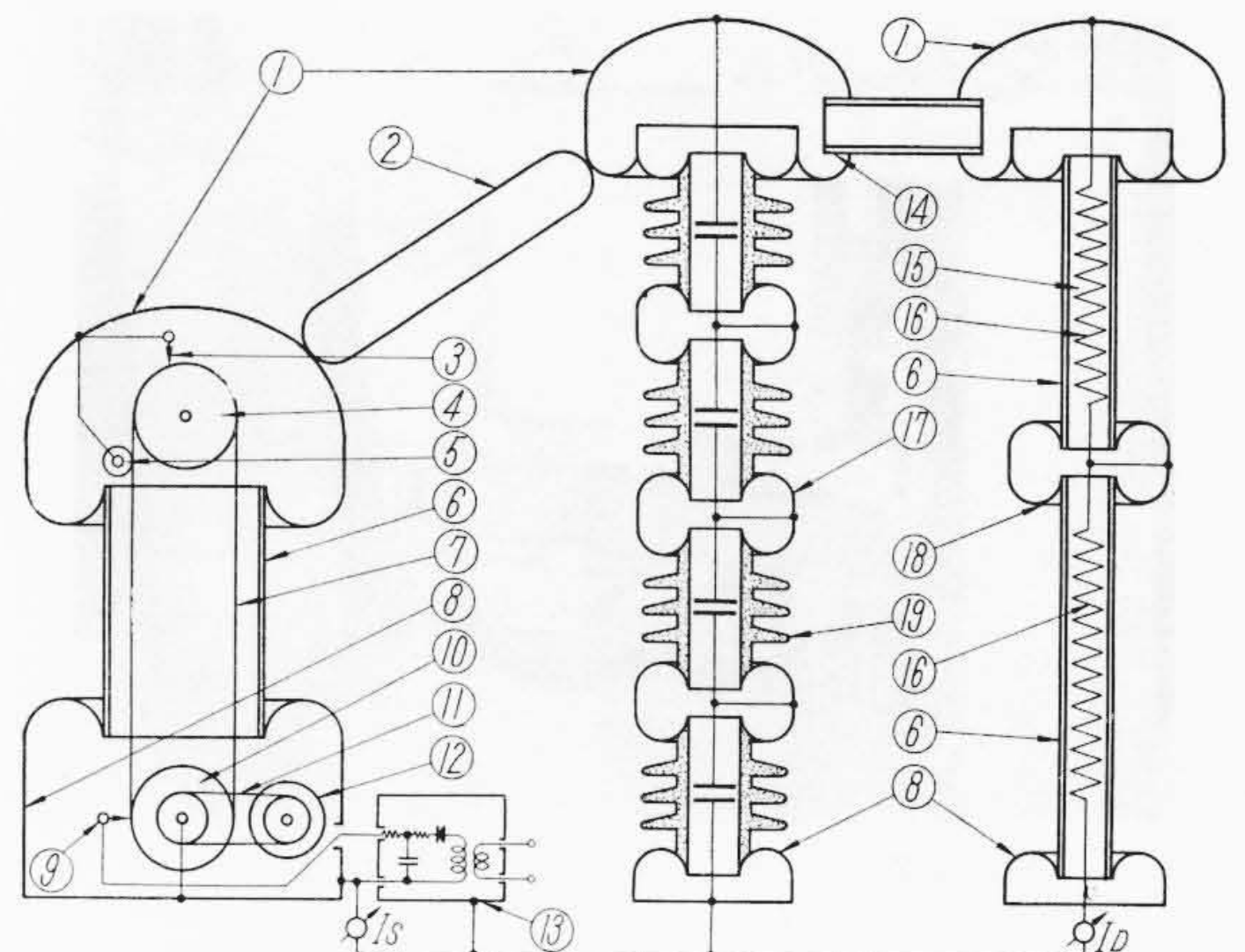
第6図 カメラ室



高真空 低真空 大気圧
G: 電子銃
C: 鏡 体
MV: メンバルブ → 開
g₁: ガイスメーター管
g₂: 真空計用管
T₁, T₂: 冷却トラップ
DP₁, DP₂: 油拡散ポンプ
LV₁, LV₂: ピストンバルブ (低真空) → パイロットランプ点火
HV₁, HV₂: ピストンバルブ (高真空) → OPEN の位置
V₁, V₂: リークバルブ → 閉 (ハンドルを引く)
AI: 乾 燥 器
SV₁, SV₂: 補助バルブ → 開
RP₁, RP₂: 油回転ポンプ
M: モ ー タ

第7図 真 空 排 気 系 統 図

散ポンプで排気し、電子銃部だけのエアロック方式を採用し、フィラメント交換のとき以外は電子銃の真空を破る必要がない。真空を破った場合は常に乾燥された空気が自動的に切換バルブによってはいるように乾燥器が設けてある。



① 高 圧 電 極
② 導 管
③ 蒐 集 子
④ 上 部 ブ ー リ
⑤ テンションブーリ
⑥ 日 立 筒
⑦ ゴ ム ベ ル ト
⑧ 下 部 電 極
⑨ 撒 布 子
⑩ 下 部 ブ ー リ
⑪ ベ ル ト
⑫ モ ー タ
⑬ 撒 布 電 源
⑭ 保 護 抵 抗
⑮ 絶 縁 油
⑯ 抵 抗
⑰ 接 続 電 極
⑱ 中 間 電 極
⑲ 碍 管 形 蓄 電 器

第8図 ベルト起電機説明図

またカメラ室部分もエアロック方式を採用しているので、乾板交換の場合はカメラ室の真空を破る。排気後20分で鏡体は $3 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ 、電子銃部は $1 \times 10^{-5} \text{ mmHg}$ に達する。試料交換、乾板交換には約15分間しかかからない。油拡散ポンプの上部に液体窒素またはドライアイスを使用するトラップを設け、油の逆拡散による電子銃部のよごれや試料のコンタミネーションを防ぐとともに高真空の保持につとめている。

3.3 電 気 系

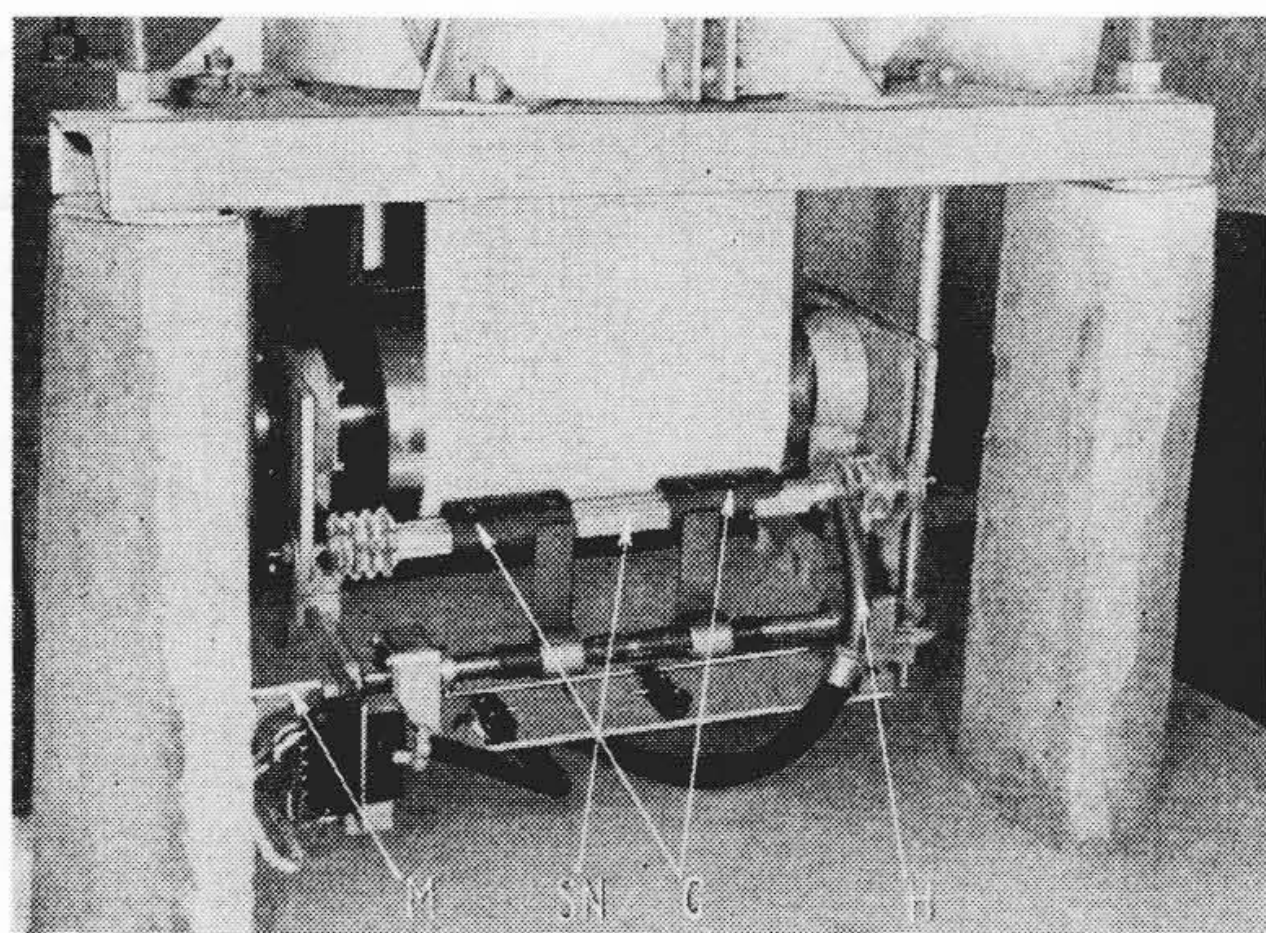
電気系は高圧発生装置、レンズ電源部、総合配線系よりできている。その系統配線図を第11図に示す。

3.3.1 高圧発生装置

高圧発生装置はベルト起電機、撒布子用高圧電源、平滑用コンデンサ、電子を2段加速するための分圧抵抗器、保護抵抗などよりできている。ベルト起電機以外は従来の電子顕微鏡の知識によって容易に設計製作が可能である。

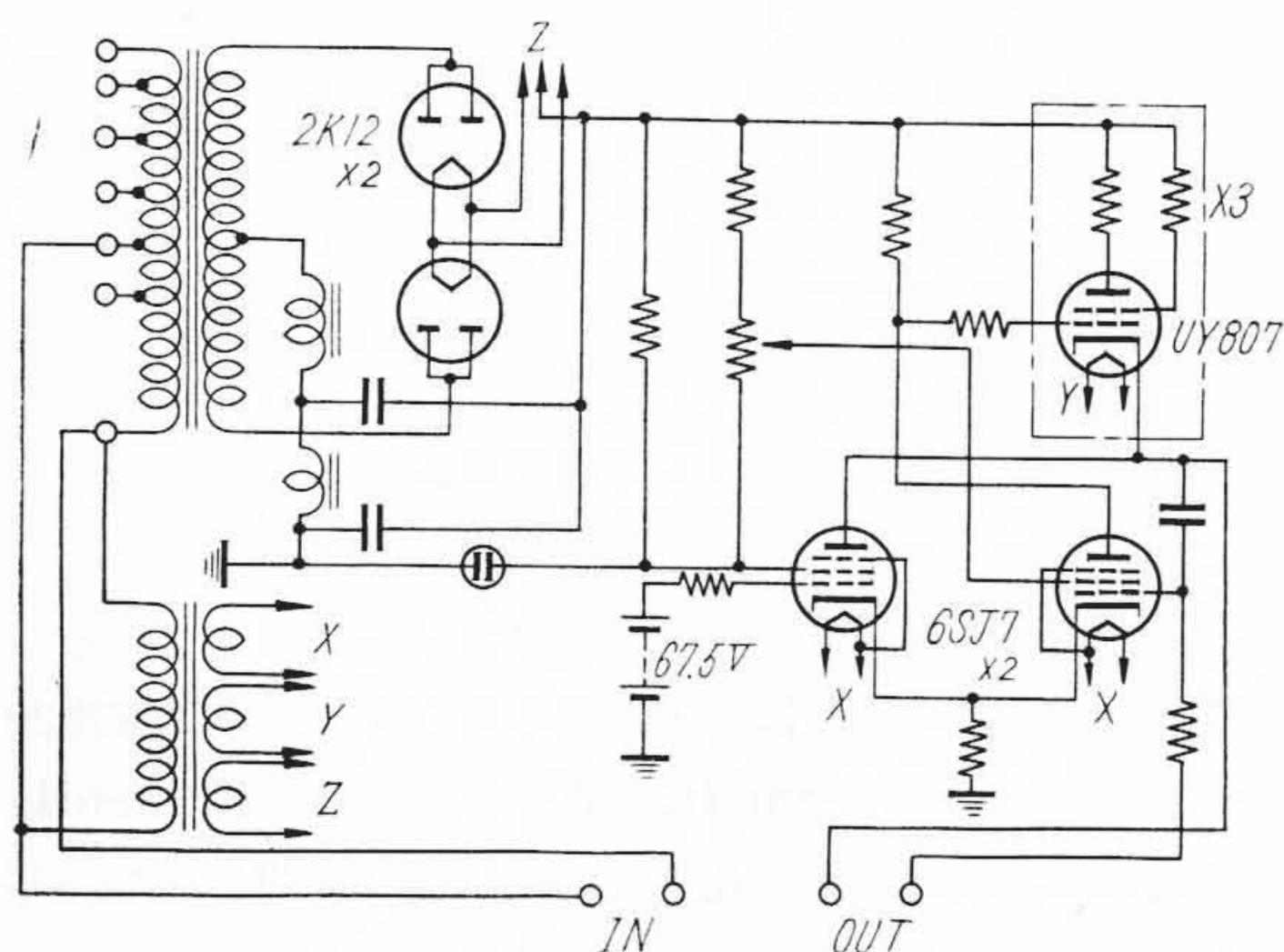
高圧をうる手段としては低周波コッククロフト昇圧方式や高周波多段昇圧方式なども考えられるが、コッククロフトは設備費が膨大となり、また高周波方式は保守上に難点がある。われわれは一般に広く知られている割に利用されていないベルト起電機方式による高圧電源を採り上げ、その安定度を保持することに一応成功した⁽²⁾。

(1) ほかの条件を変えずに加速電圧を容易に変えること。



M: 駆動用モータ C: エポナイト製カバー
SN: 撒布子 H: 高圧ケーブル

第9図 撒布子装置

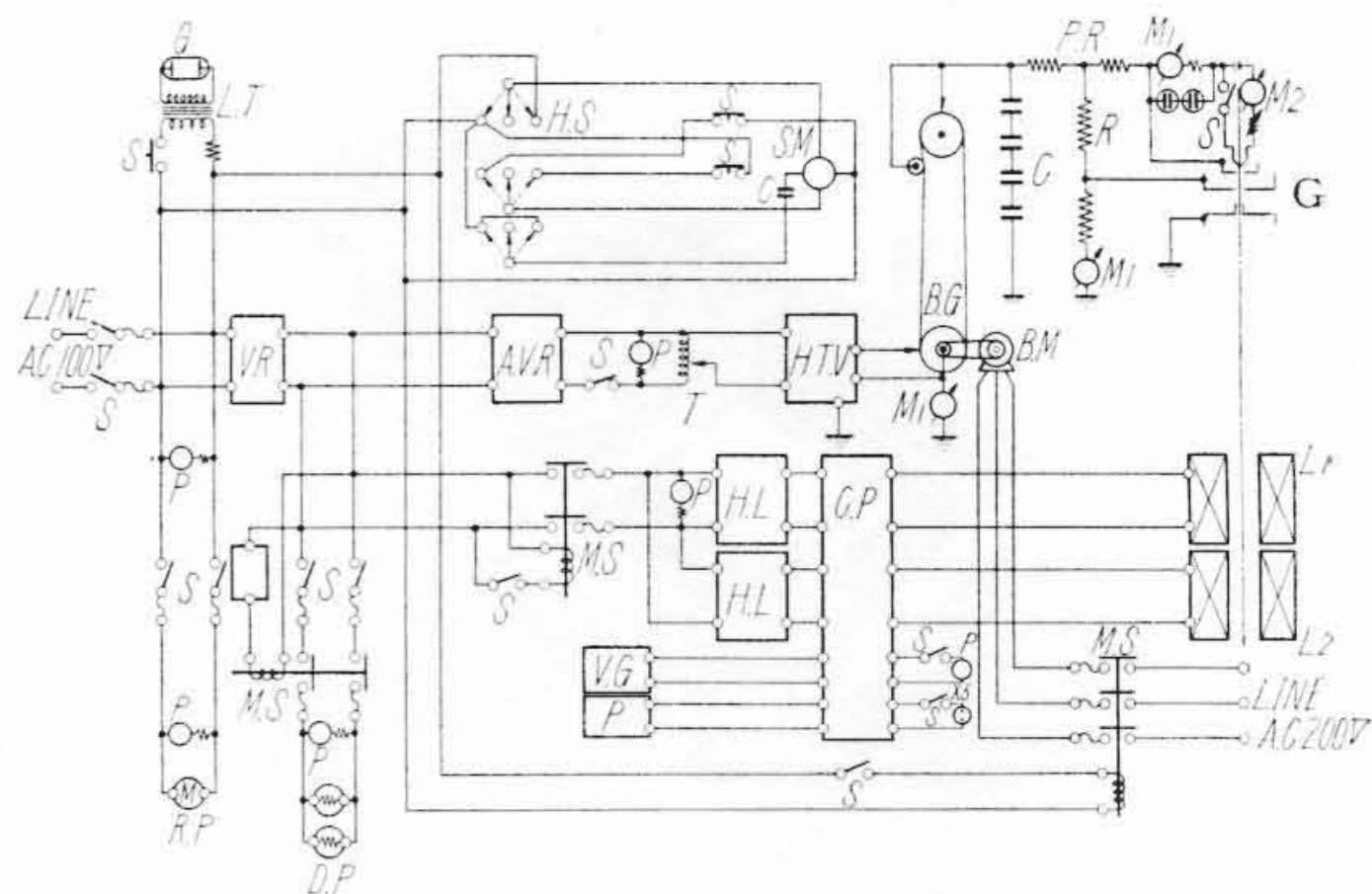


第10図 電流スタビライザ回路図

(2) 標準試料を併用するのであまり長時間にわたる安定度を必要としないこと。

などの点より、ベルト起電機は超高圧電子回折装置用の電源として非常に有効であるといえる。このベルト起電機を第8図に示す。

この装置で高圧安定度に最も大きく影響するのは、ベルトに電荷を送る撒布子装置である。この部分を第9図に示す。撒布子 SN は記録針を5mm間隔に真中棒に植え込んである。エポナイト製のカバー C は撒布子の幅を変えるためのもので、Mはその駆動用モータである。カバー C は2.5mm/sで零から最大170mmまで開閉できる。ベルトの幅は30cmであるから、最大の撒布子幅でもベルトの幅よりはかなりせまい。負荷電流が少ないため撒布子の幅がせまくても十分であり、またそのほうが撒布子電流を安定させるのに都合が良い。しかも蒐集子のほうは、ベルトの振れによる蒐集子電流の変動および取残し電荷を少なくするため、撒布子と逆にベルト幅より広くしてある。



S: スイッチ B.G.: ベルト起電機
M.S.: 電磁スイッチ C: 高圧コンデンサ
G: ガイスター管 R: 分圧抵抗器
L.T.: 漏洩トランス P.R.: 保護抵抗
V.R.: 手動電圧調整器 R.P.: 回転油ポンプ
A.V.R.: 自動電圧調整器 D.P.: 油拡散ポンプ
H.L.: 電流安定装置 M₁, M₂: 電流計
H.S.: 高圧調節スイッチ S.M.: 撒布子モータ
T: 摺動式電圧調整器 B.M.: ベルトモータ
V.G.: 真空計 G: 電子銃
P: パイロットランプ L₁: 第1コンデンサレンズ
C.P.: 操作盤 L₂: 第2コンデンサレンズ
H.T.V.: 高圧トランス

第11図 電気系総合系統図

3.3.2 レンズ電源部

レンズ電流安定装置は従来の電子顕微鏡の励磁電流安定回路と同様に単純逆再生方式を採用しており、その回路を第10図に示す。安定度は 3×10^{-4} 以内には十分にはいっている。

3.3.3 総合配線

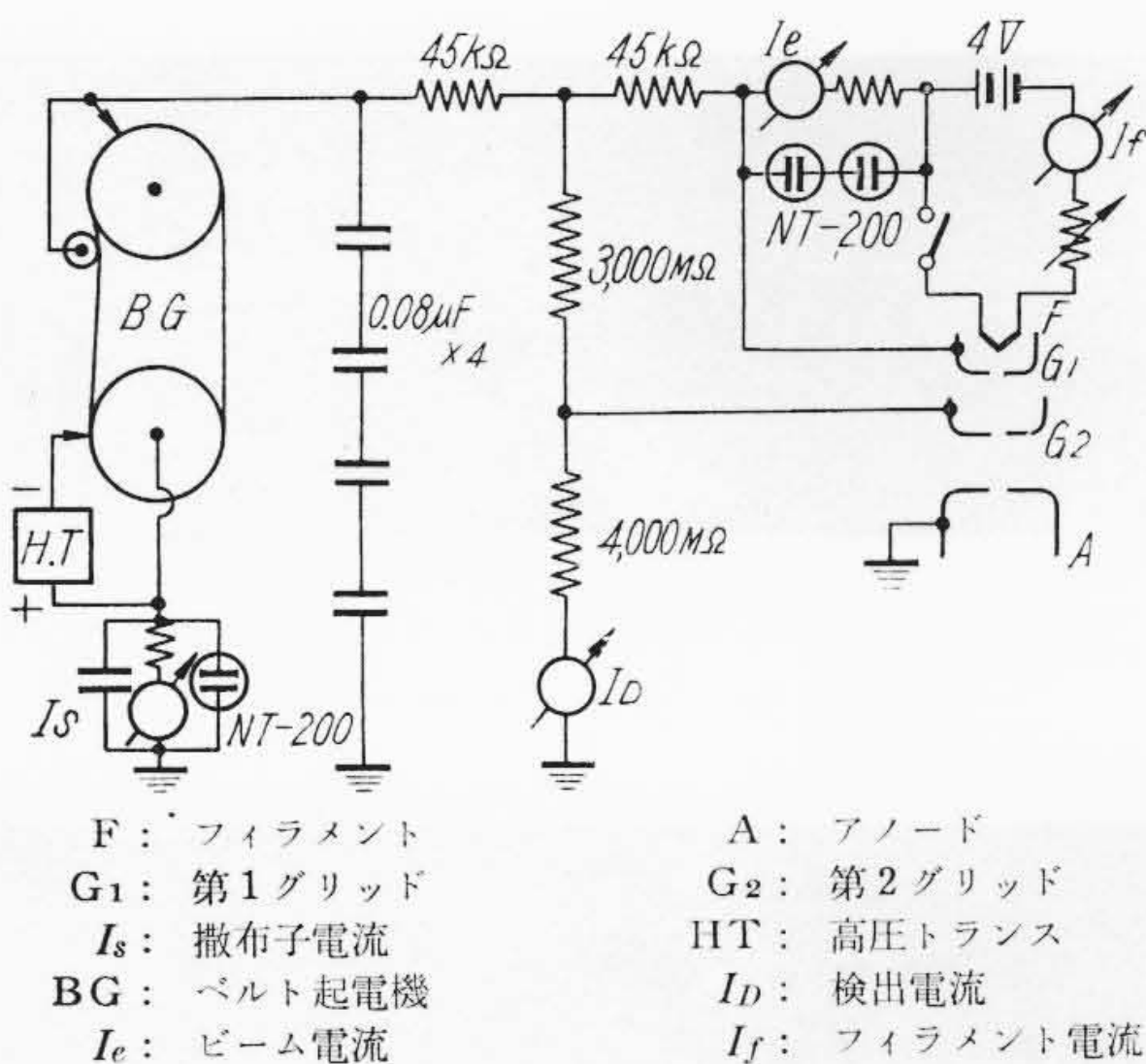
第11図に総合配線を示す。電源には AC 100 V, 50~60~を供給し、手動電圧調整器で100Vに合わせて油拡散ポンプを働かせ、さらに自動電圧調整器によって安定した出力を摺動式電圧調整器より撒布用高圧トランスに入れて撒布子電圧を加減する。また手動電圧調整器の出力の一部はレンズ電流安定装置にはいり第1コンデンサレンズは15~120 mA, 第2コンデンサレンズは0~100 mAの間で調節できる。撒布子の幅を加減する小形モータは100Vで操作され、一方ベルト駆動用モータはAC 200 V (三相) で運転される。

4. 実験結果

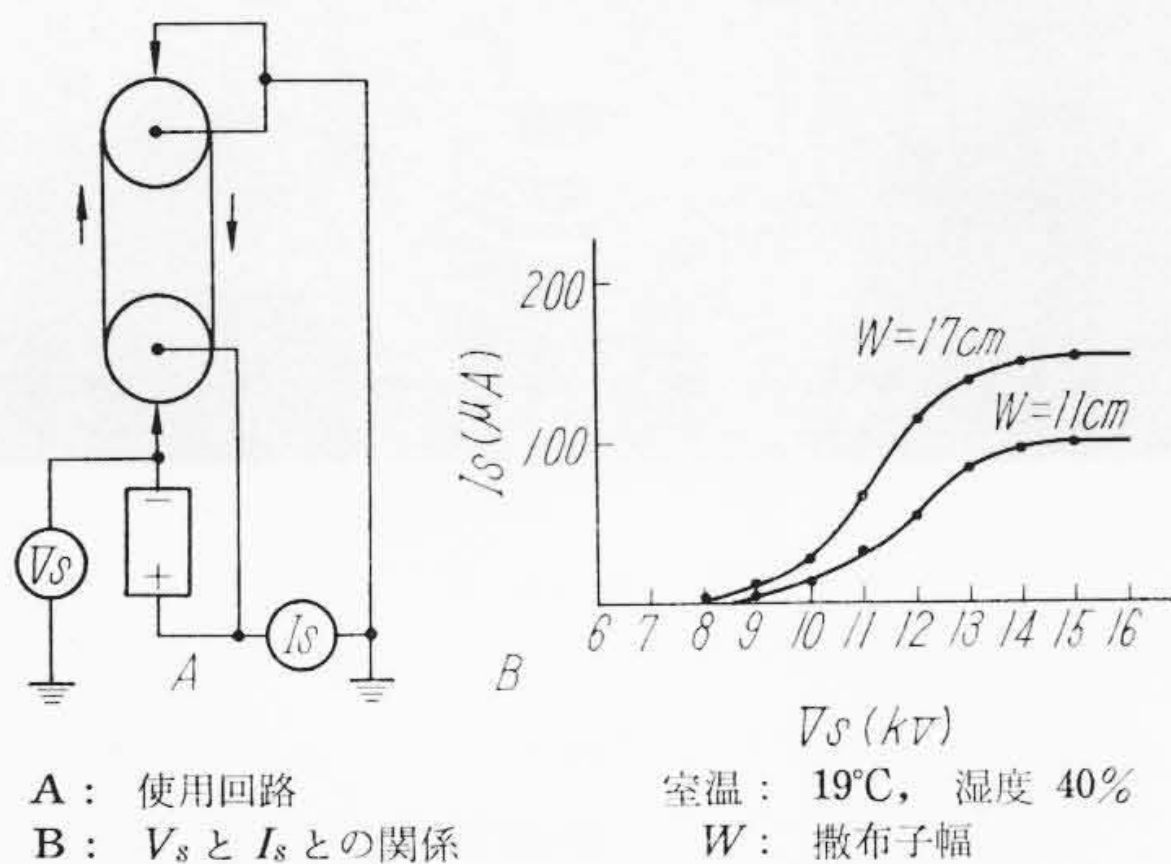
4.1 高圧電源安定度

加速電圧用の回路を第12図に示す。 I_D は高圧測定用の電流, I_e は電子銃部を流れる電流である。

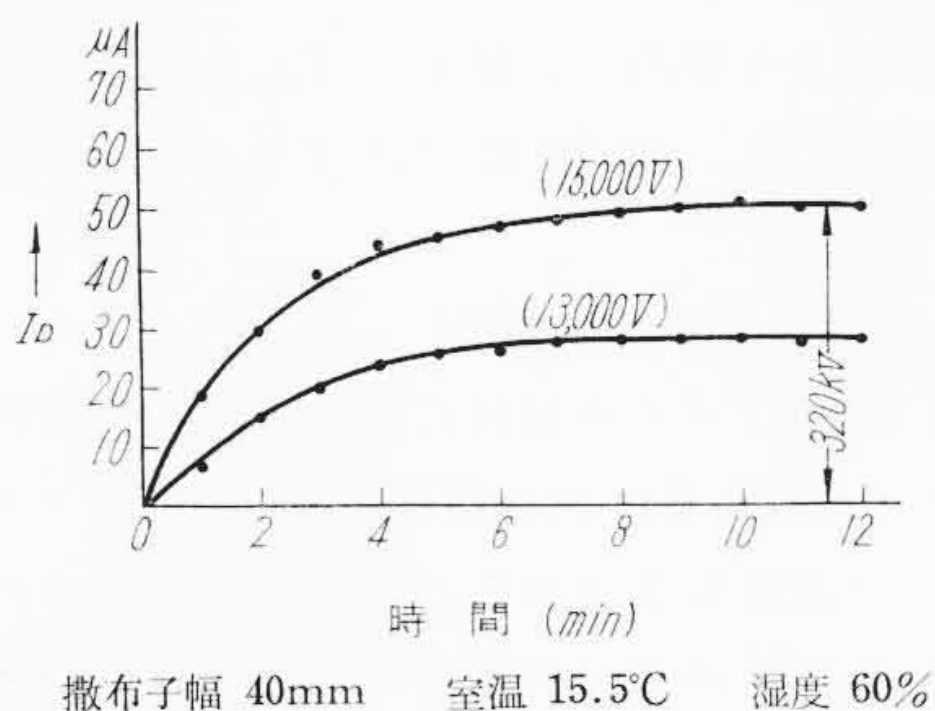
一方撒布子の電圧を V_s , 電流を I_s とすると、安定な高圧を得るためには I_s を一定にすることが必要である。この条件に対しては V_s をなるべく高く、また撒布子幅をせまくして撒布子の電流密度をできるだけ大きくしたほうがよいことが日立製作所中央研究所の研究により結



第12図 高 圧 回 路



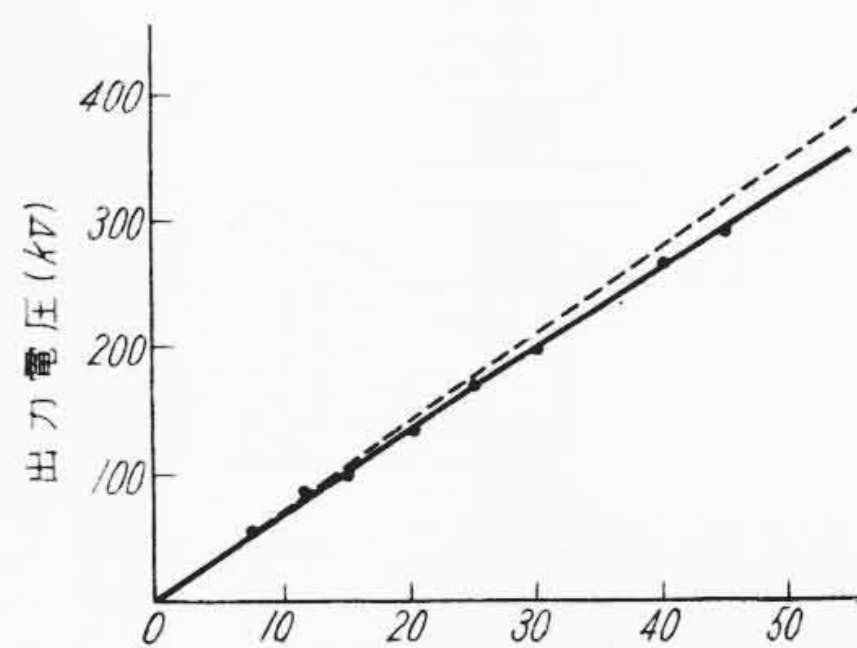
第13図 短 絡 試 験



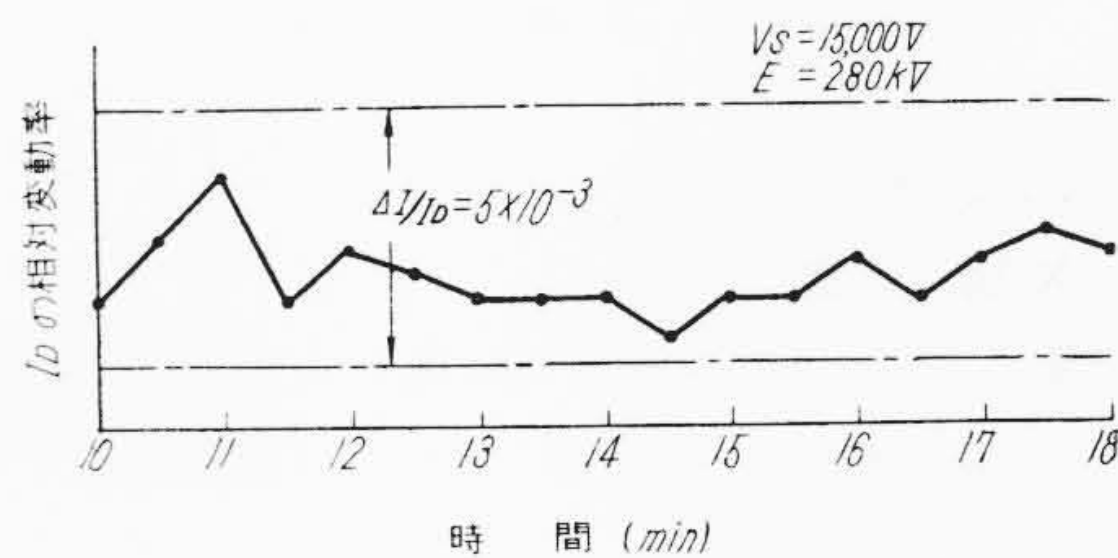
第14図 コンデンサ充電曲線

論づけられている。 V_s と I_s との実験曲線を第13図A、Bに示す。

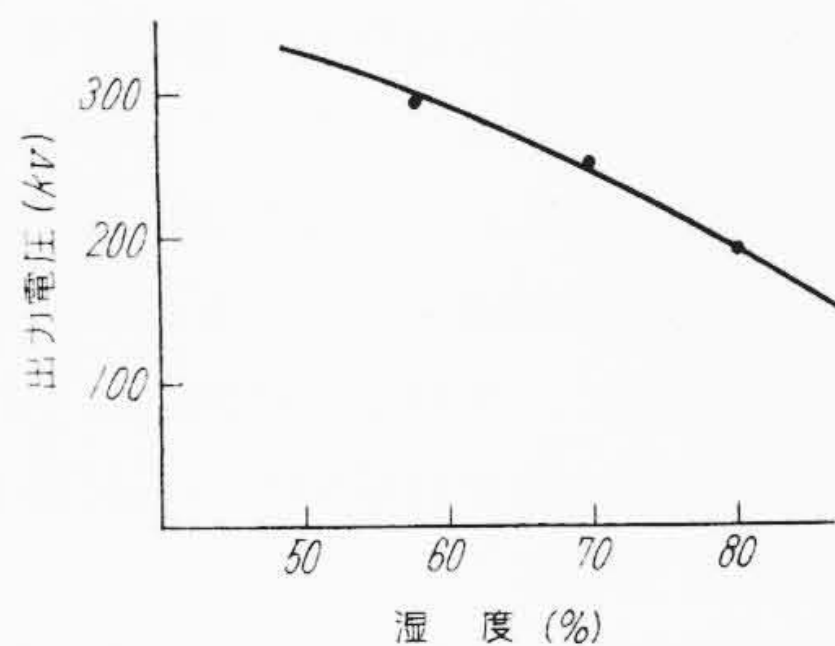
撒布子電流 I_s は初めコンデンサ充電に費され、 I_D 、 I_e 、そのほか漏洩電流を加えた負荷電流に等しい状態で電圧の上昇がやむ。撒布子幅を 4 cm, 撒布子電圧を 13,000 V と 15,000 V にした場合、運転開始からの時間と電圧上昇の関係をみると第14図のようになり、安定な高圧をうるまでに約11分かかる。これは充電回路の時定数 (CR) を大きくして蒐集子電圧の細かい変動を抑えるようにしたためである。したがって最初は撒布子幅を最大限に開いて 100~150 μ A 程度を流し、電圧上昇するに



検出電流 $I_D (\mu A)$
 点線は抵抗 7,000 M Ω に対する理論値
 測定時の湿度 60%
 出力電圧は回折リングより測定
 第15図 検出電流と高圧出力電圧



第16図 高圧安定度曲線



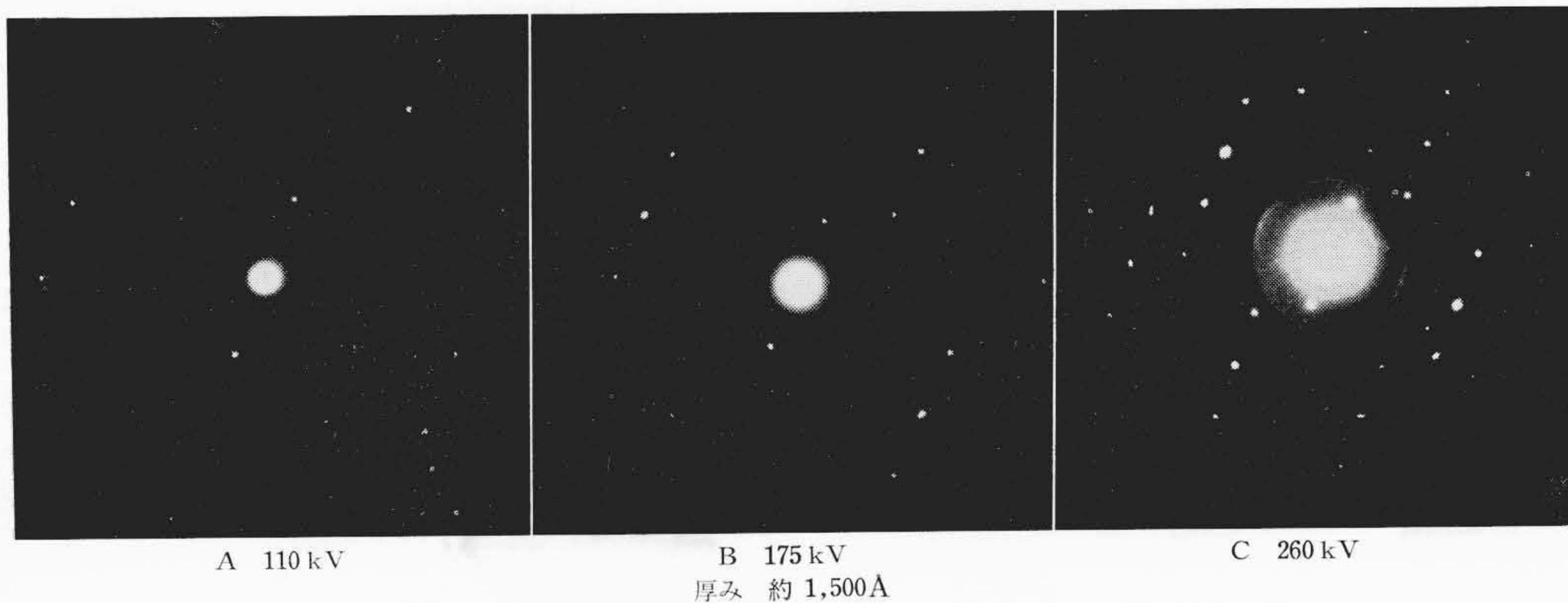
第17図 湿度と高圧出力の関係

つれて撒布子の幅をせばめ、電流密度を高くして安定な高圧が得られるように操作する。

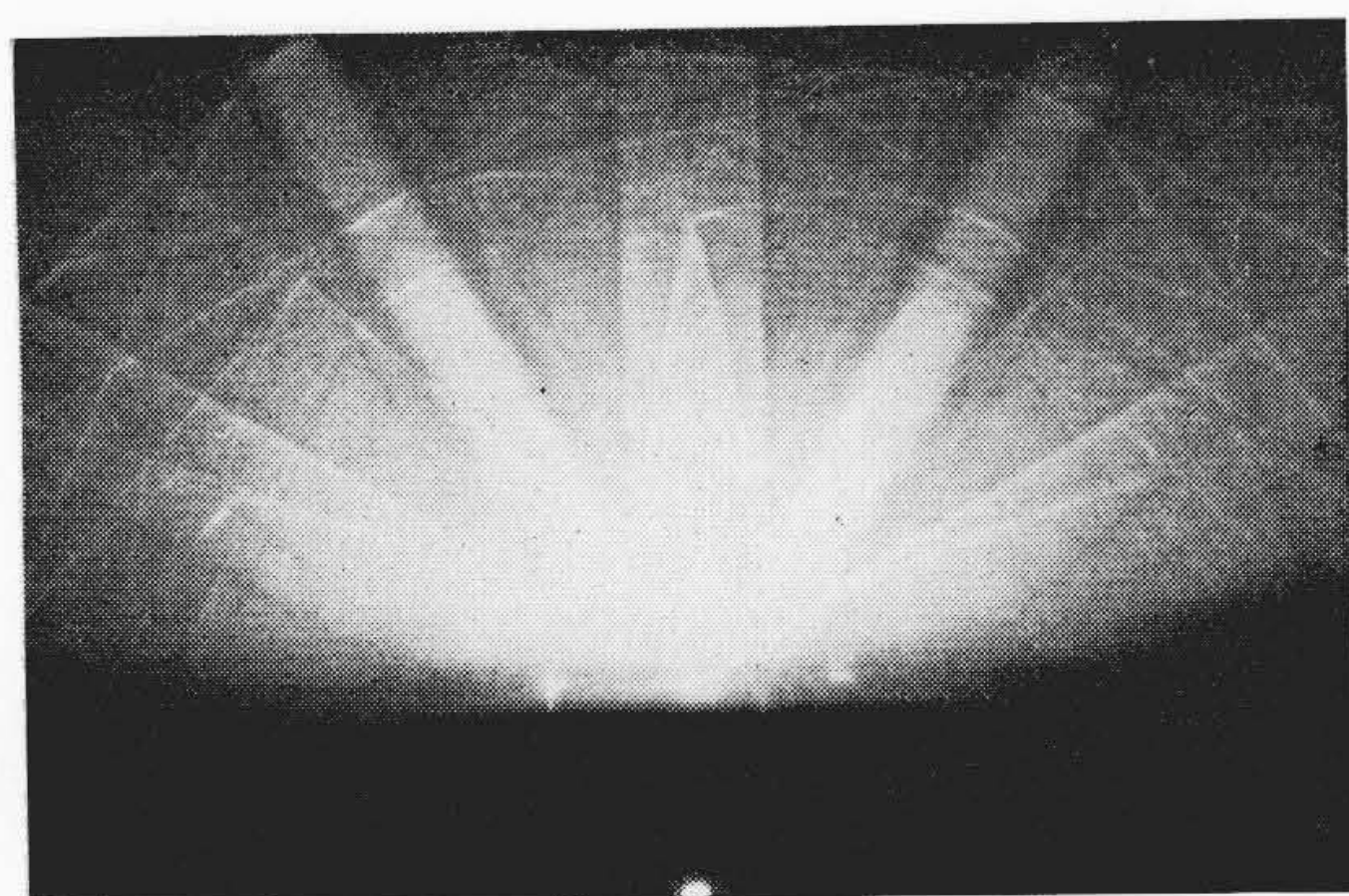
高圧の値を求めるには I_D の値を測り、7,000 M Ω の高抵抗の値を乗じて算出すればよい。一方実測値は電子回折の写真から求められ、第15図に示すようになる。また I_D の変動をポテンションメータで精密に測定すれば安定度が求まる。その実測値を第16図に示す。図よりわかるようにその安定度は約 2×10^{-3} であり、電子回折装置の電源として十分に使用できる。

4.2 湿度と最高出力

この関係は据付場所の条件を決める上に大切である。コロナ発生は電圧変動の原因となるので、高圧露出部にはすべてコロナシールドを施してあり、表面の電位勾配は 15 kV/cm 以下になっている。湿度と出力電圧の関係は正確な測定がかなり困難であるが、第17図のような結果を示しており、300 kV で使用するには相対湿度50%



第 22 図 鉄 (電 解 研 摩) の 電 子 回 折 像

加速電圧： 260 kV カメラ長： 350 mm
(東大物性研，三宅，藤原両先生御提供)

第 23 図 硫化亜鉛反射回折像

トラストも B より良く，かつ N パターンも広範囲に現われていてセクタの効果が歴然と認められる。

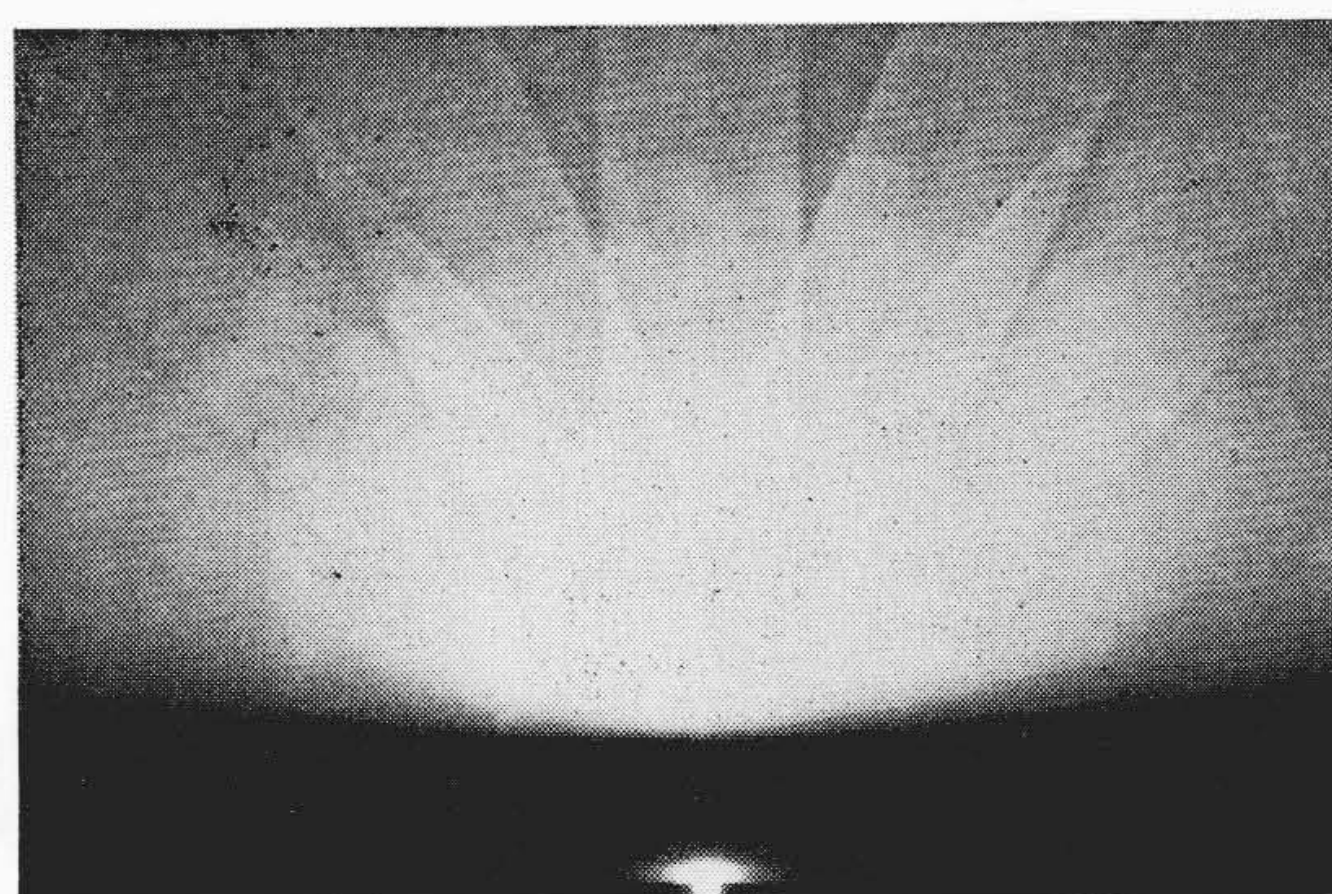
5.4 加速電圧を変えた場合

第 22 図は厚さが約 $1,500 \text{ \AA}$ の鉄の撮影例である。加速電圧の高低による試料透過度の差異が明確に現われている。

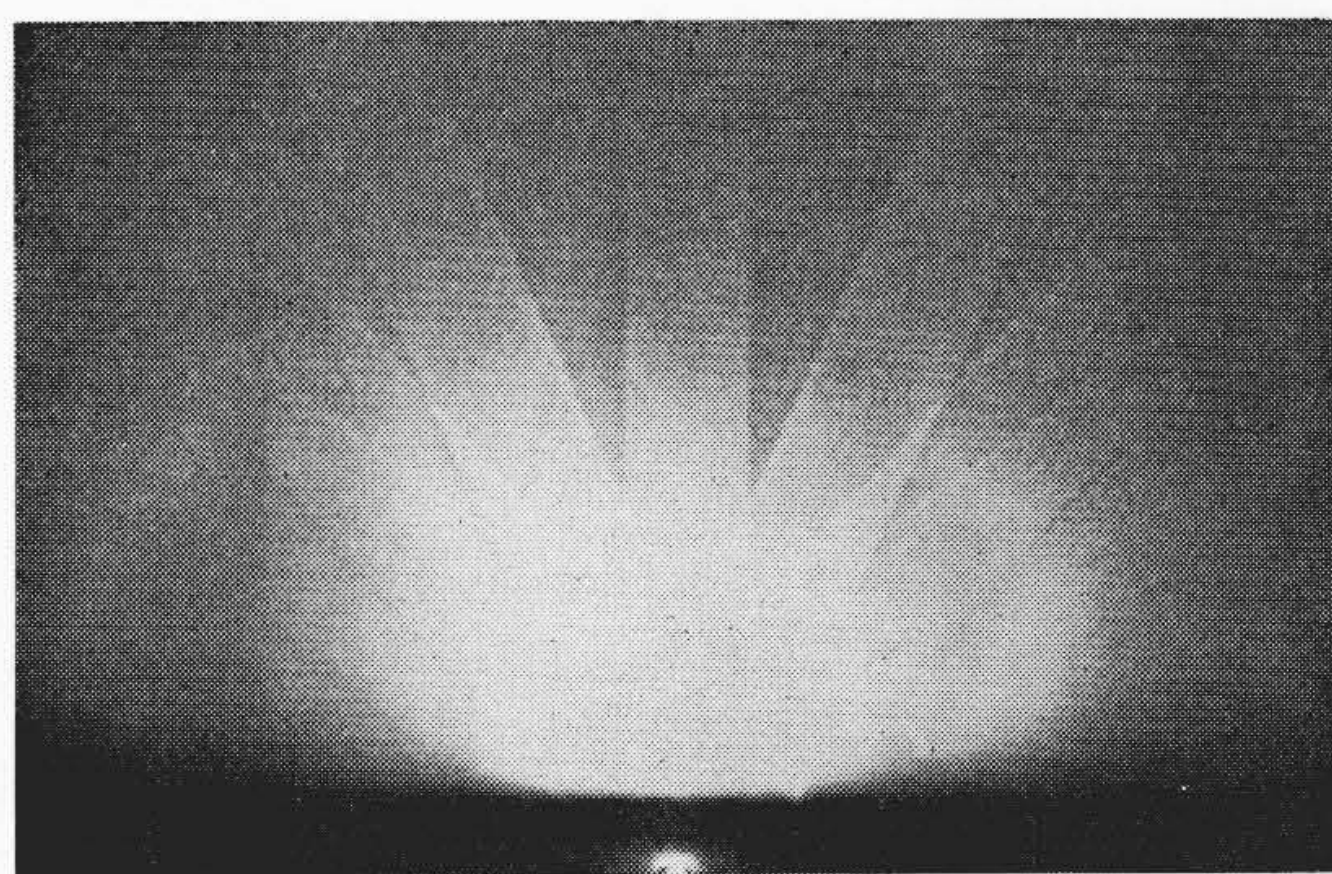
5.5 そのほかの撮影例

第 23 図は，硫化亜鉛の劈開面 (111) を，加速電圧 260 kV，カメラ長 350 mm で撮影した反射回折写真である。この写真で放射状に帯状になっているのが「菊地バンド」，細く白や黒の直線状に出ている線が「菊地線」である。また「菊地バンド」上に曲線を書いて走っている線が「菊地エンベロープ」である。「菊地エンベロープ」が高次のものまで，このように数多く現われている写真はほかにほとんど見受けない。

第 24 図はカメラ長 350 mm で岩塩の劈開面 (100) を撮影した反射回折像で，2 枚の写真は電子線入射角の同一方位のものである。放射状に出ている帯状の反射が「菊地バンド」で，B は加速電圧を上げて電子線の波長が短くなったために，「菊地バンド」の幅が A よりかなりせま



A 加速電圧 117 kV



B 加速電圧 260 kV

第 24 図 岩塩反射回折像

くなっていることを示す。バンドの境界のありさまなどを詳細に調べることは理論的に非常に興味があるけれども，本論文の主旨からはずれるのでここには触れない。

6. 結 言

本超高压電子回折装置は，日立製作所中央研究所で研究したベルト起電機方式の安定化電源を利用し，東京大学物性研究所の三宅先生，藤原先生の御要求に込ぜられるように設計試作したもので，わが国では実用化される最初の製品である。

