# 超高真空電子顕微鏡の試作

A Prototype Ultrahigh Vacuum Electron Microscope

Richard E. Hartman\* 赤 堀 宏\*\* 斎 藤 尚 武\*\*\* Hiroshi Akahori Syobu Saitô

# 要 旨

電子線照射による試料のコンタミネーションそのほか,残留ガスの影響の少ない電子顕微鏡として,到達真 空度が5×10<sup>-8</sup> Torr 以上になるような超高真空電子顕微鏡を試作した。排気装置としては従来の油を作動液と する真空ポンプの代わりに予備排気にクライオソープションポンプ3台,本排気にイオンポンプ4台を使用し, 鏡体全体を加熱脱ガスできる構造にした。真空シールは可動部をベローズ,または差動排気式にし,固定部に は溶接,またはメタルガスケットを使い,"O"リングガスケットの数を従来の3分の1に減らすなどして目標 真空度を得ることができた。これによりコンタミネーションは従来の50分の1以下になった。電子顕微鏡的 性能は日立高性能電子顕微鏡 HU-11 DS と同等である。



ている部分にガスの沈着が生じ、細部の観察が不可能 になる。この現象をコンタミネーションと呼んでいる。 このコンタミネーションの原因は、真空中に浮遊して いる主として有機性のガス分子であるとされ、この有 機性ガスの供給源は金属壁に吸着されていた油脂およ び排気装置としてのポンプからの流入油蒸気であると 考えられている(1)~(3)。これら真空中に浮遊しているガ ス分子を取り除く目的で, 試料近辺に液体空気で冷却 されたコールドフィンガなどの設置が行なわれているがほとんど無 限に供給されるガスを捕集しなければならないので、取扱い上の注 意を怠るとコールドフィンガそのもののコンタミネーションが電子 線に障害を与えたり,逆にガスの供給源となるなどのおそれがある。 われわれは試作に先立って従来の電顕の残留ガスをマスフィルタに よって分析したが、図1のチャートに見るように、質量数40以上に 多くの炭化水素が検出されている。これらのガス成分は、別の高分 解能質量分析装置によって分析された拡散ポンプ油、あるいは回転 ポンプ油の成分に一致するところから、少なくとも排気装置がガス 供給源の一つであることは間違いないと考えられる。われわれが超 高真空電顕を計画した目的は,これらの有害ガスを少なくすること によって得られるであろう次のような効果を確認するためである。

1. 試料と残留ガスとの相互作用をなくし、試料をありのままの状態で観察する。

2. 電子線通路のコンタミネションによる静電的像障害をなくする。

3. 残留ガスによる電子線の散乱,および電子銃内でのイオン放 電をなくし,電子線を高度に安定化させる。電子銃のフィラメン トの寿命を長くする。

筆者らの1人, Hartmanは, 某社の電顕の試料室を改造して,
(1) 試料室に液体空気によるコールドトラップを取りつけた場合。
(2) さらにイオンポンプを取りつけた場合につき, 試料室内に
残留するガスの種類と分圧, およびコンタミネーションレートを



表1 残留ガス分析例

	Mass No.	Regular Microscope	Regular Micro- scope Plus cold shield	Regular Micro- scope Plus cold shield-plus Auxiliary System
Methane	16	7.22×10-9	1.25×10-8	9.26×10 <sup>-10</sup>
Ammonia	17	$7.14 \times 10^{-9}$	1.04×10-9	3.30×10 <sup>-10</sup>
Water	18	$5.72 \times 10^{-6}$	$3.80 \times 10^{-8}$	1.12×10-8
Neon	20	$4.77 \times 10^{-8}$	1.39×10-9	7.46×10-10
Ethane	28	$2.95 \times 10^{-8}$	$2.29 \times 10^{-9}$	3.14×10 <sup>-10</sup>
Nitrogen	28	8.54 $\times 10^{-7}$	4.85×10-7	2.45×10 <sup>-8</sup>
Carbon Mono-	28	$3.06 \times 10^{-7}$		tent in the same in
Biethyl Ether	31	5.05 $\times 10^{-9}$	2.28×10-10	$7.52 \times 10^{-11}$
Oxygen	32	2.67×10-7	1.51×10-7	9.76×10-9
Argon	40	$1.78 \times 10^{-8}$	1.00×10-8	4.61×10-10
Butene-1	41	3.13×10 <sup>-8</sup>	1.68×10-9	3.93×10 <sup>-10</sup>
2-2 DM Butane	43	4.71×10-8	3.19×10 <sup>-9</sup>	9.02×10 <sup>-10</sup>
Acetone	43	1.63×10-8	6.10×10 <sup>-10</sup>	8.18×10-11
Carbon Dioxide	44	$1.54 \times 10^{-7}$	$2.15 \times 10^{-8}$	4.85×10-9
Pentene-2	55	$2.96 \times 10^{-8}$	1.41×10-8	5.00×10 <sup>-10</sup>
Total Pressure	Torr	7.60×10-6	7.30×10-7	5.50×10-8
$\Sigma P_{CH}$ Torr		$1.66 \times 10^{-7}$	2.19×10 <sup>-8</sup>	3.19×10-9
$\Sigma P_{CH}/P_{Total}$		0.0218	0.030	0.058
Contamination Rate		13.58 Å/min	12.43 Å/min	6.73 Å/min

測定した<sup>(2)</sup>。表1はその一例であるが,真空度に比べてコンタミ ネーションレートはあまり改善されていない。これは油拡散ポン プを併用しているため,完全に清浄な真空が得られていないこと を示している。 以上のことからわれわれの試作機には次の諸点を考慮した。

\* ニューヨーク医科大学教授 理学博士
 \*\* 日立製作所那珂工場 工学博士
 \*\*\* 日立製作所那珂工場

- 1. 油を使わない排気装置の採用
- 2. 使用金属の選択と表面処理法の改善
- 3. "O"リングガスケットの削減

\_\_\_\_\_ 30 \_\_\_\_\_

4. しゅう動,可動部の真空シール法の改良



図2 超高真空電子顕微鏡



表2 鏡体各部の表面積と発生ガス量

	Volume cm <sup>3</sup>	Surface cm <sup>2</sup>	Gasket surface cm <sup>2</sup>	Q Torr. l/s	Ion pump <i>l</i> /s
Gun chamber Cond. lens	3,666	1,863	7.8	1.23×10-6	25
Specimen chamb. Obj. & Int. lens	1,307	2,284	4.21	1.64×10 <sup>-6</sup>	100
Proj. lens Diff. & View chamb.	8,366	3, 756	16.5	2.75×10-6	200
Camera chamb.	8,350	3,756	51.9	5.3×10-6	200

加熱脱ガスができること,(5)真空漏えい量を1×10<sup>-10</sup> Torr. *l*/s 以下にすることなどを念願において設計した。表2は試作機鏡体各 部の内容積,内表面積,およびガスケットの露出表面積と,これら の放出ガス量(*Q*)の計算結果を示したものである。表2に示すよう に,本試作機は四つの部分に分けられた鏡体のそれぞれを異なった イオンポンプで排気するように構成されている。表2には各部を受 持つイオンポンプの排気容量を併記してある。

### 2.1 鏡体真空部の構成材料

本機には磁気的特性も考慮して次のような材料を使用した。

(1) ステンレス鋼 (放出ガス量  $10^{-9} \sim 10^{-13}$  Torr.  $l/s \cdot cm^2$ )<sup>(4)</sup>

電子銃部品と電子銃室, 試料室, 試料室内部品, 回折試料室, コールドトラップ, 観察室, カメラ室, ベローズそのほかの小 部品。

(2) 純鉄および強磁性材料 (10<sup>-8</sup>~10<sup>-11</sup> Torr. l/s•cm<sup>2</sup>)



図3 鏡体部断面図

### 5. 真空壁の加熱脱ガス方式の採用

1.に対してはソープションポンプとイオンポンプの組合せによる 排気装置の採用,2.に対しては磁性材料以外はステンレススチール を使用し,表面の超仕上げと電解研摩による平滑化,3.に対しては分 解を必要としない場所には耐真空溶接,またはメタルガスケットの 使用,4.のしゅう動,可動部はベローズ,あるいは差動排気方式を 採用し,5.に対しては鏡体各所にパイプを埋設してこれに加熱流体 磁気回路,電子レンズ,レンズセットリングなど。

(3) 憐 青 銅  $(5 \times 10^{-8} \sim 10^{-11} \text{ Torr. } l/s \cdot cm^2)$ 

磁気回路および電子レンズの非磁性材料,固定絞り,試料ホル ダなど。

(4) モリブデン  $(10^{-8} \sim 10^{-11} \text{ Torr. } l/s \cdot \text{cm}^2)$ 

固定絞り,可動絞り板。

(5) ガラス, セラミック

電子銃絶縁がいし、スチグマトールなど真空内での電気絶縁物。 表2の(Q)は上記材料を使用した場合の放出ガス量である。

#### 2.2 <sup></sup> O<sup>n</sup> リングガスケットの脱ガス

電顕の場合は解体を予儀なくされることが多いので、"O"リング ガスケットを全く使用しないということは不可能である。本試作機 では放出ガスの少ないフッソ樹脂系のバイトンガスケットを採用 し、使用に先立って次のような洗浄脱ガスを行なった。

- (1) 中性洗剤(20g/l)液にて1時間煮沸
- (2) 蒸留水で1時間煮沸
- (3) 90℃以上の蒸留水で数回洗浄
- (4) 5×10<sup>-5</sup> Torr の真空炉中で150℃,5時間加熱脱ガス
- (5) 真空デシケータ中に保管

上記洗浄脱ガスによって"O"リングガスケットは約3%の重量 減少を見たが、可塑性、真空シール効果には影響がなかった。

解体を必要としない場所は耐真空溶接,解体のひん度の少ない場 所には金属ガスケット(銀,あるいはアルミニウム)を使用した。

#### 2.3 鏡体の脱ガス法

金属表面に吸着された水分や油脂類を取り除くことはきわめて困 難で、一般に真空中での加熱脱ガスが最も有効とされている。完全 に脱ガスするには 300℃ 以上に加熱することが必要といわれている

を流す方式を採用した。図2は本試作による超高真空電顕の外観写	が,電顕の場合は変形,変質を極度にきらう電子レンズや,熱的に弱
真である。	い電磁コイル,バイトンガスケットなどを使用しているので加熱温
	度には制限がある。本試作機では図4のように鏡体の主要な部分に
2. 試作電顕の構造と真空的考察	銅管を埋設し、これに加熱流体を流して真空壁全体を100℃以上に
図3は試作機鏡体の断面図である。 超高真空に耐える鏡体とし	加熱できるようにした。熱源として流体を用いたのは、加熱脱ガス
て、(1)真空内表面積を小さくすること、(2)ガス放出源を極力	完了後,液温を室温に戻すことにより,すみやかに使用状態にできる
減らすこと、(3)ガスを吸蔵するような間げきをなくすこと、(4)	こと、流体を温度制御して一定温度に保つことにより、レンズコイ
— 31	1
31	

928

昭和44年10月

江 日

評 論

#### 第 51 巻 第 10 号

HITACHI

PHOTO-PLATE PRE-EVAC. CHAM.

R.P

KH

D.P

S.F

2-2

AIR

AIR

REGULATOR

CYLINDER

251/s D.1 PUMP

100*l*/s

D.1 PUMP

200*l*/s

D.1 PUMP

200*l*/s

D.1 PUMP

DRY N2 LINE

REDUCED PRESSURE VALVE TO VALVES



鏡体の加熱脱ガス法 図4

排気系統のブロックダイアグラム 図7

(AIR OPERATED)

K

RV1 DRY N2 LEAK

 $2^{"}\phi$ 

EG

RV2

RV3

 $2^{"}\phi$ 

R

(AIR OPERATED) DRY N<sub>2</sub> LEAK VALVE

VALVE

K-

AIR OPERATED)

DRY N, LEAK K VALVE

 $\perp$  (AIR OPERATED)



図 5 イオンポンプの配分



排気系(右)と操作電源(左)の外観 図 6

ルの励磁電流による発熱を押え、機械的に安定な状態を保って電 顕像への熱的像障害を防止できる利点を考えたものである。 流体 としては100℃以上に加熱した油を8~10 l/minの速度で循環さ



鏡体各部の到達真空度(計算値) 表 3

立7	÷۳۴	放出ガス量 $Q$	排気管	I.P. 排気速度	到達真空度
сi)	ועז	Torr <i>l</i> /s	l/s	l/s	Torr
電子	统	1.2×10 <sup>-6</sup>	30	25	4.0×10 <sup>-8</sup>
試 彬	室	1.6×10 <sup>-6</sup>	45	100	3.6×10 <sup>-8</sup>
回射観察	〔室】 [1] [1] [1]	2.75 $\times 10^{-6}$	50	200	5.5×10 <sup>-8</sup>
カメ	ラ室	5.3×10-6	50	200	1.1×10-7

破るときの注入ガスとしても利用されている。本試作機の場合,鏡 体と各イオンポンプの間にはストップバルブを設けていないが、乾 燥窒素ガスを注入した場合、シリカゲル乾燥器を通した室内の空気 を注入したときに比べて,再排気に要する時間は数分の1に短縮さ れている。ソープションポンプはモレキュラーシーブを液体空気で 冷却する方法で,加熱して活性化し繰り返し使用する。なお,本排 気系はアメリカ・パーキンエルマー社・ULTEK 部で設計製作を担当 した。図6は排気系および操作電源の外観写真である。図7は排気 系のブロックダイアグラムである。

せた。 2.4 排気系の構成 排気系はイオンポンプ4台、イオンポンプの補助排気用ソープシ ョンポンプ3台からなっている。図5はポンプの配分で、表3は各 イオンポンプの受持つべき排気容量(Q)と排気管コンダクタンスよ り計算した到達真空度を示したものである。図にあるガスシリンダ はニューマチックバルブの駆動に利用される以外に, 鏡体の真空を

# 3. 実験結果と考察

# 3.1 排気時間と到達真空度

排気系は本体と組合わせる前にイオンポンプ単独での到達真空度 を測定し,3ないし5×10<sup>-9</sup> Torr に達することを確認した。電顕鏡 体の各部品は組立前にそれぞれが1×10<sup>-10</sup> Torr. l/s 以下の漏えい 量であることをリークデテクタによって確認した。総合排気特性の 一例は図8に示すとおりである。大気圧から0.1 Torr までをソープ 超高真空電子顕微鏡の試作 929



図9 真空度とコンタミネーションレートの関係

ションポンプ SP-1, 1×10<sup>-4</sup> Torr までを SP-2 で排気し, ここから イオンポンプ(I.P.) を動作させた。鏡体の加熱脱ガスを行なわない ときは 1×10<sup>-7</sup> Torr でほぼ飽和しているが, 110℃ の油を循環させ



図10 イオンポンプからの漏えい磁束 (直流)



	DIRECTION		A			®			©	
<i>l</i> (cm)		XA	YA	ZA	Хв	YB	ZB	Xc	Yc	Zc
	50	11.0	2.0	3.0	11.0	1.2	1.2	18.0	6.0	3.0
	100	4.0	1.0	1.5	4.0	0.8	1.0	5.0	1.0	2.0
	150	1.5	0.5	1.0	1.8	0.5	1.0	1.5	0.1	1.0

て数時間脱ガス後は容易に 10<sup>-8</sup> Torr 代にはいる。 図8 の曲線の中 で電子銃室は本実験中 1×10<sup>-7</sup> Torr が限界であったが,これはイオ ンポンプの容量に比べて電子銃室の放出ガス量が相当多いためと考 えられる。

3.2 真空度とコンタミネーションレート

本試作機の初期調整段階においては,到達真空度に対して試料の コンタミネーションは期待したほど減少しなかった。しかし,鏡体 の加熱脱ガスを繰り返すに従いコンタミネーションレートが改善さ れてきた。

図9は本試作機における真空度とコンタミネーションレートの関係を示すグラフである。同一真空度でも鏡体の脱ガスの程度,写真 乳剤の乾燥の程度以外に,試料の種類,電子線照射条件によって大きい差があり,ほぼ1けたの幅があるとみてよい。

#### 3.3 イオンポンプからの磁界の影響

イオンポンプには強力な磁石が使用されているので、電子線への 影響が考えられる。使用に先だって漏えい磁束の強度を測定したが 図 10 に示すように、その漏えい量は非常に少なく実使用距離(80 cm)ではほとんど測定できないくらいであった。しかし、実際に鏡 体と接続した結果は磁性体で作られたフレームを伝わって磁束が鏡 体付近に集中し 0.3~0.6 ガウスとなった。これは直流磁界であるか ら変化がなければ電顕の性能には影響がないはずであるが、外部か らの機械的振動があった場合は磁界強度に変化を生じ、像障害とな って現われる可能性があるので、排気系のフレームを利用して磁気 シールドを施し、漏えい量を 1/10 程度に低下させた。

3.4 イオンポンプ電源からの漏えい磁界

電顕の性能にはイオンポンプ電源からの交流磁界が障害を与えた。このイオンポンプの電源にはリーケージインダクタンストラン

図11 イオンポンプ駆動電源からの漏えい磁束 (交流)

距離や構造が設計されている。結果的にみて電顕の電子銃は印加電 E(50~100 kV)に対して放電を起こす限界に近い。したがって真空 度は放電に対してきわめて微妙に作用している。電子銃内での放電 は絶縁がいし表面を伝わる沿面放電と、電極間でのパルス放電とに 分けられるが、電極間の放電は  $10^{-3}$  Torr 以下でのグロー放電領域 を越えると  $10^{-4}$  Torr 代で少なくなり、 $10^{-5}~10^{-6}$  Torr で再び発生 しやすくなる。本試作機での実験では印加電圧 100 kV の場合、 $1 \times 10^{-5}~5 \times 10^{-6}$  Torr の範囲では 2~3分間隔で  $3~10 \mu$ A の微小放電 が繰り返され、放電のたびに真空度は係数で 2~3 倍のふらつきを生 じている。  $1 \times 10^{-6} \sim 10^{-7}$  Torr でも微小放電は残るが、大きさは  $1~2 \mu$ A となり、 $1 \times 10^{-7}$  Torr に近づくに従い間隔は 10~20分、放 電の大きさも  $1 \mu$ A 以下ときわめて安定してくる。 $10^{-8}$  Torr にはい ればおそらく放電は皆無になると思われる。 図 12 はチャートの一 例を示したものである。

フィラメントの寿命については試験期間が短く,結論は下せない が調整期間中延200時以上を使用しており,従来の電顕より2~3倍 は長く使えるものと考える。

#### 3.6 真空度向上によるそのほかの効果

当然予想されたことであるが,電子線通路のコンタミネーション に基づく像障害が少なくなり,鏡体の解体クリーニングをひん繁に 行なう必要がなくなった。特に電子レンズにはいっている絞りの汚 れが少なく,性能に直接影響する対物可動絞りも長期間の使用に耐

スホーマが使用されており、4台分の電源から発生される交流磁束	えている。ただし, 鏡体の加熱脱ガス時には少なくとも可動絞りを
は図11に示すように10ミリガウスを越え、電顕本体に近づけて設	取り除いてから行なわないと, 蒸発した油脂が若干温度の低い絞り
置することは不可能であった。電源部の磁気シールドも試みたが顕	板に付着して、かえって汚れる結果となる。
著な効果が得られず,電顕の許容交流磁界2ミリガウス以下を保つ	3.7 試作機の問題点
ため150 cm以上の距離に設置することにした。	上記可動絞りの汚染問題は絞り板部を鏡体の温度以上に加熱でき
3.5 真空度と放電,電子銃フィラメントの寿命	れば解決されるが、試作機にはそれがなく、加熱脱ガス後取はずし
電顕の電子銃は点光源の電子線源となるように, 陰極一陽極間の	て掃除し直すか、加熱時は取はずしておき終了後真空を破って取り
00	
33	



A  $1 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-6}$  Torr



B  $1 \times 10^{-6} \sim 5 \times 10^{-7}$  Torr



C  $5 \times 10^{-7} \sim 1 \times 10^{-7}$  Torr

なお多量のガスが放出される。複雑なカメラ機構部品からの放出ガ スも考えると写真乳剤によらない記録装置が望ましい。試みにカメ ラ部を取はずしてHII-3テレビ装置を取りつけたが,試料室での真 空度は3×10<sup>-8</sup> Torr に達し,コンタミネーションも測定できない ほど少なくなった。また,撮像管部の真空度が良いのでテレビ像の 質が向上している。

3.8 電 顕 的 性 能

分解能は 100 kV において 4.5 Å (格子) が確認された。性能仕様 は高性能電顕 HU-11 DS と同等である。

(1) 加速电压 23, 30, 73, 100 KV, 安定没 3~10 /1	(1)	加速電圧	25, 50,	75,	100 kV,	安定度 3×10-。	/min
--	-----	------	---------	-----	---------	------------	------

(2) 倍率範囲 1,000~60,000倍, 1,500~150,000倍, 3,000
 ~200,000倍

各倍率範囲を22ステップ, 倍率直接指示, ほかに連続変換も可能である。

(3) 分 解 能 4.5 Å 格子像

(4) 真 空 度 <5×10<sup>-8</sup> Torr (試料室)

# 4. 結 言

本試作の目的の一つである残留ガスと試料との相互反応に関して はまだじゅうぶんな実験結果が得られていない。引き続きニューヨ ーク医科大学において確認実験が行なわれている。

最後に本試作を実行するに当たり,排気装置の設計製作を担当さ

#### 図12 真空度と微小放電の関係

つける方法をとっている。鏡体の加熱脱ガス時の可動絞りの汚染防止対策が必要である。

次に試料微動,可動絞りなど真空外から操作する場所の動作範囲 がせまく,動きも若干悪い。可動距離の大きい柔軟なベローズの開 発が望まれる。

写真乳剤からの放出ガスは超高真空電顕には大きい障害を与える。本試作機にはソープションポンプで排気しながら50℃に加熱脱ガスのできる乾板乾燥機を付属させたが、10時間以上の乾燥後も

れたパーキンエルマー社 ULTEK 部 Mr.C.Garrett に心から御礼 申し上げる。

### 参考文献

- (1) J. Hengevoss et al: Annual Meeting of the German Vacuum Assoc., Frankfurt (1962)
- (2) R.E.Hartman et al: Sixth International Congress for E. M. Vol. 1, p. 159 (1966)
- (3) R.K. Hart, et al: Sixth International Congress for E. M. Vol. 1, 161 (1966)
- (4) 真空技術常用諸表, 真空技術講座 12, 229 (1965)



## 発熱自硬性鋳物砂用ミキサー

34

発熱自硬性鋳物砂は,肌砂または裏砂用ケイ砂にフエロシリコン,石炭粉の添加物を付加して数分間混練し,これに加えられる機械的仕事によって原料砂を摩擦加熱させる第1行程と,その第1行程で混度の上昇した原料に,発熱自硬性反応を起こす化学材料を添加して混練する第2行程とにより調製される。この場合,第1行程において砂の粒子の表面にフエロシリコン,石炭粉の添加物が付着し,第2行程において混度の上昇した砂およびフエロシリコンに水ガスの粒子が付着して,砂およびフエロシリコンから水ガラスに熱が伝わる。

このように自硬性鋳物砂は,水ガラスとフエロシリコンの化学反応を応用するものであるから,水ガラスの熱を直接フエロシリコンとの反応に活用したほうが熱効率の高いことに着目したのがこの発明である。

この発明はミキサー1に原料および添加物の投入ホッパ4,5と,

によりフエロシリコンは反応して発熱作用が行なわれ,所望の硬化 速度をもつ自硬性鋳物砂となって吐出口2から排出される。

この発明によれば鋳物砂より高比熱の水ガラスを所望の混度に上 昇させて散布すればよいから、従来の第1行程を省略することがで きるため作業能率が向上し、また水ガラスの熱は直接フエロシリコ ンとの反応に活用されるから、熱効率がよく、その利用価値が大で ある。(野村)



そのホッパから距離 S だけはなれた位置に水ガラス添加用ノズル
6を設け、水ガラスの添加系統中にその水ガラスを所望の温度に調
節する温度調節装置9を設けた構造からなるものである。
このミキサーにより所望の鋳物砂を調製するには,まずホッパ4,
5からミキサー1内に原料と添加物フエロシリコンを投入し、それ
をミキサー内において駆動用モータ3を介して回転される羽根によ
りかくはん混合しながら距離 S だけ移送する。 ついで, 混度調節
装置9により所望の温度に上昇した水ガラスをノズル6より混合砂
に投射散布すると,羽根による均一な混合と同時に水ガラスの添加