

金 相 電 子 顕 微 鏡

谷 安 正

1. 序 論 従来光学顕微鏡では到達し得なかつた微細構造の識別が電子顕微鏡によれば可能であることが原理的にわかって以来、これを金属組織の研究に取り入れることが早くから試みられた。そしてその方法として次の三つの方法が試みられて来た。

i) 表面放出型 表面から放出する電子を用い、これを電子レンズによって収束させてその表面の像を結ばせるもので、この際のコントラストは電子放出強度が物質とか結晶方位の相違によって異なることから生じる。自己発光体の光学顕微鏡撮影に対応するものである。

ii) 反射型 試料表面に電子束を斜めに入射させ表面から反射した電子を用いて像を結ばせるものでこれは主として金属表面の凹凸によってコントラストが現われる。この顕微鏡は方法としては通常金属顕微鏡に対応するものである。ただし後者では光に対する反射率および色が組織によって異なることからコントラストが現われるが前者の場合では組織による反射率の相違は少ないし色がつかない。表面の形状が著しく拡大して現われるのを利用してその凹凸から組織を推定するものである。

iii) 透過型 電子束を試料に垂直に入射させ透過電子束によって試料の形状を拡大して結像させるものであって、透過型光学顕微鏡に対応するものである。コントラストは試料各部の厚さならびに密度の相違によって電子に対する散乱度の異なることが主なる原因である。数百オングストローム以上の厚さの金属は電子に対して全く不陽明なので極めて薄い金属膜以外にはこの方法は直接に用いられないことは明らかである。しかし、間接であるが試料表面を転写した薄い強靱な膜(通例コロジオン膜、 SiO_2 、 SiO 、 Al 、 Al_2O_3 、 C 等)をつくり、これの電子像を撮り、それによって試料表面の形状を推定するものであって、いわゆるレプリカ法と名づけられている。この場合もわれわれが直接知り得るのは表面の凹凸に関する形状だけであって、光学的な方法では従来のスンプ法に対応するものである。

上記3種の方法のうちよく知られているように、解像能が最も高いことから主として第3の透過法が用いられ、第2の方法は補助的な手段として採られている。最近の電子顕微鏡では次第に透過法と反射法とに兼用される構造になってきた。

ところで金属の表面組織の撮影に関しては、第1の方法が最も直接的なものであるから誰しもこの方法を最も

好しく感ずるのであろうし、また実際研究に応用されて成果を挙げたのはこの型のものが初めてであって⁽¹⁾、透過型の実用に先立つこと8年ばかりである。

しかしこの型のものの分解能はせいぜい200倍程度の倍率の光学顕微鏡のそれと同程度であって、光学顕微鏡に優れている点と云えば高温における組織とか組織の変転が容易に撮影することができることだけであつた。そして応用も主としてこの方面に限られていた。その後透過型の進歩と1940年以後のドイツA E GのMahl⁽²⁾および戦時中アメリカのHeidenreich⁽³⁾等によるレプリカ法の発達とによりこの表面放出型が影を潜めてしまった。

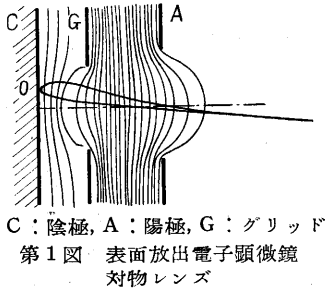
しかし、表面放出型に多少の執着をもっていた筆者はこれについて1951年度さらに一度検討し直してみた結果解像能が少なくとも1000 Å に達し得る見込みがあつたからこれについて少しく調べてみた。丁度そのとき1942年すなわち戦争中ドイツでMecklenburg⁽⁴⁾が放出型電子顕微鏡(解像能1500 Å)について発表していることを知りこの記事の掲載されている雑誌Zeitschrift für Physikの本邦における唯一の所有者である広島文理大から藤原教授の好意によりその複写を戴き、これをみるに及んでこの型に対する自信を深めると共に先鞭をつけられていたことに多少氣落ちを感じた。そしてこの試作については1952年から計画を立てていたが一昨年当研究所において中間試作研究課題の一つとして採用され、昨年度において一応の出来上りはみた。しかしいろいろ不満足点があり、なお研究を続行中であるが、ここにこの試作品の概要と各部の機能に関する研究の概要をとりまとめたものを含め、かつ多分に解説的な意味をも加えた報告として執筆する次第である。

なおここに付記すべきことは最近欧州においても表面放出型の研究が急に盛んになってきたことである。すなわち1953年にドイツのMöllenstedt教授⁽⁵⁾が試料表面をイオンビームで衝撃しそれからの二次電子で表面組織の像を撮る装置をつくっているし、フランスのA. Septier⁽⁶⁾が表面放出型について比較的詳しい実験を行っている。また最近Heidenreich⁽⁷⁾によってこのSeptierの型のものを用いて鉄の変態について研究した結果の発表が行われている。

1. 表面放出型電子顕微鏡の構造と分解能の限界

表面放出型の電子顕微鏡の本体の主要部は通例の顕微

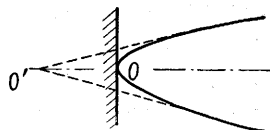
鏡と同じく対物レンズと投射レンズの組合せおよびこれらレンズによって形成された像を撮影するカメラである。この他の附属装置としてはレンズに加える数万 Volt の定常電圧を供給する電源およびその安定装置、ならびに鏡体内を真空に保つ真空ポンプが伴うことは言うまでもない。対物レンズは被写体自身 C (陰極になっている)、グリッド G および陽極 A の三枚の電極の組合せから成り、これは同時に電子を加速する役割をも演じているもので、いわゆる“静電界浸レンズ” (Electrostatic Immersion Lens) に



なっており、第1図の細い曲線群はレンズ内の等電位面を示し点 O からの実線は陰極から出た電子線の大体の経路を示すものである。この対物レンズにより 10 数倍から 2~300 倍程度の実像が得られる。それをさらに放射レンズによって拡大するわけである。投射レンズには静電レンズ、あるいは磁界レンズが用いられる。初期の頃の低い解像能のものでは投射レンズの必要はなかった。

放出電子としては陰極面を高温に熱して得られる熱電子、あるいは表面を高速のイオンによって衝撃してそれによって放出する二次電子を用いている。強い光の照射によって得られる光電子を利用することも試みられてきたが光電子の強度が弱いのでいまのところ実用価値は認められていない。

この型の解像能は透過型のもののもつ程度 (約10A°) には到底達しさせることはできない。それは結像に用いている電子は陰極面自体から放出する電子である。周知のようにこの電子の速度分布は Maxwell 分布をなし、大多数のものもつ速度は $T/11,600 \text{ eV}$ であって、(T は絶対温度), $T=2000^\circ\text{K}$ においてすら 0.16 eV である。これに対する電子波長は約 30 A° で本質的にはこれ以上の高い分解能は得られないわけである。しかしこれ以上に分解能を支配するのは放出速度が一定でないことからの収差が存在することである。それは次の理由による。陰極表面 O から出た電子は表面附近の電界によって加速されてその軌道の方向が次第に電界方向に近づくにつつグリッドの方へ向い、第2図のような電子束になり、あたかも陰極後方の一点 O' から出射したような束になり、この電子束が対物レンズによって収束され、O' の共軛点に O の像を結ぶ。ところ



第2図

がこの O' 位置は電子の速度によって異なり、また一点

O からいろいろの速度の電子が出るので光学レンズになぞらえると色収差のある像しかできないことになる。この収差をできるだけ少なくするには表面の電界をできるだけ強くすることが必要である。

この収差による解像能の限界 δ は

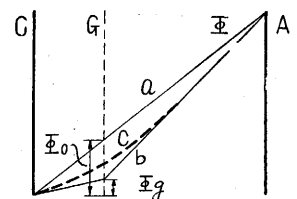
$$\delta = 4 \times 10^3 T / 1.16 E_0 \mu\text{m}, \quad E_0 \text{ in Volt/cm}$$

で与えられることが知られている⁽⁹⁾。ここで T は試料表面 (すなわち陰極の絶対温度), E_0 は表面の電界の強さを表わす。従って BaO 等の塗布による低温放出 ($T=1000^\circ\text{K}$) においては $E_0=150 \text{ kV/cm}$ の電界によって解像能を $23 \mu\text{m}$ に達せしめることができる。解像能に関しては透過型のものに比べて低いとは言え、この値は油浸レンズを用いた光学顕微鏡の解像能より一桁も高いのであるから顕微鏡としての機能はなお相当高く評価されるに値するものであろう。以上は色収差と云う点のみから考えた値であるがそのほかにレンズ自身の収差、特に後でも述べるがコマ等の存在によって解像能は到底この値にまで達することはできないで 1000 A° 位がいまのところ限度であらうと思われる。

対物レンズ

対物レンズはこの型の電子顕微鏡の機能を決定する最終のものであり、また最も重要な部分でもあるのでこれについていろいろ調べてみた。イマージョンレンズについての極めて粗い近似計算はいままでも発表されているが余り詳しい計算は見当らない。それでこれについて近似度の高い計算をしてみた。このようなレンズに対してすべての境界条件を満足する厳密な解を見出すことは困難なのであるが、本研究所の試作の表面型のものにおいては物理学的に合理的なある程度の近似解を基にしていろいろの資料を算出して設計し、かつ実験と照し合せながら研究を進めている。次にこの型のレンズについての電界分布およびその焦点距離、或いはグリッド電位と陽極電位 (すなわち電子加速電圧) の比が変わった場合それが電位分布とか結像位置とかにどのように関係するかを概観的に述べる。

まず、グリッド G が無いときは陽極から陰極間の電界の強さは一様で電位は第3図の直線 (a) のようになる (ただし陽極に孔のあることを無視する)。この中に孔のないグリッドを置きその電位を ϕ_g とすれば電位分布は線 b のようになり、G の両側において電界の強さが異なる (ただし ϕ_g がグリッド電極が無い場合の G における電位 ϕ_0 より小さい場合を表わす)。グリッドに孔があると G の両側の電界が互に影響し合う結果として曲線 c のようになるであらう。この場合 $\phi_0 > \phi_g$ ならば曲線 c



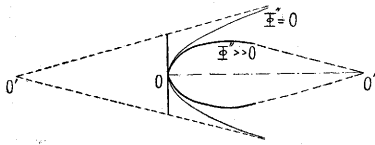
第3図

の曲率は正で、 $\phi_0 < \phi_G$ のときは負になり、 $|\phi_0 - \phi_G|$ が大きいほどその曲率は大きくなる。

さて電子軌道は

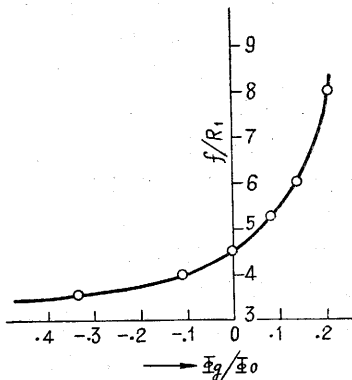
$$d^2r/dz^2 + (\phi''/2\phi) dr/dz + (\phi''/4\phi) r = 0 \quad (2)$$

で与えられる。(ここで z は中心軸上陰極を原点とする座標で、ここでは、その正の方向を陰極から陽極に向ってとる。また r は z 軸からの距離を表わし、 ϕ' および ϕ'' はそれぞれ軸上の電位およびその z に対する微係数を表わす。) この式からも明かなように $\phi'' = 0$ 、すなわち電界の強さが一樣ならば軌道は拋物線となり、陰極上の一点 O から出た電子束は $z < 0$ 側で陰極から非常に離れた点に焦点を結ぶので、対物レンズだけでは実像を結ばない。ところで第 3 図



第 4 図

で $\phi_G > \phi_0$ のときは $\phi'' > 0$ であるから、電子軌道の曲率 dr^2/dz^2 は $\phi'' = 0$ のときよりも上向きに凹となること、すなわち電子線の発散が大きくなることが (2) 式から知られる。それで ϕ_G が ϕ_0 よりも大きいほど O 点の虚像 O' 位置が陰極に近づく。これに反し $\phi_G < \phi_0$ ならば前記のように $\phi'' > 0$ であるから、電子軌道は $\phi'' = 0$ のときよりすみやかに軸に近寄り O 点の像の位置は陽極側に実像として表われる。そして ϕ_0 が ϕ_G に対して高いほど像の位置はレンズに近づく。第 5 図はレンズは ϕ_G/ϕ_0 と焦点距離との関係の一例を表わしたものである。なおこの場合レンズからカメラまでの距離 D



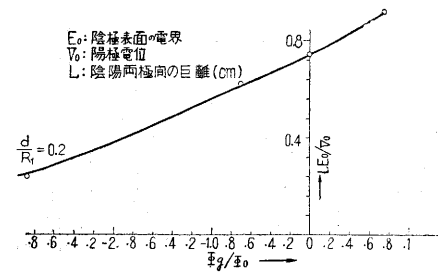
第 5 図 界浸レンズにおけるグリッド電位 ϕ_G と焦点距離 f の関係、(R_1 はグリッド孔の半径)

すなわち陰極とグリッド間の距離 d を変えると電界分布が変化しレンズ自体としても変わってくる。云いかえると d をかえると言うことは、光学レンズになぞらえるならば組合せレンズの各要素の屈折率と曲率をかえることに相当する。従って光学レンズの式に対応するいわ

ゆる

$$1/u + 1/v = 1/f$$

なる関係は成立しないことを付記しておく (ここで u 、 v はレンズから物点および像点までの距離)。また、上述のように ϕ_G/ϕ_0 を 1 に近づけるほど像の位置は陰極から遠くに生じるので倍率は大きくなる。すなわちグリッド電圧 ϕ_G を高めるかあるいは ϕ_0 を一定にしておく場合にはグリッドと陰極を近づけるほど焦点距離が大きくなり、倍率は大きくなる。一方焦点距離が大きくなると球面収差が大きくなる不利が伴う。他方分解能と言う点から考えると陰極表面の電界の強さ E_0 が小さくなくてはならぬのであるが、 ϕ_G が低いほど E_0 が小さくなる。この点から考えると ϕ_G が ϕ_0 に対して余り小さくない方がよい。この二つの収差の兼ね合いで ϕ_G をいかに選ぶかが定まる。第 6 図は ϕ_G/ϕ_0 と E_0 との関係を表わす。ただし E_0 の単位は加速電位 (Volt) を V_0 とすると V/cm を単位として表わす。なお V_0 、 ϕ_G および ϕ_0 の相対比が一定のときは電位分布は、すべての長さをグリッドの孔



第 6 図

径を単位として表わすならば、全く相似なので焦点距離はグリッド孔径に比例する。従って焦点距離を小さくして顕微鏡の筒の長さを短くするにはグリッド孔径を小さくせねばならぬ。しかしそれに伴ってグリッドと陰極間の距離を小さくせねばならず実際の操作に多分に不便を伴う。それは前述のグリッドおよび陰極間の距離はグリッドの厚さを無視した話であるから、実際の距離には少なくともグリッド電極の厚さの半分の距離だけのものが加わるので、ある程度以下にはこの距離はちぢまらないからであるし、また距離が余り小さくなるとグリッドと陰極間に数 100 Volt を加えた場合とかく放電が起り易くなるからである。またしかしグリッド孔径を大きくすることは tube length を長くするほかに収差をますと言う欠点もある。

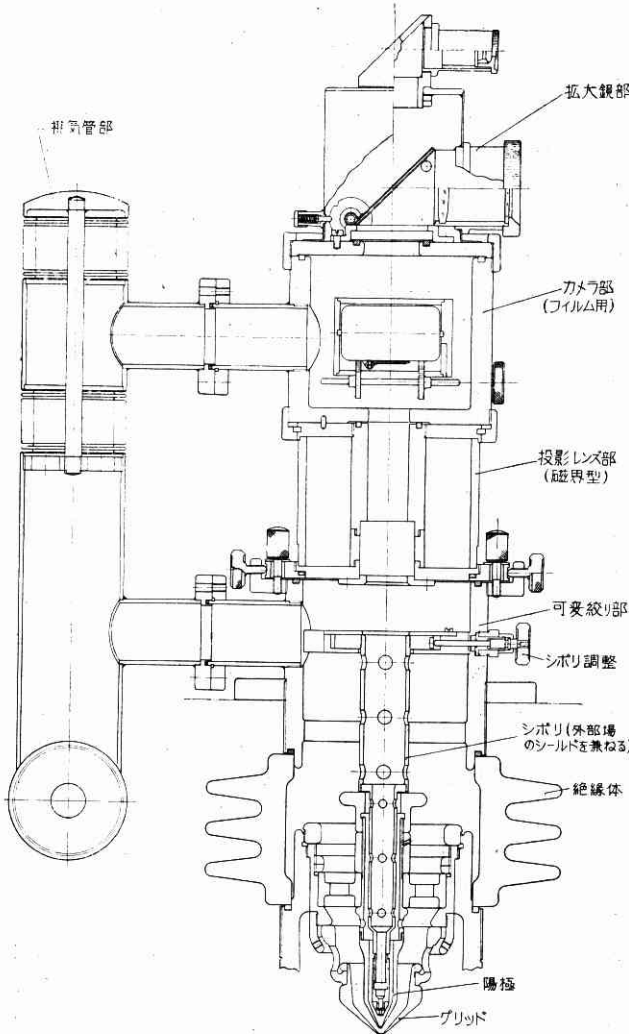
このほかグリッド電極の厚さが焦点距離に影響を与え、この電位が負の場合も正の場合も厚さが増すほど焦点距離は減少する。

上記の諸点を総合してこのたびの試作電子顕微鏡においてはグリッド孔の直径を 3 mm、グリッド陽極間を 4 mm とし加速電圧を 30~60 kV で使用し得るようにした。そしてグリッド電位あるいは陰極すなわち試料表面の位置を調整することによってピントを合わせることにした。これによって試料表面の電界の強さを 100kV/cm~

150 kV/cm 程度に保つことができる。なお陽極板の孔もレンズ作用をするが口径が極めて小さくない限りはこの作用は余り強くないで単にシボリのような作用をするだけである。

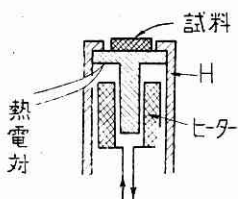
iii) 試作電子顕微鏡の構造

試作顕微鏡では対物レンズで拡大した像をさらに磁界型の第二のレンズを拡大するようにしてある。像の撮影は連続 36 枚撮りのフィルム装備のカメラで撮影するよ



第 7 図

うにされたもので試料の組織の変化をある程度連続撮影できるようにした。第 7 図はその構造を示すもので試料面はグリッドの下に置かれてある。それは試料面が陰極となり、これに負の高電圧がかかるので試料を下方に置くことの不利はあるが、融解点近く



H: 試料保持用凹筒兼陰極

第 8 図

までの高温における試料の表面組織の観測に対してはこの方が都合がよかったからである。

また試料加熱のために試料保持用陰極の形を第 8 図のようにしてその内部にアンチリングクタンズに巻いた電熱コイルを入れこの上部に試料をとりつけるようにした。試料の位置およびその傾きはユニヴァーサルジョ

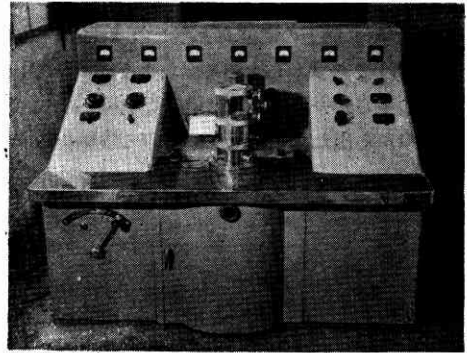


写真 1

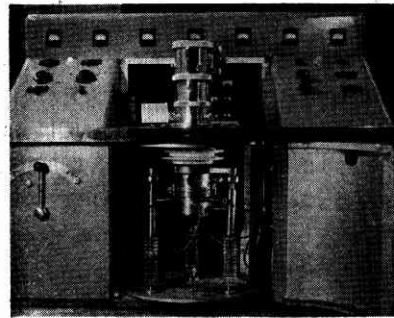


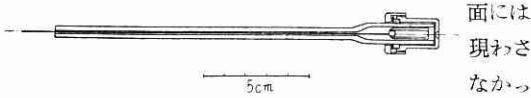
写真 2

イントを通じてボタンの廻転によって行い温度計、真空計等すべて

のメーターおよび電源ならびに真空ポンプ操作のスイッチ等は鏡体の支持台にとりつけたことは通例の如くである。写真(1)および(2)はそれぞれ外観および鏡体下部の模様を示すものである。

iv) 試料の観察およびその他

試料面をこの電子顕微鏡で観察するには試料面自体から電子放射を行わせるわけであるがこれはさきに述べた三つの方法がある。すなわち熱電子放出、光電子放出およびイオン衝撃による二次電子放出である。これらの中で第 2 のものでは電子電流は極めて弱いので極めて低い倍率(数倍程度)の像にしか利用できない。いままでは主として第 1 の方法がとられてきた。第 3 のものでは放出電子の速度分布は第 1 のものよりその分散の幅が広い不利はあるが 1953 年の Möllenstedt の発表⁽⁹⁾によると割合によい結果を与えている。上に述べた今回の試作金相用電子顕微鏡においては熱電子および二次電子の双方に用いられるようにし、低温および高温における状態を共に撮影できるように企てた。それで二次電子放出用イオン衝撃のため第 9 図のような Fert 型のイオン放射管⁽⁹⁾を側面(図



第 9 図

面には現わさなかつた)にとりつけた。この放射管は細い針状の陽極と底面の中心に小さい孔をもつ円筒型の陽極から成るものであるが極めて細いイオンビームを放出することが知られた。イオンビームによる衝撃に便するためグリッドの形を楕鉢形にしビームは試料面に対し 20° の傾きに入射させこれによって、グリッドと試料面の距離が 0.6 mm でもイオン衝撃が可能にようにした。

熱電子および二次電子の双方に使用するようにしたことによって前述の利点に加えて非常に便利になることが加わる。と言うより低温および高温のいずれかの観測をねらったとしてもこの二つの方法が必ず兼備されなくてはならぬことがわかった。それは次のような事実があるからである。高温における観測の場合表面は残留ガス等による表面の汚損が起りやすいのであるが、これにイオン衝撃を加えると表面が洗滌される。また二次電子の場合には結晶方位によるコントラストが余り表われないがこれを真空中で一度高温に熱するとそのコントラストがよくなる。

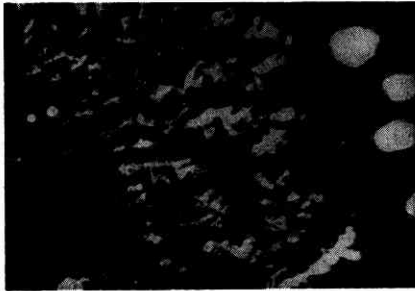


写真 3

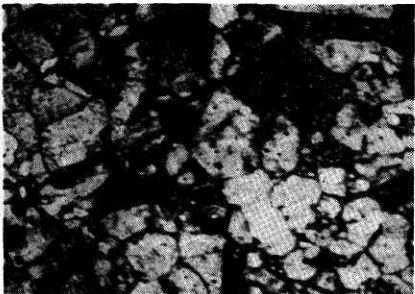


写真 4

写真(3)は酸化によって汚損された軟鉄の表面で(4)はイオン衝撃によって洗滌したときのものを表わす。表面はBaOを鏡体内で蒸着させて電子放出に対して活性化させたものであって、このときの真空は数

10^{-4} mmHg であまりよくなかつた。

なお、真空が余り高くないと表面が汚れるがその一例を(5)に示す(銅)。写真(6)および(7)は $5 \times 10^{-5}\text{ mmHg}$ 中で撮ったもので、(6)は対物レンズだけによるもの(7)は対物レンズに弱い磁界を併用した場合のものである。

いままでのところわれわれの得た結果は十分なものとは言ひ難い。いまだコマ収差がとり除かれないことその他に結線中特に接合点におけるコロナ放電等のため電圧

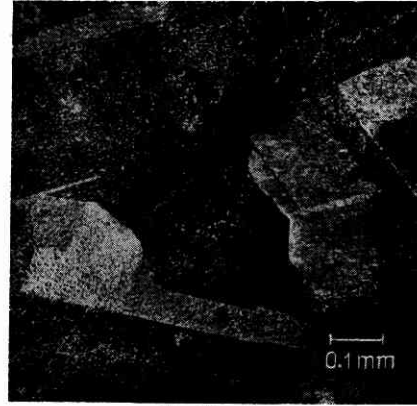


写真 5



写真 6

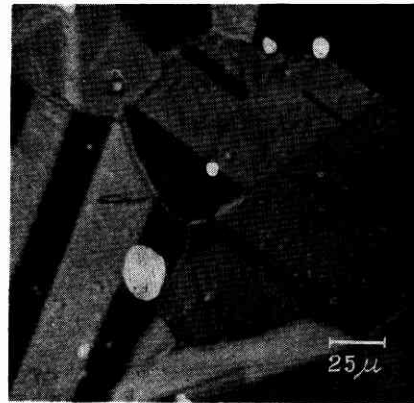


写真 7

の安定が十分でない結果高倍率ではピントがボケルからである。これらの点を次ぎ次ぎ解決することに努力中であり、外国ではすでに完成された 1000 A° 以下の解像能のものを追越すことができる確信をわれわれもつことを書添えて蛇尾ながらこの報告を終る。

最後にこの試作および改善に熱心に協力して下さった日本電子光学研究所員伊藤一夫、青津直およびその他の諸氏ならびに昨夏卒業実習として協力された工学部応用物理学卒業の河合義

夫氏に厚く感謝の意を表わします。(1955. 10. 17)

文 献

- (1) E. Brüche; H. Johannson: Ann. Phys. **120**, 318, 1932
- E. Brüche; W. Knecht: Z. tech. Phys. **15**, 461, 1934
- (2) H. Mahl: Z. tech. Phys. **21**, 17 (1940); Metallwirts **19**, 1082 (1940)
- (3) R.D Heidenreich: J. Appl. Phys. **14**, 23 (1943)
- (4) W. Mecklenburg: Z. Phys. **120**, 21 (1942)
- (5) G. Möllenstedt: Optik **10**, 193 (1953)
- (6) A. Septier: Comp. Rend. **235**, 609, 652, 1621 (1952)
- (7) R. D Heidenreich: J. Appl. Phys. **26**, 757 (1955)
- (8) A. Recknagel: Z. Phys. **117**, 689 (1941)
- (9) A. Fert: Comp. Rend. **238**, 333 (1954)
- (10) G. Möllenstedt: Optik **11**, 83 (1954)